Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

N° d'ordre : 4366

Université Lille1 - Sciences et Technologies

Thèse

pour obtenir le grade de :

Docteur de l'Université Lille1

dans la spécialité

« Optique, Lasers, Physico-Chimie, Atmosphère »

par

Virginie BUCHARD-MARCHANT

Caractérisation du contenu atmosphérique en ozone et en aérosols au moyen de mesures spectrales dans l'UV. Validation de l'instrument spatial OMI/AURA.

Thèse soutenue le 05 juin 2009 devant le jury composé de :

M. Hugo De Backer	Chef de Travaux, RMI, Belgique	Rapporteur
M. Philippe Keckhut	Physicien, LATMOS, Université de Versailles Saint Quentin	Rapporteur
Mme Jacqueline Lenoble	Professeur émérite, LOA, Université Lille1	Examinatrice
M. Bernard Bonsang	DR-CNRS, LSCE, Université de Versailles Saint Quentin	Examinateur
M. Marcelo de Paula Correa	Professeur, IRN Université Fédéral de Itajubá, Brésil	Examinateur
Mlle Isabelle Chiapello	CR-CNRS, LOA, Université Lille1	Co-directrice de thèse
Mme Colette Brogniez	Professeur, LOA, Université Lille1	Directrice de thèse

Laboratoire d'Optique Atmosphérique
U.F.R de Physique Fondamentale
Université Lille1 - Sciences et Technologies
59655 Villeneuve d'Ascq France

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Remerciements

Mes remerciements vont à toutes les personnes impliquées de façon directe et indirecte dans ce travail de thèse.

Tout d'abord à Colette Brogniez et Isabelle Chiapello, pour avoir accepté de diriger mon travail de thèse. Je les remercie pour leur encadrement et leur disponibilité au cours de ces années.

Ensuite à Didier Tanré et Frédéric Parol, directeurs successifs du laboratoire pour m'avoir accueillie au sein du laboratoire.

A Hugo de Backer et Philippe Keckhut, pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail.

A Jacqueline Lenoble, Bernard Bonsang et Marcelo de Paula Correa, qui ont accepté d'examiner ce travail.

Merci à Frédérique Auriol et Bernard Bonnel pour leur aide précieuse au cours de ces années.

J'adresse également mes remerciements à toutes les personnes qui de près ou de loin m'ont aidée par leurs compétences et leur amitié. Je citerai notamment Luc Blarel, Christine Deroo, Fabrice Ducos, Romain de Filippi, Philippe François et Thierry Podvin.

Je n'oublie pas de remercier pour leur amitié Isabelle Favier, Julie Letertre, Marie-Lyse Liévin, Jérôme Riédi, Frédérick Roussel, Cédric Tétard et Anne Vermeulen.

Enfin, merci à mes parents, ma soeur, mon frère et surtout à Benjamin pour leur soutien durant ces années.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Resumé

Depuis la découverte d'une diminution de la quantité d'ozone stratosphérique au milieu des années 1980, une surveillance de la couche d'ozone et de l'éclairement UV s'est mise en place à l'aide d'instruments au sol et spatiaux. Les mesures de rayonnement UV permettent d'une part de surveiller l'intensité de ce rayonnement arrivant au sol, et d'autre part de caractériser certains composés atmosphériques comme la quantité d'ozone et les aérosols.

Après avoir présenté les généralités sur les mesures UV, ainsi que deux paramètres influant sur le rayonnement UV qui sont l'ozone et les aérosols, les différents instruments au sol et satellitaire dont j'ai analysé les mesures sont décrits.

Dans un premier temps, mon travail de thèse a porté sur l'inversion des mesures spectrales au sol d'un spectroradiomètre installé à Villeneuve d'Ascq. J'ai poursuivi la restitution de la colonne totale d'ozone, ce qui m'a permis de disposer d'une série temporelle de plusieurs années. J'ai déterminé deux paramètres aérosols, l'épaisseur optique (AOT) et l'albédo de diffusion simple. La détermination de ces deux paramètres présente un interêt dans l'évaluation de l'impact des aérosols dans le changement climatique. L'AOT est obtenue à partir des spectres d'éclairement direct déduits des mesures des éclairements global et diffus. Concernant la détermination de l'albédo de diffusion simple, l'approche a consisté à coupler les éclairements mesurés et la modélisation. Les comparaisons avec les produits restitués à partir des mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTONS se sont révélées très satisfaisantes.

Dans un deuxième temps, j'ai participé à la validation de l'instrument spatial OMI/AURA dans le cadre d'un projet de l'ESA. Cet instrument lancé en juillet 2004, est destiné à effectuer une surveillance globale de l'ozone et de l'UV. J'ai tout d'abord validé les produits ozone, éclairement UV et aérosols en utilisant les mesures spectrales réalisées à Villeneuve d'Ascq et à Briançon. Ce travail a permis d'établir que les produits ozone d'OMI (OMI-TOMS et OMI-DOAS) sont bien restitués, alors que les éclairements UV spectral et érythémateux sont à utiliser avec précaution. L'effet de l'absorption des aérosols a été mis en évidence. À Villeneuve d'Ascq, les comparaisons entre les AOT-OMI et les AOT restituées au sol sont peu satisfaisantes, un contenu en aérosol et une absorption des aérosols modérés semblant expliquer les désaccords observés. J'ai alors poursuivi mon étude en utilisant les mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTONS en Afrique de l'Ouest obtenues durant la campagne AMMA en 2006, cette région étant sous l'influence de contenus élevés en aérosols absorbants. Des résultats meilleurs qu'à VdA ont été obtenus. Enfin j'ai notamment montré qu'OMI restitue un albédo de diffusion simple satisfaisant sur cette région, permettant de conclure que ce paramètre OMI est utilisable là où les AOT et absorption sont élevées.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Abstract

Since the discovery of the stratospheric ozone reduction in the middle of the 1980's, a monitoring of the ozone layer and UV irradiance was organized, using ground-based and satellite instruments. Measurements of UV radiation allow both to monitor the intensity of this radiation reaching the surface and to retrieve atmospheric compounds such as the ozone content and aerosol characteristics.

After presentation of general information on UV measurements and on two parameters (the quantity of ozone and aerosols) which influence the quantity of UV radiation reaching the Earth's surface, ground-based and satellite instruments whose I analyzed the measurements are described.

First my thesis thesis concerns the inversion of spectral ground-based measurements performed by a spectroradiometer at Villeneuve d'Ascq. I continued the restitution of the total column of ozone that provides a multi-year record of this quantity. I determined two aerosol parameters, the aerosol optical thickness (AOT) and the single scattering albedo. The determination of these two parameters is interesting in the evaluation of the impact of aerosol on climate change. The AOT is obtained from direct irradiance spectrum deducted from global and diffuse irradiances. The other algorithm determining SSA consists in combining ground-based measurements and modeling. The comparisons with products derived from sun photometer measurements of the AERONET/PHOTONS network appeared very good.

In a second time, I participated in the validation of the OMI/AURA spatial instrument within the framework of an ESA project. This instrument launched in july 2004, is dedicated to the global monitoring of the quantity of ozone and UV irradiance. First, I validated the total column of ozone, UV irradiance and aerosols products by using spectral measurements performed at Villeneuve d'Ascq and Briançon. This work allowed to establish that the OMI ozone products (OMI-TOMS and OMI-DOAS) are very well retrieved, whereas spectral and erythemal dose UV have to be used with caution. The effect of the absorption of aerosols was identified. At Villeneuve d'Ascq, the comparisons between OMI-AOT and those derived from ground-based measurements are not satisfying due to moderate aerosol content and absorption. Thus I pursued my study by using photometric measurements of the AERONET/PHOTONS network in Western-Africa region obtained during the AMMA campaign in 2006, this region being influenced by high loads of absorbing aerosols. The results are better than at VdA. Finally I showed that the single scattering albedo derived from OMI measurement is satisfying in this region, allowing to conclude that this OMI parameter is usable when the AOT and absorption are high.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Table des matières

Table des matières 9

Introduction générale 13

1 Généralités sur les mesures UV depuis le sol et depuis l'espace 19
1.1 Le rayonnement UV . . . 19
1.1.1 Notions de radiométrie . . . 19
1.1.1.1 Eclairement . . . 19
1.1.1.2 Flux sphérique . . . 20
1.1.1.3 Puissance érythémateuse . . . 20
1.1.2 Facteurs atmosphériques influençant l'UV . . . 21
1.1.2.1 L'ozone . . . 21
1.1.2.2 Les aérosols . . . 24
1.2 Les instruments de mesures UV au sol . . . 28
1.2.1 Le spectroradiomètre UV . . . 29
1.2.2 Le radiomètre large-bande . . . 35
1.3 Le réseau photométrique AERONET/PHOTONS . . . 36
1.4 L'observation satellitaire du rayonnement UV : l'instrument OMI . . . 36

2 Inversion et utilisation des mesures spectrales depuis le sol 39
2.1 Modélisation d'un spectre UV . . . 40
2.1.1 Paramètres d'entrée du code de transfert radiatif . . . 40
2.1.2 Simulation des éclairements . . . 42
2.1.2.1 Méthode . . . 42
2.1.2.2 Choix du spectre hors atmosphère . . . 44
2.2 Détermination de la quantité d'ozone . . . 46
2.2.1 Méthode . . . 46
2.2.2 Résultats . . . 47
2.3 Caractérisation des aérosols . . . 54
2.3.1 Détermination de l'épaisseur optique des aérosols et du coefficient d'Angström . . . 54

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

2.3.1.1 Méthode . . . 54
2.3.1.2 Validation des AOT et des coefficients d'Angström avec AERONET/PHOTONS. . . . 61
2.3.2 Détermination de l'albédo de diffusion simple dans l'UV - visible . . . 74
2.3.2.1 Méthode . . . 74
2.3.2.2 Sensibilité au ω_0 en fonction du SZA et de l'AOT. . . . 76
2.3.2.3 Application aux mesures du spectroradiomètre . . . 78
2.3.2.4 Analyse des albédos de diffusion simple restitués . . . 86
2.4 Application à la pollution de l'air . . . 91
2.4.1 Introduction . . . 91
2.4.2 Principe de la photolyse . . . 92
2.4.3 Méthodes de restitution et de mesure . . . 93
2.4.4 Analyse des mesures de la campagne de 2005 à Grignon . . . 96
2.4.4.1 Comparaison des fréquences de photolyse du dioxyde d'azote . 97
2.4.4.2 Comparaison des fréquences de photolyse de l'ozone . . . 103
2.4.4.3 Les fréquences de photolyse de l'acide nitreux . . . 105

3 Analyse et validation des produits OMI **111**
3.1 Description des algorithmes d'inversion et des produits OMI . . . 112
3.1.1 La colonne totale d'ozone . . . 112
3.1.2 L'éclairement UV à la surface . . . 113
3.1.3 Les produits aérosols OMI . . . 114
3.1.3.1 L'indice en aérosol OMI . . . 115
3.1.3.2 Restitution des épaisseurs optiques d'absorption et d'extinction des aérosols . . . 117
3.2 Comparaison des produits OMI ozone, UV et aérosols avec les mesures sol en France . . . 119
3.2.1 Validation de la colonne totale d'ozone . . . 119
3.2.1.1 Site de Villeneuve d'Ascq . . . 120
3.2.1.2 Site de Briançon . . . 123
3.2.2 Validation de l'éclairement UV spectral . . . 128
3.2.3 Validation des puissances érythémateuses et des doses érythémateuses journalières . . . 131
3.2.3.1 Validation des puissances érythémateuses . . . 131
3.2.3.2 Validation des doses érythémateuses journalières . . . 134
3.2.4 Validation des AOT à Villeneuve d'Ascq . . . 138
3.3 Validation régionale pour l'étude des aérosols en Afrique de l'Ouest 141
3.3.1 Présentation de la campagne AMMA et des sites de mesures utilisés . . . 141

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.3.2 Qualification de l'AI-OMI avec les mesures sol 142
3.3.2.1 Relation entre l'AI et l'AOT pour l'ensemble des sites 143
3.3.2.2 Analyse détaillée sur le site de M'Bour 144
3.3.3 Validation des épaisseurs optiques et albédo de diffusion simple des aérosols OMI. 151
3.3.3.1 Epaisseurs optiques des aérosols - OMI 151
3.3.3.2 Albédo de diffusion simple - OMI 152

Conclusion générale **157**

Appendices **161**
A Quelques définitions de grandeurs statistiques utiles à notre étude 163
A.1 La régression simple (ou ajustement par moindres carrés) : 164
A.2 La regression robuste : 164
B Fiche pratique sur les instruments 168
B.1 Le spectroradiomètre Jobin-Yvon 168
B.2 Le radiomètre UVB 169
C Articles liés à cette thèse
. 170

Bibliographie **197**

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Introduction générale

Le rayonnement ultraviolet (UV) solaire atteignant la surface de la Terre représente moins de 10% du rayonnement solaire total. C'est un rayonnement bénéfique pour l'homme en jouant un rôle important dans la production de vitamine D [Schwartz et Blot, 2006; Webb et Engelsen, 2006; McKenzie et al., 2009] mais, en raison de sa forte énergie, ce rayonnement peut également avoir un impact néfaste sur la santé humaine (cancer de la peau [Diffey, 1991], affaiblissement du système immunitaire [Vermeer et al., 1991], problèmes oculaires tels que les cataractes [Taylor, 1990]) et sur l'écosystème biologique (limitation de l'activité de photosynthèse) [Ghetti et al., 2006]. De plus, ce rayonnement affecte également la composition chimique de la basse troposphère en intervenant dans la photolyse de certains gaz comme le dioxyde d'azote (NO_2) ou l'ozone (O_3).

La présence d'ozone dans la stratosphère permet le filtrage des rayonnements ultraviolets les plus nocifs pour la vie en absorbant complètement les UV-C (compris entre 100 et 280 nm) et en limitant la propagation d'une partie des UV-B (280 à 315 nm) jusqu'à la surface de la Terre. Les UV-A (315 - 400 nm) sont quant à eux peu absorbés. On comprend alors l'importance de la couche d'ozone stratosphérique dans la protection de la Terre contre les radiations UV.

Les premières préoccupations de la communauté scientifique sur la quantité d'ozone atmosphérique virent le jour au milieu des années 1970 lorsque deux chercheurs émirent l'hypothèse selon laquelle les chlorofluorocarbones (CFC) émis en abondance dans la stratosphère seraient capables de détruire la couche d'ozone via des réactions chimiques complexes [Molina et Rowland, 1974]. Ces prévisions furent ensuite confirmées par la découverte d'une diminution massive de la quantité d'ozone au printemps 1984 au-dessus de l'Antarctique par une équipe britannique [Farman et al., 1985]. Une baisse de la quantité d'ozone sera ensuite observée en Arctique [Bojkov et al., 1993] et à l'échelle globale avec les données recueillies sur plusieurs années, notamment celles issues de l'instrument satellitaire TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) [McPeters et al., 1998].

Connaissant le rôle protecteur de la couche d'ozone, plusieurs nations ont donc réagi en 1987 en signant un premier traité à Montréal, qui sera suivi de plusieurs amendements, afin de bannir à l'horizon 2000 la production des substances destructrices de la couche d'ozone (telles que les CFCs, Halons, HCFCs et autres) dans les pays industrialisés. Une surveillance du rayonnement UV s'est également mise en place progressivement avec

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

le développement de stations de mesure au sol et d'instruments satellitaires. Ces deux composantes sont complémentaires l'une de l'autre : d'une part les satellites étendent au domaine global les mesures obtenues par les réseaux au sol et d'autre part l'utilisation des satellites s'appuie sur des mesures au sol afin de valider les produits.

La figure 1 montre, à partir des mesures de différents sites au cours des années 1990, l'augmentation de rayonnement UV en raison de la diminution de la quantité d'ozone [WMO, 1999].

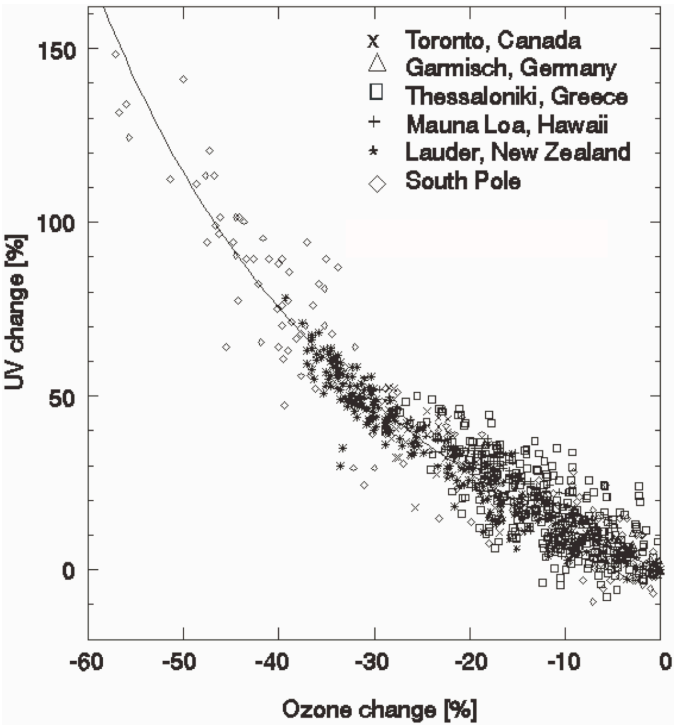

FIG. 1 – *Dépendance de l'éclairement UV érythémateux à la surface de la Terre en fonction du changement de la quantité totale d'ozone atmosphérique, mesuré uniquement lors des journées claires en différents sites. Légende : Toronto, Canada [Fioletov et Evans, 1997] ; Garmisch, Allemagne [Mayer et al., 1997] ; Thessaloniki, Grèce [Zerefos et al., 1997] ; Mauna Loa, Hawaii [Bodhaine et al., 1997] ; Lauder, Nouvelle Zélande [McKenzie et al., 1998] ; et Pôle Sud [Booth et Madronich, 1994] [WMO, 1999].*

Concernant le Pôle Sud, la diminution massive d'ozone évoquée précédemment est clairement observée, entraînant une augmentation de l'UV érythémateux de plus de 50%. En Nouvelle Zélande des changements élevés de l'ozone atmosphérique ont également été relevés. Concernant les autres sites situés dans l'hémisphère-nord, des changements moins importants de la quantité d'ozone sont observés. Ceux-ci sont tout de même significatifs avec des diminutions allant jusqu'à 30%, entraînant une augmentation de rayonnement UV pouvant atteindre 50%.

Vingt et un ans après sa signature, le protocole de Montréal semble être un succès en terme de réduction des émissions et de la diminution lente des concentrations des espèces nocives pour la couche d'ozone. Des valeurs moyennes de l'abondance d'ozone dans les

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

régions non polaires ont été observées proches des valeurs pré-1980 pour la période 2002 - 2005 [WMO, 2007]. Diverses prévisions prévoient un rétablissement de la couche d'ozone autour du milieu du XXI^{ème} siècle. Cependant, de nombreuses incertitudes existent encore, liées à une mauvaise compréhension de tous les mécanismes impliqués, comme par exemple l'impact du changement climatique, associé notamment à l'augmentation des gaz à effet de serre, sur la restauration de la couche d'ozone. La continuation de la surveillance de la couche d'ozone et du rayonnement UV est donc encore indispensable pendant plusieurs années. Dans ce contexte, le LOA s'y intéresse en effectuant des mesures de rayonnement UV à la surface. Grâce à ces mesures, le LOA appartient depuis 2001, au réseau NDACC (Network for Detection of Atmospheric Composition Change) mis en oeuvre en 1991, dont l'objectif est d'étudier les changements de la composition de l'atmosphère et l'impact à la surface. Ce réseau est composé d'environ 70 stations réparties de l'Arctique à l'Antarctique. Concernant la composante UV du réseau, les dix stations sont équipées de différents instruments tels - spectroradiomètres, pyranomètres, radiomètres à filtres.

Outre les facteurs géographiques (latitude, altitude, albédo de sol) et temporels (heure de la journée, saison), plusieurs paramètres atmosphériques autres que l'ozone influencent la quantité de rayonnement UV arrivant au sol. Les plus importants sont les nuages et les aérosols. Les mesures de ce rayonnement contiennent donc des informations sur le contenu atmosphérique de certains gaz, comme l'ozone, et aussi sur les propriétés optiques des aérosols. Une meilleure connaissance de ces dernières devrait permettre d'estimer leur impact dans le changement climatique, qui reste encore mal évalué aujourd'hui [Forster et al., 2007]. Depuis quelques années, la détermination des propriétés absorbantes des aérosols dans l'UV a reçu une attention particulière. Il existe deux raisons à cela :

(i) d'une part, dans le domaine UV, la faible réflectance de surface quel que soit le type de surface (à l'exclusion de la neige) rend possible l'estimation des propriétés optiques des aérosols à partir des mesures satellitaires à la fois sur terre et sur mer [Herman et Celarier, 1997]. Ceci représente un avantage important de l'UV puisque les méthodes d'inversions satellitaires utilisées dans le domaine du visible et du proche-infra-rouge sont généralement limitées aux surfaces peu réfléchissantes comme les océans.

(ii) d'autre part, des études ont montré que les variations de l'éclairement UV à la surface pourraient être fortement influencées par des changements dans le temps des propriétés optiques des aérosols et plus particulièrement de l'albédo de diffusion simple, qui définit la capacité d'absorption des aérosols [WMO, 2007]. Toutefois, la détermination de ce paramètre est difficile en raison des incertitudes affectant les mesures UV au sol [Petters et al., 2003; Bais et al., 2005] et satellitaires [Torres et al., 1998; 2005]. Des mesures

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

et études supplémentaires sont donc nécessaires.

Le travail de cette thèse s'appuie principalement sur les mesures spectrales réalisées avec le spectroradiomètre du LOA. Les objectifs sont :

- de poursuivre la restitution de la quantité d'ozone atmosphérique et d'améliorer la restitution de l'épaisseur optique des aérosols, initiées avec la thèse de Houët [2003],
- de développer un algorithme de restitution de l'absorption des aérosols,
- d'utiliser cet ensemble de données pour la validation des produits ozone, UV et aérosols de l'instrument OMI (Ozone Monitoring Instrument) embarqué sur la plate-forme AURA et d'effectuer des études de cas.

Ainsi, le document s'articule de la manière suivante. Dans le premier chapitre, nous donnons au lecteur les bases physiques et éléments nécessaires à la compréhension du travail présenté. Nous commençons par décrire la physique des aérosols et la chimie de l'ozone. Après avoir abordé le fonctionnement des différents instruments de mesures au sol utilisés, le dernier paragraphe est dédié à la description de l'instrument OMI.

Le deuxième chapitre est consacré à l'analyse des mesures spectrales dans l'UV-visible obtenues avec notre spectroradiomètre à Villeneuve d'Ascq (VdA), station-toit du LOA. Ce chapitre se divise en trois parties :

Dans une première partie, nous nous intéressons à la quantité d'ozone mesurée durant plusieurs années. Après une description succincte de la méthode d'inversion établie par Houët [2003] durant sa thèse, nous présentons les mesures obtenues depuis l'année 2000 sur notre site.

La seconde partie est dédiée à la caractérisation des aérosols. Les méthodes nous permettant de déterminer l'épaisseur optique et l'albédo de diffusion simple des aérosols sont décrites en détail, et les résultats obtenus sont analysés par comparaison avec les produits des photomètres du réseau AERONET/PHOTONS installés à côté de notre spectroradiomètre.

La troisième partie est consacrée à une campagne de mesures de la pollution de l'air en région parisienne à laquelle le LOA a participé. Les mesures spectrales effectuées durant cette campagne en 2005 ont permis de déterminer les fréquences de photolyse de certains gaz.

Le troisième chapitre est consacré à la validation de l'instrument OMI. Comme nous l'avons déjà évoqué, les différents instruments TOMS ont permis la surveillance de la colonne totale d'ozone de 1978 à 2005. Depuis 2004, l'instrument OMI [Levelt et al., 2006], à bord de la plate-forme AURA, assure le suivi de l'ozone et de l'éclairement UV arrivant

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

à la surface. Cet instrument, lancé depuis peu, a nécessité une validation de ses produits. Dans un premier temps les différents algorithmes OMI sont présentés. Ensuite les produits ozone, éclairement UV et aérosols sont comparés aux produits issus des mesures obtenues sur les sites de VdA et de Briançon. Enfin, une étude sur les produits aérosols OMI est effectuée sur certains sites d'Afrique de l'Ouest impliqués durant la campagne AMMA (Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine) menée en 2006.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Chapitre 1

Généralités sur les mesures UV depuis le sol et depuis l'espace

Une partie de ce chapitre est consacrée aux définitions de notions utiles (théoriques) suivie de la description de deux paramètres particulièrement influents sur le rayonnement UV, qui sont l'ozone et les aérosols. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à la description des instruments utilisés dans cette thèse, qu'ils soient au sol ou satellitaires.

1.1 Le rayonnement UV

1.1.1 Notions de radiométrie

1.1.1.1 Eclairement

La luminance spectrale est définie comme la puissance émise dE_λ par unité d'angle solide $d\Omega$, par unité de longueur d'onde $d\lambda$ et par unité de surface apparente ($dA\,cos\theta$) d'une source étendue dans une direction donnée θ. Elle s'exprime en W. m^{-2}. sr^{-1}. μm^{-1}.

$$L_\lambda = \frac{dE_\lambda}{d\Omega\, dA cos\theta\, d\lambda\, dt}. \tag{1.1}$$

L'éclairement spectral $E(\lambda)$ sur un plan horizontal est le flux énergétique reçu par unité de surface plane en provenance de toutes les directions du demi-espace (W. m^{-2}.μm^{-1}). Il est calculé en intégrant la luminance sur un demi-espace (2π sr), selon la loi en cosinus :

$$E_\lambda = \int_\Omega L_\lambda\, cos\theta\, d\Omega = \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} L_\lambda(\theta,\varphi)\, cos\theta\, sin\theta\, d\theta\, d\varphi. \tag{1.2}$$

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

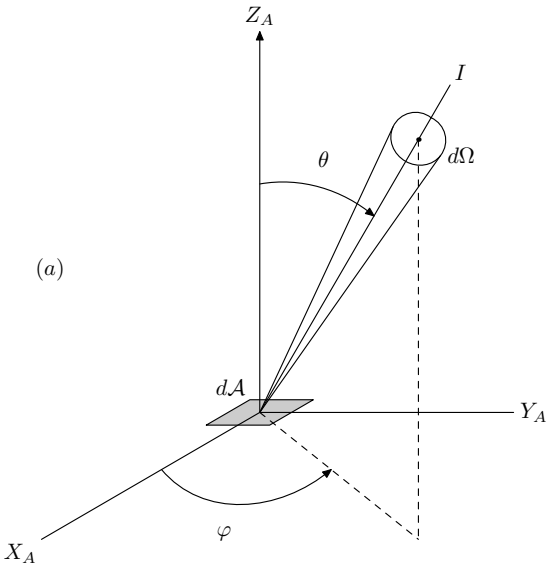

FIG. 1.1 – *Propagation de la lumière dans un angle solide $d\Omega$ traversant un élément de surface horizontal dA. L'angle entre la normale à la surface dA et la direction de propagation, appelé angle zénithal, est noté θ. L'angle noté φ est l'angle azimutal.*

1.1.1.2 Flux sphérique

Le flux sphérique (ou flux actinique) est le flux énergétique en un point ou l'énergie totale incidente sur une sphère, indépendamment de la direction d'incidence. Il est calculé à partir de l'intégration de la luminance sur tout l'espace (4π sr) :

$$F(\lambda) = \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi} L_\lambda(\theta, \varphi)\, d\Omega\cdot \tag{1.3}$$

$F(\lambda)$ s'exprime en W. m^{-2}. μm^{-1}, (ou photons. s^{-1}.m^{-2}. μm^{-1}).

1.1.1.3 Puissance érythémateuse

Une irritation de la peau suite à une exposition prolongée au soleil est appelée "érythème". Ce rougissement de la peau, plus communément appelé "coup de soleil", est provoqué par les rayonnements ultraviolets. La CIE (Commission Internationale de l'Eclairage) a défini un spectre d'action de référence pour caractériser la réaction de la peau humaine au rayonnement UV, le "spectre d'action erythémateuse". La figure 1.2 présente le spectre d'action érythémateux de Diffey [McKinley et Diffey, 1987] pour une peau de type caucasien, nous remarquons que la sensibilité de la peau est maximale dans les UV-B (280 à 315 nm) puis décroît rapidement dans les UV-A (de 315 à 400 nm).

Les puissances érythémateuses (indicateur de l'activité érythémateuse du soleil) sont obtenues à partir des mesures spectrales $E(\lambda)$ pondérées par le spectre d'action érythé-

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

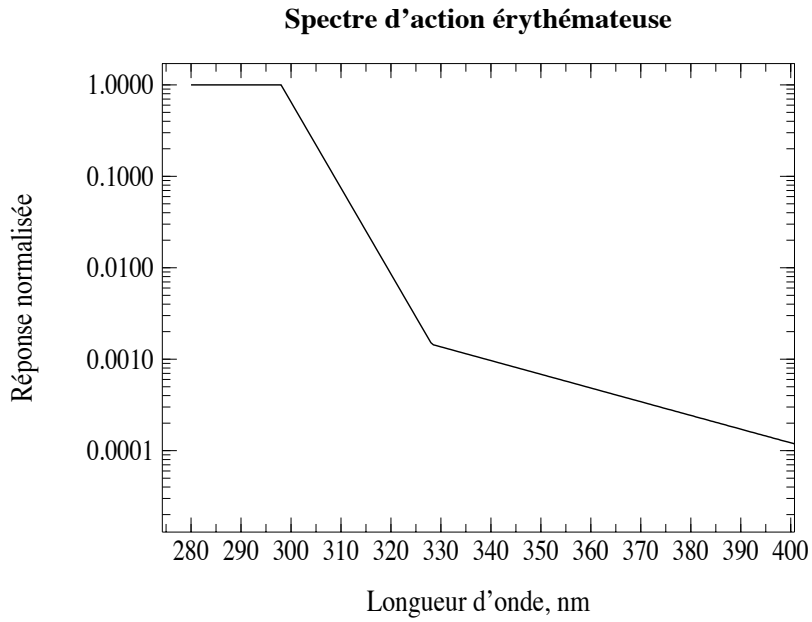

FIG. 1.2 – *Allure du spectre d'action érythémateuse de Diffey en coordonnées logarithmiques.*

mateux $D(\lambda)$ et intégrées sur une bande spectrale allant de 280 à 400 nm (exprimées en $W.m^{-2}$) :

$$P_{eryth} = \int_{280nm}^{400nm} E(\lambda)D(\lambda)d\lambda\cdot \tag{1.4}$$

En intégrant les puissances érythémateuses entre un instant t1 de début d'exposition et un instant t2 de fin d'exposition, on obtient la dose érythémateuse reçue (exprimée en $J.m^{-2}$) :

$$Dose_{eryth} = \int_{t_1}^{t_2} P_{eryth}\, dt\cdot \tag{1.5}$$

1.1.2 Facteurs atmosphériques influençant l'UV

Parmi les facteurs influençant le rayonnement UV arrivant à la surface, nous pouvons citer l'angle solaire zénithal (Solar Zénith Angle ou SZA), l'altitude, l'albédo de sol (compris entre 0 et 1, il représente la proportion d'éclairement arrivant au sol qui sera réfléchi vers le ciel), puis les nuages, l'ozone et les aérosols. L'ozone et les aérosols, étudiés tout particulièrement dans la suite de ce manuscript, sont par conséquent présentés en détail.

1.1.2.1 L'ozone

L'ozone se trouve à la fois dans les couches élevées de l'atmosphère (la stratosphère : région de l'atmosphère située entre 12 et 50 km au-dessus de la surface) et dans les basses couches (la troposphère : zone où la majorité des phénomènes météorologiques

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

se produisent). Alors que l'ozone stratosphérique est essentiel en protégeant les êtres vivants des effets nocifs du rayonnement UV dans la gamme de 240 à 320 nm (bandes de Hartley), l'ozone troposphérique est, quant à lui, un polluant hautement indésirable. De par son pouvoir oxydant, ce gaz représente un danger pour la santé humaine (irritation des voies respiratoires) et participe également à l'augmentation de l'effet de serre.

Ozone stratosphérique :

L'ozone stratosphérique représente environ 90% de la quantité totale d'ozone atmosphérique. Afin d'expliquer la présence d'ozone dans la stratosphère, dès 1930 Chapman [1930] propose une théorie faisant intervenir uniquement l'oxygène. La première réaction de ce cycle est la photodissociation UV de l'oxygène moléculaire (O_2) en oxygène atomique :

$$O_2 + h\nu\,(\lambda < 242.4\,\text{nm}) \rightarrow O + O \quad \text{(R1)}$$

Les deux réactions suivantes utilisent les atomes d'oxygène formés :

$$\begin{aligned} O + O + M &\rightarrow O_2 + M \quad \text{(R2)} \quad \text{recombinaison de l'oxygène moléculaire} \\ O_2 + O + M &\rightarrow O_3 + M \quad \text{(R3)} \quad \text{formation de l'ozone} \end{aligned}$$

où M est une molécule d'azote ou d'oxygène. La réaction de recombinaison R2 étant très lente, c'est la réaction de formation de l'ozone R3 qui est prépondérante.

La destruction de l'ozone intervient par recombinaison selon la réaction suivante :

$$O_3 + O \rightarrow 2\,O_2 \quad \text{(R4)}$$

ou par photodissociation pour donner O et O_2. L'état énergétique des produits formés dépend de la longueur d'onde :

$$\begin{aligned} O_3 + h\nu\,(\lambda < 310\,\text{nm}) &\rightarrow O_2 + O(^1D) \quad \text{(R5)} \\ O_3 + h\nu\,(\lambda > 310\,\text{nm}) &\rightarrow O_2 + O(^3P) \quad \text{(R6)} \end{aligned}$$

où O(^{1}D) représente un état excité et O(^{3}P) un état fondamental de l'oxygène atomique.

La production photochimique d'ozone étant dépendante de l'intensité du rayonnement solaire, ce phénomène se produit principalement dans les régions équatoriales plutôt que dans les régions polaires. Et grâce à la circulation méridienne de Brewer-Dobson, l'ozone est transporté ensuite vers le pôle d'hiver-printemps où les plus fortes concentrations sont observées.

La production d'ozone dépend de l'intensité du flux solaire et aussi de la concentration en oxygène (exprimée en nombre de molécules par cm^3). Le flux solaire augmente

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

avec l'altitude alors que la concentration en oxygène décroît. Ces variations verticales contraires font que la production d'ozone passe par un maximum de concentration, localisé entre 15 et 25 km suivant la latitude.

Le cycle de Chapman constitue une base de la chimie de l'ozone mais il est incomplet. En effet, le mécanisme proposé par Chapman conduit à prédire des colonnes d'ozone trop élevées par rapport à celles observées. Il faut alors considérer des cycles catalytiques de destruction d'ozone mettant en jeu les hydroxydes OH et HO_2 [Bates et Nicolet, 1950], les oxydes d'azotes NO et NO_2 [Crutzen, 1970], les oxydes de chlore Cl et ClO [Stolarski et Cicerone, 1974] et de brome Br et BrO [McElroy et al., 1986], l'ensemble de ces réactions réconciliant théorie et observations. Ces cycles peuvent être représentés comme suit :

$$\begin{array}{r} O_3 + X \rightarrow XO + O_2 \\ XO + O \rightarrow X + O_2 \\ \hline \text{bilan} : O_3 + O \rightarrow 2\,O_2 \end{array}$$

où X = OH, NO, Cl ou Br

En 1985, Farman et al. [1985] mettent en évidence une diminution importante de l'ozone en Antarctique. Le même phénomène, mais de plus faible importance, est ensuite observé en Arctique [Bojkov et al., 1993]. Ce phénomène se reproduit tous les ans au printemps de chaque hémisphère. Les cycles catalytiques de destruction d'ozone expliquent en partie cette diminution de la concentration en ozone. Cependant la prise en compte d'autres phénomènes est nécessaire pour expliquer cette destruction massive de l'ozone dans ces régions [Solomon et al., 1986].

Durant les périodes très froides de l'hiver polaire, un vortex se forme, isolant les masses d'air froides situées à l'intérieur du vortex des masses d'air plus chaudes issues des moyennes latitudes. Les masses d'air ainsi isolées voient leur température diminuer de manière importante en l'absence de rayonnement solaire et d'échange, conduisant à la formation de nuages stratosphériques polaires (PSC : Polar Stratospheric Cloud). Ces nuages jouent un rôle important dans les processus de destruction de l'ozone car ils permettent la transformation des espèces réservoirs de chlore et de brome inactives sur l'ozone en espèces actives par le biais de réactions hétérogènes[1] à leur surface [Solomon et al., 1986]. La présence de ces chlore et brome dans la stratosphère est liée essentiellement à l'injection par l'homme de composés halogénés dans la troposphère (comme les CFC utilisés en réfrigération ou comme gaz propulseurs, comme les halons). Ces composés sont stables dans la troposphère avec une durée de vie de plusieurs dizaines d'années (40 à 100 ans), mais une fois dans la stratosphère ils sont photodissociés et des atomes de chlore et brome sont libérés. La dynamique du vortex polaire fait que le

[1] réaction chimique faisant intervenir des réactifs sous plusieurs phases (gazeuse, liquide, solide)

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

processus de destruction de l'ozone est concentré dans une zone géographique délimitée et par conséquent accroît l'intensité du phénomène.

Ozone troposphérique :

La présence d'ozone dans la troposphère résulte soit de transferts dynamiques de masse d'air de la stratosphère vers la troposphère (environ 10%), soit de réactions chimiques régies par le rayonnement UV mettant en jeu les oxydes d'azotes (NO_x) et les composés organiques volatils (COV). Ces gaz précurseurs sont des polluants primaires. Leur origine est essentiellement anthropique : ces gaz sont produits au cours de la combustion de combustibles fossiles, associés généralement aux industries et aux transports. Jusqu'à présent, les satellites fournissaient principalement des observations sur la colonne totale d'ozone, à partir de mesures UV-visible. Depuis peu, un nouvel instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) mis en orbite en octobre 2006 [Clerbaux et al., 2007] permet de mesurer la concentration d'ozone troposphérique en utilisant le domaine infrarouge pour sonder l'atmosphère par visée au nadir [Eremenko et al., 2008]. Selon les auteurs, les mesures précises des concentrations d'ozone troposphérique vont permettre d'améliorer les modèles de prévision de la qualité de l'air et aussi les modèles climatiques.

1.1.2.2 Les aérosols

Les différents types d'aérosols :

On définit en général les aérosols comme des fines particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère, de taille variant de quelques nanomètres à des centaines de micromètres, à l'exclusion des gouttelettes de nuages.

Contrairement à l'ozone, l'aérosol ne désigne pas une espèce précise mais une variété de particules différentes selon leur origine, leur forme ou leur composition chimique. Deux grandes catégories de particules s'appuyant sur leur mode de formations existent :

- les aérosols primaires sont émis directement dans l'atmosphère sous forme solide ou liquide. C'est le cas par exemple des aérosols minéraux arrachés des surfaces désertiques par le vent (émission par un processus de type mécanique).
- les aérosols secondaires sont quant à eux issus de processus de conversion des composés gazeux en particules. C'est le cas par exemple des aérosols de sulfate formés à partir du dioxyde de soufre (SO_2).

Le tableau 1.1 présente les différents types d'aérosols ainsi que les quantités émises dans l'atmosphère pour l'année 2000.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 1.1 – *Estimation des flux d'émission moyens annuels en masse de différents types d'aérosols pour l'année* 2000 *(adapté du rapport IPCC [*2001*])*

Origine	**Sources**	**Estimation de l'intensité (Tg/an)**
Naturelle 94%	*Primaires*	
	Poussières minérales	2150
	Sels de mer	3340
	Poussières volcaniques	33
	Débris biogéniques	56
	Carbone suie	5.7
	Secondaires	
	Sulfates biogéniques et volcaniques	78
	Aérosols organiques secondaires	16
	Nitrates	3.9
	Total	5682.6
Anthropique 6%	*Primaires*	
	Carbone suie	6.6
	Poussières industrielles	100
	Secondaires	
	Sulfates anthropiques	122
	Nitrates anthropiques	14.2
	Aérosols organiques	0.6
	Total	243.4
	Total	5926

Comme on peut le remarquer dans le tableau, la grande majorité des aérosols présents en masse dans l'atmosphère est d'origine naturelle (94%) contre 6% d'origine anthropique. Dans ce tableau, nous distinguons quatre catégories principales d'aérosols :

- **les poussières minérales**, ayant pour origine les zones arides et semi-arides de la planète. L'érosion par le vent est à l'origine de la production primaire de ces aérosols. Le désert du Sahara est la principale source de ces aérosols.
- **les aérosols marins** (ou sels de mer), produits à partir du frottement du vent sur la surface de l'océan.
- **les sulfates et les nitrates**, les aérosols sulfatés sont principalement produits par des

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

réactions chimiques à partir de gaz précurseurs comme le dioxyde de soufre. Les aérosols nitratés sont formés au cours de réactions chimiques des oxydes d'azote. La concentration de ces aérosols est très importante au-dessus des zones urbaines et industrielles.

– **les aérosols carbonés**, provenant de la combustion de biomasse, de la production d'énergie (fumées industrielles) ou du transport automobile. Ces aérosols sont composés de carbone suie et de carbone organique.

Les sulfates, les nitrates et les aérosols carbonés proviennent en majeure partie de sources humaines et sont en général de petite taille (inférieure au micromètre). En revanche, les poussières minérales et les sels marins sont en majorité d'origine naturelle et constitués de particules comparativement plus grosses.

Propriétés optiques des aérosols :

L'épaisseur optique des aérosols τ_A est définie comme l'intégration sur la verticale (de la surface au sommet de l'atmosphère, notée TOA (Top of Atmosphere)) du coefficient d'extinction, k_{ext}.

$$\tau_A = \int_0^{TOA} k_{ext}(z)dz \tag{1.6}$$

Le coefficient d'extinction des aérosols est une mesure de l'atténuation du rayonnement solaire due à la diffusion et à l'absorption par les particules, $k_{ext} = k_{dif} + k_{abs}$. Ce coefficient dépend de la longueur d'onde et de la distribution en taille des particules $n(r)$ et de leur composition chimique via l'indice de réfraction η. Si σ_{ext} est la section efficace d'extinction pour une particule individuelle

$$k_{ext} = \int_0^{\infty} \sigma_{ext}(\eta, r, \lambda)n(r)dr \tag{1.7}$$

La dépendance spectrale de l'épaisseur optique va nous apporter un renseignement sur la taille des particules via par exemple le coefficient d'Angström [1929] noté α. Si l'épaisseur optique des aérosols est mesurée à deux longueurs d'onde, nous avons :

$$\frac{\tau_A(\lambda_1)}{\tau_A(\lambda_2)} = \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2}\right)^{-\alpha} \tag{1.8}$$

Dans le cas de grosses particules, la dépendance spectrale de l'épaisseur optique est faible et par conséquent α sera petit (proche de 0). Pour les petites particules, la dépendance spectrale étant plus importante, α sera grand. Les aérosols ont en général un coefficient d'Angström compris entre 0 et 3.

L'albédo de diffusion simple est une mesure de la proportion de l'extinction des aérosols qui est uniquement due à un effet de diffusion. Il est égal au rapport du coefficient

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

de diffusion sur le coefficient d'extinction :

$$\omega_0(\lambda) = \frac{k_{dif}}{k_{ext}} \tag{1.9}$$

Pour un aérosol non-absorbant, $\omega_0 = 1$.

La distribution angulaire de la diffusion d'une particule de rayon r est donnée par la fonction de phase p(Θ,r) où Θ est l'angle de diffusion. Cette grandeur (divisée par 4π) représente la probabilité de diffusion du rayonnement incident dans le cône d'angle solide dΩ.

Cette fonction est normalisée de la façon suivante :

$$\int_{4\pi} p(\Omega) d\Omega = 4\pi \tag{1.10}$$

Le facteur d'asymétrie g est le moment de premier ordre dans la décomposition de la fonction de phase en moments de Legendre, et renseigne sur la symétrie avant/arrière de la diffusion de la particule.

Impact radiatif des aérosols :

Le bilan radiatif du système Terre - Atmosphère est la différence entre l'énergie entrante (solaire) et sortante (solaire et tellurique) du système. On parle de forçage radiatif lorsqu'un facteur extérieur au système climatique entraîne un déséquilibre de ce bilan radiatif. Le forçage radiatif est dit positif lorsqu'il y a réchauffement du climat, il est dit négatif en cas de refroidissement. Les particules d'aérosols influencent le bilan radiatif terrestre en diffusant et en absorbant le rayonnement solaire incident (effet direct), et en modifiant les propriétés radiatives et la durée de vie des nuages (effet indirect) [Forster et al., 2007]. La combinaison de l'effet direct et indirect des aérosols conduit à un forçage radiatif négatif, estimé en moyenne à -1.3 W.m^2 (figure 1.3). Toutefois, la quantification précise de l'effet des aérosols à l'échelle globale est difficile (niveaux de compréhension scientifique "bas et moyen") et de nombreuses incertitudes existent (barre d'erreur élevée), notamment pour l'effet indirect des aérosols. Des études sont encore nécessaires afin de caractériser les aérosols et les impacts climatiques qu'ils peuvent engendrer.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

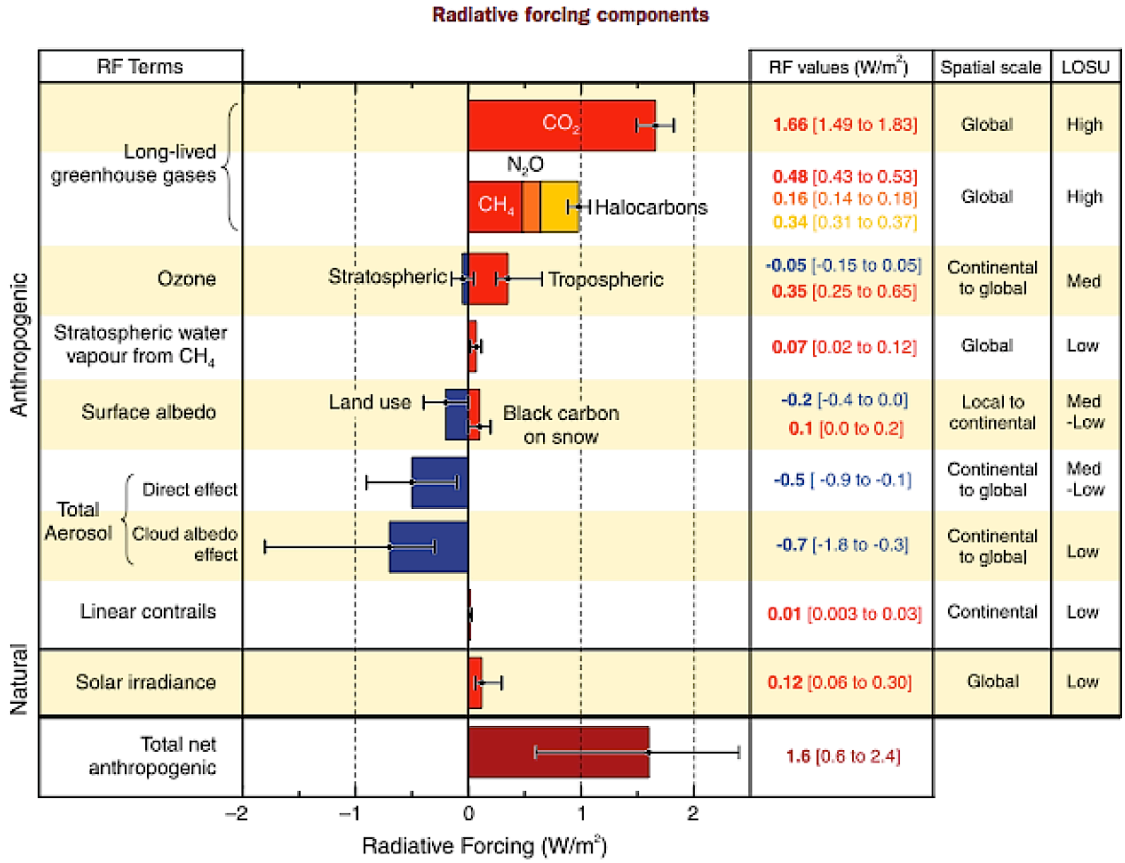

FIG. 1.3 – *Estimations des forçages radiatifs des différents composants de l'atmosphère et incertitudes associées. Le niveau de connaissance scientifique est indiqué dans la dernière colonne du tableau (LOSU = Level of Scientific Understanding) (rapport IPCC* 2007, *[Forster et al.,* 2007*]).*

1.2 Les instruments de mesures UV au sol

La station UV du LOA (50.61N ; 3.14E ; 70 m) est composée d'un spectroradiomètre double monochromateur de marque Jobin Yvon HD10, appelé "SPUV01" et d'un pyranomètre UVB du constructeur YES (Yankee Environmental System), qui effectuent tous deux des mesures quotidiennes de l'éclairement UV depuis 1997. En 2008, le laboratoire a fait l'acquisition de deux nouveaux instruments : un pyranomètre de marque Kipp et Zonen et un spectroradiomètre de marque Bentham (ces deux instruments ne seront pas utilisés dans la suite). Le SPUV01 a subi d'importantes améliorations grâce notamment aux travaux successifs d'Eric Pachart, Dominique Masserot et Mickaël Houët [Pachart, 1997; Masserot, 2001; Houët, 2003].

La station de Villars S^t Pancrace (44.90° N ; 6.65° E ; 1330 m) proche de Briançon, était, jusqu'en septembre 2005, équipée d'un spectroradiomètre de marque Bentham, opéré par l'équipe IRSA (Interaction Rayonnement Solaire Atmosphère) de l'Université Joseph Fourier de Grenoble et d'un autre spectroradiomètre de marque Jobin Yvon HD10 dénommé

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

"SPUV02" appartenant au CEMBREU (Centre Européen Médical et Bioclimatologique de Recherche et d'Enseignement Universitaire). Le SPUV02 ne fonctionne plus depuis fin 2005 et le Bentham a été déplacé début 2006 à l'Observatoire de Haute Provence (OHP).

Le spectroradiomètre est un instrument qui nécessite une maintenance régulière. Après avoir brièvement décrit l'instrument et la procédure d'étalonnage, nous présentons de manière succincte les différentes corrections apportées aux données spectrales (correction angulaire, correction du cache solaire et décalage en longueur d'onde).

1.2.1 Le spectroradiomètre UV

Les spectroradiomètres mesurent le spectre du rayonnement solaire en fonction de la longueur d'onde. Le SPUV01 et SPUV02 sont régulés en température, 28°C pour le SPUV01 (climat océanique) et 20° C pour le SPUV02 (climat alpin). Ils possèdent deux réseaux holographiques concaves identiques (1200 traits/mm et 100 mm de focale) qui dispersent la lumière en fonction de la longueur d'onde. Cette association permet de filtrer en grande partie la lumière parasite à l'intérieur du caisson, puisque le rayonnement dispersé par le premier réseau est transmis au second réseau par une fente intermédiaire. Ces instruments effectuent des mesures d'éclairement sur un plan horizontal. Pour cela,

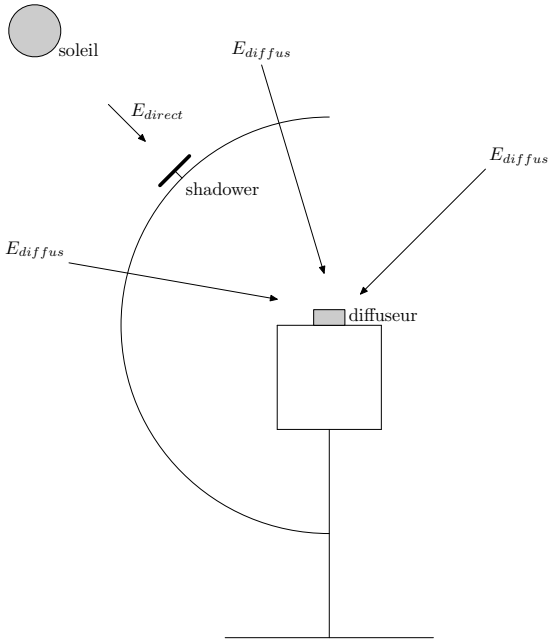

FIG. 1.4 – *Schéma présentant le diffuseur d'un spectroradiomètre avec son shadower, permettant ainsi une mesure de l'éclairement diffus.*

un diffuseur placé devant la fente d'entrée du double monochromateur va intégrer le rayonnement issu de toutes les directions du demi-espace supérieur (Figure 1.4). Des mesures d'éclairements global et diffus sont réalisées de 280 à 450 nm avec un pas de 0.5 nm, du lever au coucher du soleil. L'éclairement diffus est obtenu grâce à un disque occultant

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

le rayonnement direct issu du soleil (disque appelé "shadower"). Ce disque est placé sur un bras recourbé en arc de cercle qui vient se placer automatiquement devant le soleil 30 s avant le début de mesure d'un spectre diffus. La position du disque sur le bras doit être réglée manuellement afin que le diffuseur soit toujours correctement caché du soleil (Figure 1.4). L'installation des "shadower", en novembre 2002 pour le SPUV01 et juillet 2003 pour le SPUV02 permet d'obtenir une estimation de l'éclairement direct (provenant de la direction du soleil), par différence entre l'éclairement global et l'éclairement diffus, en effet :

$$E_{global}(\lambda) = E_{direct}(\lambda) + E_{diffus}(\lambda), \tag{1.11}$$

où les éclairements directs et diffus s'écrivent :

$$E_{direct}(\lambda, \theta_s) = E_0(\lambda) \cos\theta_s \tag{1.12}$$

$$E_{diffus}(\lambda) = \int_{\varphi=0}^{2\pi} \int_{\theta=0}^{\pi/2} L_{diffus}(\theta, \varphi, \lambda) \cos\theta \, \sin\theta \, d\theta d\varphi \tag{1.13}$$

avec :

- $E_0(\lambda)$ l'éclairement solaire direct arrivant sur une surface plane perpendiculaire à la direction du soleil,

- θ_s l'angle solaire zénithal,

- $L_{diffus}(\theta, \varphi, \lambda)$ la luminance descendante diffuse venant d'une direction repérée par l'angle zénithal θ et l'azimut φ.

Le SPUV01 effectue des mesures tous les quarts d'heure, la durée d'un balayage entier étant d'environ 6 minutes. Les spectres globaux sont mesurés aux heures entières et aux demi-heures ; un quart d'heure avant et un quart d'heure après l'heure entière, l'instrument effectue une mesure d'éclairement diffus. La moyenne de ces deux spectres diffus est supposée être la mesure du diffus à l'heure du global, de manière à pouvoir en déduire le spectre direct. Le SPUV02 effectue des mesures toutes les dix minutes, alternativement une mesure du global et du diffus.

Une des caractéristiques importante de ce type d'instrument, qui va influencer la qualité des mesures, est la fonction fente. La fonction fente d'un spectroradiomètre caractérise l'élargissement instrumental d'une radiation monochromatique. Elle est principalement caractérisée par la largeur à mi-hauteur (FWHM : Full Width at Half Maximum) de la raie monochromatique mesurée. La largeur de la fonction fente du SPUV01 a été mesurée en 2002 à deux longueurs d'onde à l'aide d'un laser UV par B. Pinchemel du laboratoire

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

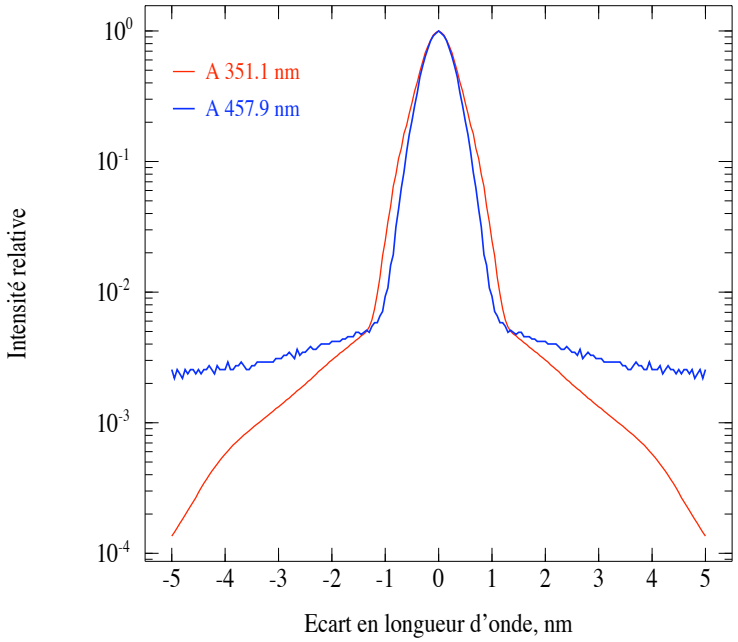

FIG. 1.5 – *Comparaison des fonctions fentes mesurées à* 351.1 *nm et* 457.9 *nm pour le spectroradiomètre SPUV*01.

PHLAM (Laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules de Lille). La figure 1.5 présente les mesures obtenues à 351.1 et 457.9 nm, la FWHM est égale à 0.7 nm à 457.9 nm et à 0.75 nm à 351.1 nm. Etant donné le peu de différence entre les deux fonctions, nous considérons la fonction fente mesurée à 351.1 nm applicable à tout le spectre de mesure. Cette valeur a été utilisée dans le traitement de nos mesures jusque février 2007, date à laquelle les réseaux ont été changés.

La figure 1.6 présente un exemple de spectres mesurés par le SPUV01 durant la journée du 17 juillet 2006 ; le spectre global mesuré à 12h00 est en noir, le spectre diffus obtenu à partir de la moyenne des spectre diffus mesurés à 11h45 et 12h15 en rose et le spectre direct obtenu par différence entre le spectre global et le spectre diffus, en rouge. Nous constatons qu'un spectre mesuré possède une structure assez complexe ; cette structure est due à la structure du spectre solaire hors atmosphère ainsi qu'à l'absorption par les gaz atmosphériques. Nous observons la présence de grands pics qui sont les raies de Fraunhoffer à 358.3, 393.5, 396.9 et 431.0 nm.
Avant d'obtenir des résultats précis et fiables, il faut passer par quelques étapes de traitement. Tout d'abord, les données brutes fournies par l'instrument sont des comptes numériques par seconde (Cts/s) qu'il faut convertir en puissance spectrale. Cette étape importante dans la qualité des mesures est la procédure d'étalonnage.

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

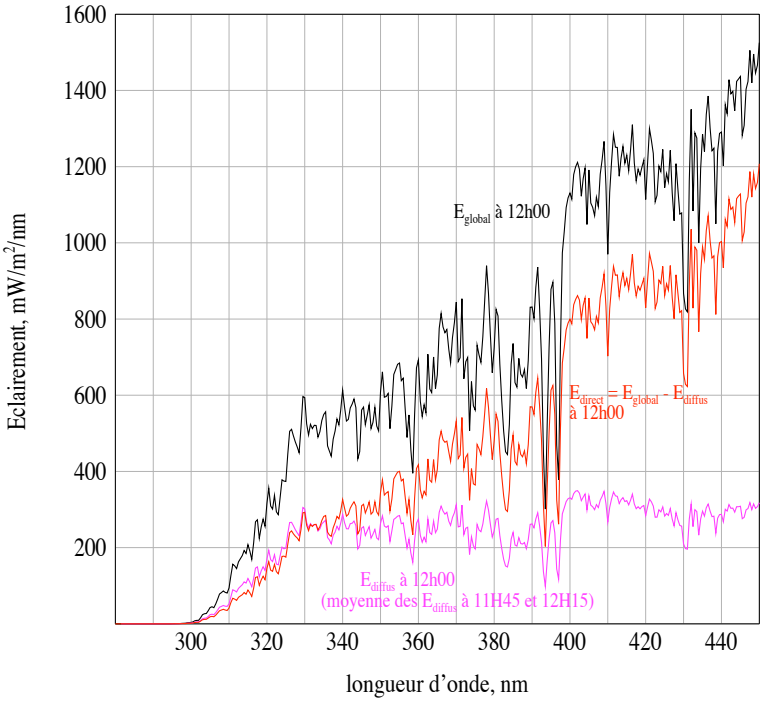

FIG. 1.6 – *Spectres mesurés par le spectroradiomètre SPUV*01 *le* 17 *juillet* 2006, *le spectre global en noir mesuré à* 12*h*00, *le spectre diffus en rose obtenu à partir de la moyenne des spectres diffus mesurés à* 11*h*45 *et* 12*h*15 *et le spectre direct en rouge obtenu par différence entre le spectre global et le spectre diffus.*

L'étalonnage :

L'étalonnage s'effectue dans une salle noire environ tous les trois mois. Ce travail nécessite l'utilisation d'une source étalon, dont les éclairements spectraux, $E_{ref}(\lambda)$, sont fournis par le constructeur de la lampe. L'éclairement de la lampe est mesuré avec le spectroradiomètre et à chaque éclairement de référence va correspondre un nombre de comptes numériques $CN_{etalon}(\lambda)$.

Le coefficient d'étalonnage $C(\lambda)$ de l'instrument à la longueur d'onde λ s'écrit :

$$C(\lambda) = \frac{E_{ref}(\lambda)}{CN_{etalon}(\lambda) - CN_p(\lambda)}, \tag{1.14}$$

où $CN_p(\lambda)$ est la lumière parasite due aux réflexions éventuelles de la lumière dans la pièce (qui tient compte du bruit instrumental). Elle est mesurée au cours de l'étalonnage. L'éclairement solaire mesuré s'écrit alors :

$$E(\lambda) = (CN_{solaire}(\lambda) - CN_b(\lambda)) \times C(\lambda) \tag{1.15}$$

où $CN_{solaire}(\lambda)$ est le nombre de comptes numériques correspondant à la mesure et $CN_b(\lambda)$ est le bruit instrumental.

Au laboratoire, nous disposons de deux lampes NIST (National Institute of Standards and Technology) et d'une lampe NPL (National Physical Laboratory) pour effectuer l'éta-

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

lonnage.

Une fois les données brutes converties en éclairement, il est nécessaire de leur appliquer des corrections telles que celle de l'erreur cosinus, la correction du shadower et le recalage en longueur d'onde.

L'erreur cosinus **:**
Dans le cas idéal, lorsqu'une luminance rencontre une surface plane, l'éclairement reçu par cette surface varie en fonction du cosinus de l'angle d'incidence de cette luminance. Dans la réalité, les flux incidents provenant de toutes les directions du demi-espace supérieur vont être plus ou moins bien restitués par le diffuseur (figure 1.4) de notre spectroradiomètre. A cause de sa géométrie, celui-ci a du mal à intégrer les rayonnements arrivant à des grands angles zénithaux. Ce phénomène est appelé erreur cosinus et, pour le corriger, la réponse angulaire de l'instrument doit être caractérisée afin de mesurer les écarts à la loi cosinus.
La réponse en cosinus du SPUV01 a été mesurée à l'IRSA en 2001, permettant d'appliquer à tous les spectres une correction angulaire [Houët, 2003].

La correction du shadower **:**
La mise en place d'un shadower permet les mesures d'éclairements diffus comme précisé ci-dessus. En raison de ses dimensions, ce disque couvre une plus grande surface que celle de la surface apparente du soleil, empêchant le rayonnement diffus issu des directions proches du soleil d'atteindre le diffuseur. Une erreur est donc commise sur la mesure du rayonnement diffus. L'utilisation du code de transfert radiatif "STREAMER" [Key, 1999] a permis d'évaluer la contribution des luminances comprises dans une petite zone autour de l'emplacement du soleil, au maximum d'intensité, et d'appliquer une correction aux spectres diffus mesurés [Houët, 2003]. Les paramètres pris en compte à l'entrée du code sont l'épaisseur optique des aérosols, l'albédo de diffusion simple des aérosols, l'angle solaire zénithal et les profils verticaux de température et de pression. Trois modèles d'aérosols de type urbains différents ont été étudiés. La correction à apporter est estimée être inférieure à 1% selon [Houët, 2003] si la turbidité de l'atmosphère n'est pas trop élevée.

Le décalage en longueur d'onde **:**
Une régulation thermique permet de maintenir la température du caisson contenant le double monochromateur à température constante. Toutefois, il se produit occasionnellement des dysfonctionnements entraînant des variations de température. Une variation de température de 1°C à l'intérieur du spectroradiomètre engendre un décalage en longueur d'onde de 0.1 nm [Pachart, 1997]. Ce décalage peut avoir des effets très importants surtout

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

dans les courtes longueurs d'onde ; selon Slaper et al. [1995] un décalage de l'ordre de 0.03 nm dans la région des UVB va engendrer une erreur de 1% sur l'éclairement intégré UVB. Afin de corriger ce décalage, une première analyse est effectuée durant les mesures quotidiennes en s'appuyant sur le positionnement des raies de Fraunhoffer ; le logiciel d'acquisition des mesures permet alors un premier recalage approximatif. Ensuite, une correction est effectuée lors du traitement des données avec un programme de recalage conçu au LOA [Houët, 2003]. Nous avons vu précédemment sur la figure 1.6 que le spectre du rayonnement solaire UV possède une structure complexe. Cette structure est dépendante de la fonction fente de l'instrument. Pour déterminer précisément la position des raies spectrales, il est nécessaire de construire un spectre de référence à la résolution de l'instrument à partir d'un spectre solaire convolué par la fonction fente de l'instrument [Slaper et al., 1995]. Pour recaler les spectres du SPUV01, le spectre de référence a été établi à partir du spectre haute résolution KP320at3 construit par H. Slaper pour son programme SHICrivm, convolué par la fonction fente de l'instrument (FWHM = 0.75 nm, figure 1.5). Selon Houët [2003], les décalages en longueur d'onde sont corrigés avec une précision de l'ordre de 0.03 nm.

Les incertitudes de mesures **:**

Les incertitudes sur les mesures d'un spectroradiomètre [Bernhard et Seckmeyer, 1999] ont pour origine les incertitudes liées à l'étalonnage :

- distance entre la lampe et l'instrument,
- inclinaison de la lampe,
- courant de l'alimentation,
- bruit du spectroradiomètre,
- incertitudes sur les éclairements de référence de la lampe.

et les incertitudes liées à la mesure :

- horizontalité du diffuseur,
- bruit du spectroradiomètre,
- erreur de la correction angulaire du diffuseur,
- décalage en longueur d'onde.

Les estimations de toutes ces incertitudes sont détaillées dans [Houët, 2003].

En moyenne avec un niveau de confiance de 95%, l'incertitude sur l'éclairement mesuré est estimée à environ 5% aux environs de 400 nm et 7% aux environs de 320 nm lorsque le signal est élevé (par exemple quand $\theta_s = 40^\circ$). Lorsque le signal est faible ($\theta_s = 70^\circ$), les incertitudes sont d'environ 7% et 9% à 400 et 320 nm respectivement.

La dernière évaluation de l'instrument a été effectuée dans le cadre du projet QASUME

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

(Quality Assurance of Spectral Ultraviolet Measurements in Europe) en Septembre 2004 [Gröbner et al., 2006]. Cette évaluation s'est révélée très satisfaisante.

1.2.2 Le radiomètre large-bande

Le radiomètre UV-B permet d'obtenir des mesures de l'efficacité du rayonnement UV pour l'érythème. Cet instrument est capable de mesurer l'éclairement UV solaire intégré sur une bande spectrale allant de 270 à 352 nm. Sa fonction de transmission a une forme similaire au spectre d'action erythémateuse de Diffey (tracé sur la figure 1.2). Un de ses avantages est sa grande stabilité ; la sensibilité de cet instrument est très stable dans le temps, mieux qu'un spectroradiomètre (qui nécessite des étalonnages réguliers). Il fournit des mesures toutes les trois minutes. Cet instrument a récemment été étalonné, en Août 2006 par le PMOD (Physikalisch-Meteorologisches Observatorium Davos) à Davos en Suisse. Le radiomètre fournit une tension électrique dont la conversion en éclairement s'effectue en utilisant des coefficients d'étalonnage dépendant de l'angle solaire zénithal et de la quantité d'ozone.

La figure 1.7 présente différents instruments présents sur la station-toit du LOA. Parmi ces instruments, nous avons les deux spectroradiomètres UV ainsi qu'un photomètre solaire appartenant au réseau AERONET/PHOTONS.

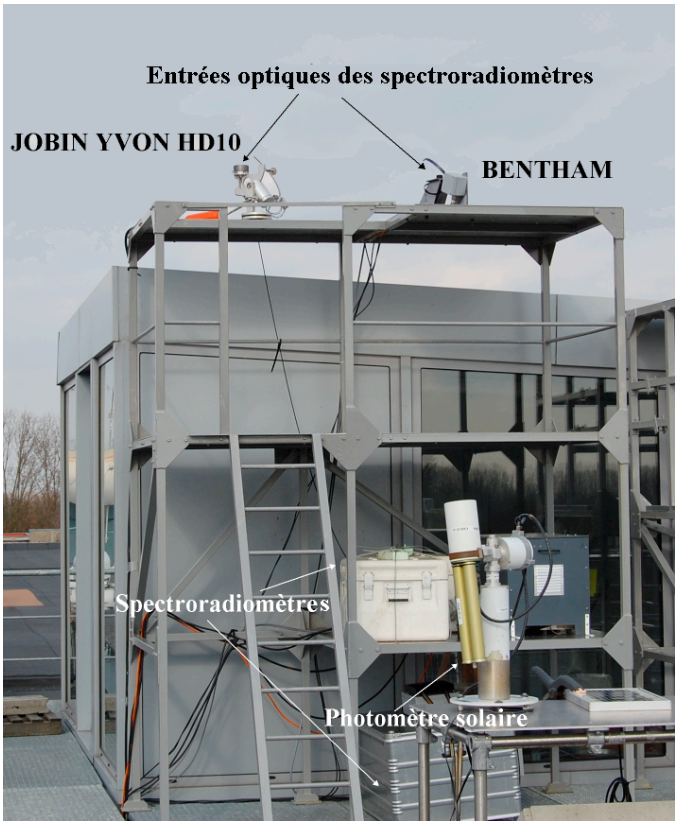

FIG. 1.7 – *Présentation générale des instruments situés sur la station-toit du LOA.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

1.3 Le réseau photométrique AERONET/PHOTONS

La station de mesures située sur le toit du LOA est également équipée de photomètres solaires appartenant au Service d'Observation PHOTONS (PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire). Ce Service d'Observation est la composante française du réseau mondial "AERosol RObotic NETwork" (AERONET) [Holben et al., 1998] qui existe depuis le milieu des années 1990. Le photomètre solaire est un instrument permettant la restitution des propriétés optiques et microphysiques des aérosols, intégrées verticalement sur la colonne atmosphérique. Les mesures photométriques ne sont possibles que de jour lorsque le soleil est visible et en absence de nuages. Les photomètres suivent deux protocoles différents de mesure ; les mesures dites "sun" permettent de déterminer l'épaisseur optique d'extinction des aérosols grâce à une visée directe du soleil. Ces mesures sont faites à plusieurs longueurs d'onde allant de 340 à 1020 nm. Les longueurs d'onde qui nous intéressent dans ce travail sont 340, 380 et 440 nm. L'épaisseur optique des aérosols est obtenue avec une précision comprise entre 0.01 et 0.02 selon l'angle solaire zénithal et la longueur d'onde d'après Holben et al. [1998]. A ces mesures s'ajoutent les mesures dites "sky" : ces mesures de la luminance du ciel sont faites dans l'almucantar (angle zénithal de visée constant égal à l'un angle solaire zénithal. Cela permet d'obtenir la distribution angulaire de la luminance du ciel. L'application d'algorithmes d'inversion [Dubovik et King, 2000] permet ensuite d'obtenir la distribution en taille des aérosols, leur fonction de phase et leur albédo de diffusion simple. Ce dernier est obtenu avec une précision comprise entre 0.03 et 0.05 selon le type d'aérosol, l'épaisseur optique des aérosols et l'angle solaire zénithal. Les données de ce réseau sont publiques, accessibles en temps quasi réel, et très largement utilisées notamment pour la validation des observations satellitaires d'aérosols.

1.4 L'observation satellitaire du rayonnement UV : l'instrument OMI

OMI est un instrument effectuant des mesures de rayonnement réfléchi par la terre et l'atmosphère dans l'UV et le visible [Levelt et al., 2006]. Il est le fruit d'une collaboration entre une équipe Hollandaise (NIVR : Netherlands Agency for Aerospace Programmes) et celle des Finlandais du FMI (Finnish Meteorological Institute). OMI a été lancé le 15 juillet 2004 à bord de la plateforme AURA qui a pris sa place au sein du train de satellites A-Train ("Afternoon train"). Cette constellation de six satellites, OCO (2009), AQUA (2002), CLOUDSAT (2006), CALIPSO (2006), PARASOL (2004), AURA (2004) présentés sur la figure 1.8, est une première mondiale, entièrement dévolue à l'étude de l'atmosphère

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

terrestre et à la compréhension de l'impact des activités humaines sur le climat. Chaque satellite a sa propre mission, complémentaire des autres.

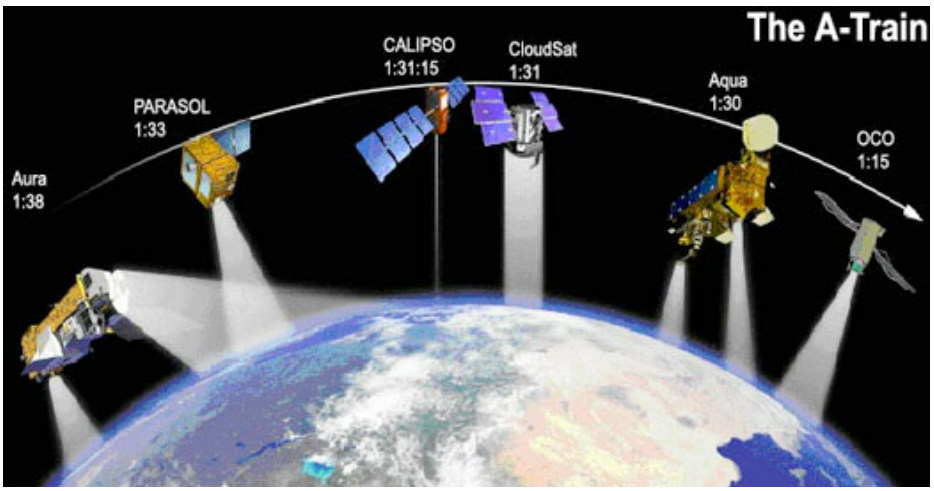

FIG. 1.8 – *Constellation de 6 satellites A-Train (OCO, AQUA, CLOUDSAT/CALIPSO, PARASOL et AURA) en orbite, survolant l'équateur à* 13*h*30 *(heure locale). OMI est situé à bord de la plateforme AURA.*

OMI comprend deux spectromètres couvrant une gamme spectrale allant de 270 à 500 nm. L'un d'eux effectue des mesures dans l'UV de 270 à 365 nm avec une résolution de 0.45 nm, l'autre couvre le domaine du visible de 365 à 500 nm avec une résolution de 0.63 nm. Sa fauchée est de 2600 km, permettant une couverture quasiment globale de la Terre. La résolution spatiale de l'instrument est de $13 \times 24\,\mathrm{km}^2$ au nadir et augmente le long de la fauchée jusqu'à atteindre $13 \times 128\,\mathrm{km}^2$ [Levelt et al., 2006]. Cette augmentation n'est pas linéaire et la majorité des pixels ont une taille inférieure à $13 \times 50\,\mathrm{km}^2$ comme le montre la figure 1.9 [Levelt et al., 2002]. Son passage à l'équateur est à 13h38 heure locale.

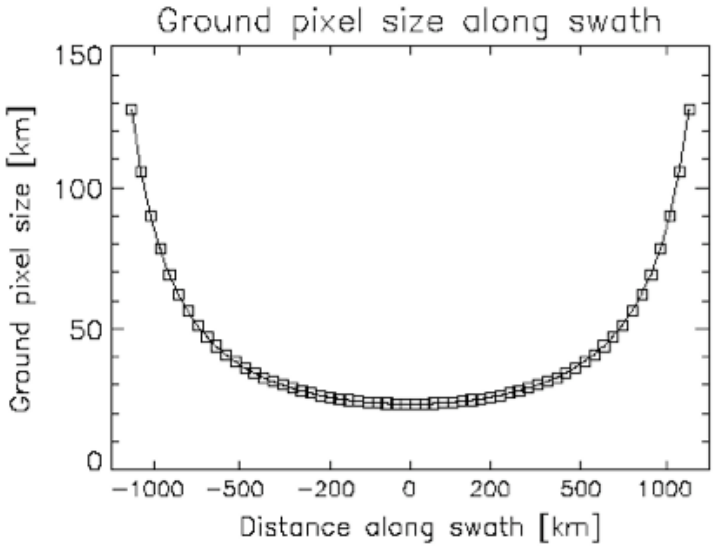

FIG. 1.9 – *Taille du pixel OMI en fonction de sa position dans la fauchée [Levelt et al.,* 2002*].*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

OMI poursuit les mesures de la quantité totale d'ozone initiées avec les instruments TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) qui, depuis 1978, étaient situés à bord de différentes plateformes satellitaires (Nimbus 7 (1978 à 1993), Meteor 3 (1991 à 1994), ADEOS (1996 à 1997) et Earth- Probe (1996 à 2005)) [McPeters et al., 1998]. OMI fournit également des estimations de l'éclairement UV à la surface, à quatre longueurs d'onde (305, 310, 324 et 380 nm) et de l'UV erythémateux [Tanskanen et al., 2006]. De plus, ses mesures permettent de retrouver les propriétés optiques des aérosols telles les épaisseurs optiques d'absorption, d'extinction et par conséquent l'albédo de diffusion simple [Torres et al., 2007].

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Chapitre 2

Inversion et utilisation des mesures spectrales depuis le sol

Comme nous l'avons évoqué dans l'introduction, plusieurs paramètres atmosphériques influent sur le rayonnement UV à la surface terrestre. Une analyse des mesures de ce rayonnement permet de retrouver des informations sur certains d'entre eux comme l'ozone ou encore les aérosols. Nous présentons dans ce chapitre, les analyses faites avec les mesures du spectroradiomètre à VdA.

Dans un premier temps, nous avons continué le travail initié par Houët [2003] sur la restitution de la quantité d'ozone. Nous décrivons succinctement la méthode d'inversion puis son application aux mesures spectrales sur une période de huit années.

Depuis 2003, la mise en place d'un shadower a permis d'entreprendre la caractérisation des aérosols à VdA. La méthode d'inversion pour retrouver l'épaisseur optique des aérosols suivie par la validation des épaisseurs optiques obtenues à 340, 380 et 440 nm à VdA avec les mesures photométriques AERONET/PHOTONS correspondantes font l'objet de la deuxième partie de ce chapitre. Dans la troisième partie, nous nous sommes intéressés à la détermination de l'albédo de diffusion simple des aérosols à partir de nos mesures spectrales.

Le LOA a participé récemment à deux campagnes de mesures de pollution photochimique. Ainsi, la dernière partie de ce chapitre est consacrée à une autre utilisation des mesures spectrales, qui est la détermination de fréquences de photolyses de certains gaz. Mais avant toute chose, en première partie de ce chapitre, nous présentons un outil d'étude et d'analyse du rayonnement UV indispensable qui est la modélisation d'un spectre UV.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.1 Modélisation d'un spectre UV

L'utilisation d'un code de transfert radiatif modélisant des éclairements solaires spectraux au sol va nous permettre à partir des mesures d'estimer certains paramètres influents sur le rayonnement UV ainsi que les fréquences de photolyse de certaines molécules. Parmi ces paramètres, nous pouvons citer l'ozone et l'albédo de diffusion simple des aérosols étudiés dans la suite de ce chapitre. Nous avons choisi d'utiliser le modèle de transfert radiatif DISORT (DIScrete Ordinates Radiative Transfer) développé par Stamnes et al. [1988]. Ce modèle qui résout l'équation de transfert radiatif par la méthode des ordonnées discrètes, permet de déterminer les transmittances globales et diffuses de l'atmosphère.

Dans un premier temps, nous présentons les paramètres d'entrée du code permettant de simuler des transmittances UV, puis la manière dont nous obtenons, à partir de ces transmittances simulées, une estimation des éclairements à la surface comparables aux mesures du spectroradiomètre.

L'atmosphère est divisée en plusieurs couches homogènes. Pour chacune de ces couches, il faut connaître les épaisseurs optiques et les fonctions de phase de chaque constituant présent (aérosols, molécules). Les contributions absorbantes ou diffusantes de chaque constituant à l'épaisseur optique d'une couche peuvent s'exprimer à partir de sa concentration, des sections efficaces d'absorption et de diffusion et de l'épaisseur de la couche. Un programme mis au point par Pucaï Wang [Wang, 1995], et ayant fait l'objet d'améliorations depuis, permet à partir des paramètres décrits ci-dessous de préciser au mieux chacune des épaisseurs optiques et fonctions de phase pour chaque longueur d'onde et pour chaque couche.

2.1.1 Paramètres d'entrée du code de transfert radiatif

Dans le domaine de longueurs d'onde qui nous intéresse (280 à 450 nm), l'ozone est un facteur important qui va atténuer le rayonnement solaire arrivant à la surface pour les longueurs d'onde inférieures à 330 nm. Pour tenir compte de ce gaz absorbant, nous avons besoin de sa colonne totale dans l'atmosphère, généralement exprimée en Dobson (DU) et des sections efficaces d'absorption. Enfin la répartition dans chacune des couches de la quantité d'ozone sera définie par le profil standard à moyenne latitude, différent selon les saisons.

Au delà de 330 nm, c'est la diffusion moléculaire et les aérosols qui, en absence de couverture nuageuse, deviennent les principaux paramètres influant sur le rayonnement au sol. L'épaisseur optique moléculaire dépend des profils de pression et température que nous choisissons standards [McClatchey et al., 1971] et différents selon la saison.

La prise en compte des aérosols dans la simulation passe par différents facteurs dont

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

l'épaisseur optique des aérosols, le coefficient d'Angström, l'albédo de diffusion simple et la fonction de phase. Dans la couche limite, pour les valeurs d'épaisseurs optiques sur tout le spectre, nous fournissons à l'entrée du code l'épaisseur optique des aérosols à 440 nm ainsi que le coefficient d'Angström déterminé à partir de cette longueur d'onde. Nous avons choisi 440 nm car nous disposons des produits déduits des mesures photométriques AERONET/PHOTONS à cette longueur d'onde. Pour la troposphère, l'épaisseur optique est calculée suivant la loi d'Angström (chapitre 1 Eq 1.8) à partir de l'épaisseur optique des aérosols à 550 nm égale à 0.025. Pour la stratosphère jusque 30 km d'altitude, l'épaisseur optique est calculée à partir de l'épaisseur optique à 525 nm, choisie égale à 0.003 [Lenoble et Brogniez, 1984]. Dans les couches supérieures, on suppose qu'il n'y a plus d'aérosols. En ce qui concerne la fonction de phase, nous utilisons une fonction de phase approchée [Henyey et Greenstein, 1941] que nous caractérisons par le facteur d'asymétrie g (chapitre 1 partie 1.1.2.2).

Un autre gaz absorbant présent dans le domaine spectral qui nous intéresse est le dioxyde d'azote. Toutefois, son impact est si faible sur le résultat final (moins de 1% [Houët, 2003]) que l'on considère un profil moyen obtenu à partir des mesures de l'instrument POAM II (Polar Ozone and Aerosol Measurement II).

Les derniers paramètres à prendre en compte sont l'altitude du site et l'albédo de sol. Ce paramètre compris entre 0 et 1 n'est pas facilement estimable car l'environnement des mesures n'est jamais uniforme. Pour le site de VdA, nous prenons la valeur 0.02. Nous nous sommes basés sur les albédos de sol mesurés par Feister et Grewe [1995] qui fournissent des valeurs pour des surfaces de différents types comme de la pelouse, de l'herbe, du chaume et du béton. Pour les trois premières surfaces, l'albédo de sol est faible avec une valeur inférieure à 0.05 entre 290 et 450 nm. En revanche pour le béton cette valeur peut atteindre 0.2 à 450 nm.

Enfin un dernier paramètre à prendre en compte est l'angle solaire zénithal.

En résumé, les paramètres utilisés dans la détermination de nos transmittances sont :

- La quantité et le profil vertical de l'ozone dans l'atmosphère,
- La quantité et le profil vertical du dioxyde d'azote dans l'atmosphère,
- Les sections efficaces d'absorption de l'ozone et du dioxyde d'azote,
- L'épaisseur optique totale des aérosols à 440 nm,
- Le coefficient d'Angström,
- L'albédo de diffusion simple des aérosols,
- Le facteur d'asymétrie des aérosols,
- L'albédo de surface,
- L'altitude du site,
- Les profils de pression atmosphérique et température,

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

– L'angle solaire zénithal.

Il y a également la possibilité d'inclure des nuages, dans notre cas cela n'a pas été nécessaire car nous avons considéré uniquement la modélisation par ciel clair quelles que soient les conditions météorologiques durant les mesures.

2.1.2 Simulation des éclairements

La précision avec laquelle les éclairements au sol seront déterminés dépend de la précision avec laquelle les transmittances sont calculées et aussi de la précision de la mesure du spectre hors atmosphère (ET). Nous disposons de différents spectres ET, qui ont été obtenus à partir de la mesure d'instruments tels que SUSIM, SOLSPEC, ces instruments ayant des résolutions différentes. La qualité de nos spectres simulés sera fonction du choix de ce spectre ET.

2.1.2.1 Méthode

L'éclairement spectral global au niveau du sol est égal au flux extra-terrestre multiplié par le cosinus de l'angle solaire zénithal, atténué par l'atmosphère (caractérisée par sa transmittance).

$$Eglobal(\lambda) = E_{ET}(\lambda) \times cos(\theta_s) \times (C_{TS}) \times tr(\lambda) \tag{2.1}$$

avec :

– E_{ET}, l'éclairement solaire hors atmosphère,
– C_{TS}, un facteur tenant compte de la variation saisonnière de la distance Terre-Soleil, les spectres ET que nous utilisons étant fournis pour une distance moyenne (= 1 ua) qu'il est nécessaire de corriger,
– tr, la transmittance atmosphérique simulée,
– θ_s, l'angle solaire zénithal.

Pour que le spectre modélisé soit comparable de manière précise à la mesure, il faut tenir compte de la fonction fente de l'instrument dans notre calcul.

En effet, le spectroradiomètre mesure le spectre solaire modulé par la transmittance de l'atmosphère, convolué par sa fonction d'appareil, ce qui implique que l'éclairement spectral global équivalent à une mesure de l'instrument $Esimule(\lambda)$ s'écrit selon la formule :

$$Esimule(\lambda) = Eglobal(\lambda) * F \tag{2.2}$$

avec :

– * symbole de convolution,
– F, la fonction fente du spectroradiomètre.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Telle que l'équation est écrite, il faut déterminer des transmissions pour chaque longueur d'onde, les multiplier par la valeur du spectre ET à la même longueur d'onde puis les convoluer par la fonction d'appareil. La mesure de la fonction fente de notre spectroradiomètre a été réalisée sur une largeur spectrale de 10 nm (5 nm avant et après le maximum d'intensité de la raie d'émission) avec un pas d'échantillonage de 0.05 nm. Par conséquent, pour obtenir une valeur d'éclairement à une longueur d'onde, nous devons simuler des transmissions atmosphériques sur 10 nanomètres autour de cette longueur d'onde avec un pas d'échantillonnage très serré. Houët [2003] a montré que simuler des transmittances tous les 0.5 nm et ensuite effectuer une interpolation de ces transmittances, par exemple avec un algorithme de type "cubic spline", pour amener le pas d'échantillonnage à 0.05 nm fournissait des transmittances présentant de très faibles écarts avec des transmittances simulées directement avec ce pas d'échantillonnage. Cette interpolation est tout de même à l'origine d'une déstructuration des transmittances spectrales pour des longueurs d'onde inférieures à 340 nm à cause de la forte absorption de l'ozone.

Une autre manière de faire, évoquée dans la thèse de Pachart [1997], consiste dans un premier temps à convoluer le spectre ET par la fonction fente de l'instrument afin d'obtenir un spectre à la résolution de l'instrument. Ce spectre ET est ainsi valable quelles que soient les conditions de simulation. Ensuite, on module le spectre obtenu par la transmittance de l'atmosphère. Cette méthode présente l'avantage de ne pas nécessiter le calcul des transmittances avec un pas très serré sur un intervalle spectral mais uniquement celle à la longueur d'onde qui nous intéresse. L'éclairement simulé s'écrit alors :

$$Esimule(\lambda) = \left(E_{ET}(\lambda) * F \right) \times cos(\theta_s) \times (C_{TS}) \times tr(\lambda) \tag{2.3}$$

La figure 2.1 illustre le rapport entre deux spectres simulés à partir des deux expressions 2.2 et 2.3 avec la fonction fente du spectroradiomètre.

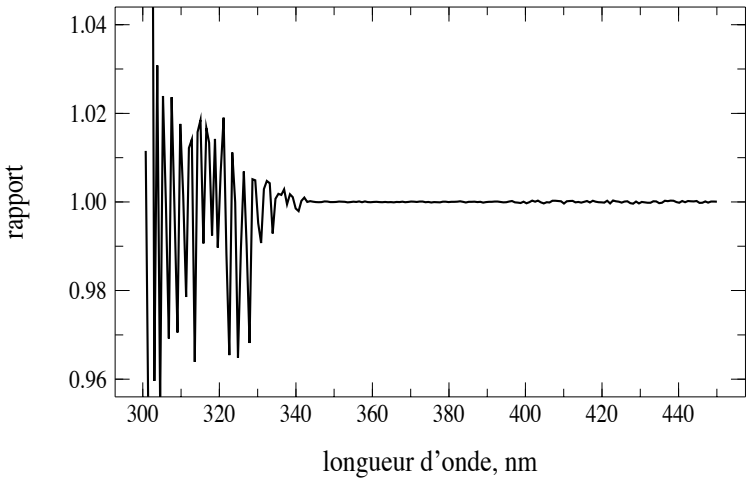

FIG. 2.1 – *Rapport entre les éclairements obtenus à partir de l'équation 2.2 et de l'équation 2.3.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

On constate que l'inconvénient de la seconde méthode (Eq 2.3) se situe aux courtes longueurs d'onde ($\lambda < 340$ nm). Dans cette région spectrale, l'absorption par l'ozone est forte et la dynamique du spectre au sol est beaucoup plus importante que celle du spectre hors atmosphère. La prise en compte de la fonction fente de l'instrument conduira donc à des résultats différents suivant que l'on convolue le spectre au sol ou hors atmosphère. En revanche, au-dessus de 340 nm l'écart entre les deux méthodes est mieux que 2.10^{-4}. Etant donné le très bon accord observé entre les deux méthodes et un temps de calcul plus faible pour la seconde méthode (Eq 2.3), nous avons choisi d'appliquer cette méthode dans la suite de ce travail.

2.1.2.2 Choix du spectre hors atmosphère

Nous disposons de plusieurs spectres ET et le choix entre ces spectres est très difficile en raison des propriétés différentes qu'ils présentent comme leur résolution et aussi leur radiométrie [Dobber et al., 2008b]. Un spectre très utilisé dans la communauté UV est le spectre Atlas3 [Krotkov et al., 1998; Cede et al., 2004; Bais et al., 2005] qui a été mesuré avec l'instrument SUSIM en 1994 et qui possède une résolution spectrale élevée de 0.15 nm [Floyd et al., 2003]. Ce spectre est limité aux longueurs d'onde inférieures à 408 nm ; or nous désirons des spectres simulés jusque 450 nm. Pour cette raison, nous en avons retenu deux autres :

1. Le spectre fourni par Thuillier et al. [2003], appelé dans la suite "spectre de Thuillier", couvre les longueurs d'onde allant de 200 à 2400 nm avec un pas variant de 0.02 à 0.05 nm. Ce spectre a été construit à partir des mesures des instruments satellitaires SOLSPEC (SOLar SPECtrum) à bord des différentes plate-formes ATLAS (ATmospheric Laboratory for Applications and Science) et SOSP (SOlar SPectrum) situé à bord de la plate-forme EURECA (EUropean Retrieval CArrier). La partie du spectre nous intéressant (entre 200 et 450 nm) concerne l'instrument SOLSPEC. Les données fournies par cet instrument ont été mesurées avec une résolution de 1 nm. Selon G. Thuillier (communication personnelle), la résolution du spectre final serait meilleure que 1 nm. Son incertitude varie de 2 à 3%.
2. Le spectre KP320at3 (spectre à très haute résolution) a été reconstruit à partir des mesures de l'instrument SUSIM/ATLAS3 et de celles de KittPeak par H. Slaper pour son programme de recalage en longueur d'onde ShicRIVM [Slaper et al., 1995]. Ce spectre couvre les longueurs d'onde allant de 280 à 460 nm avec un pas de 0.01 nm. Il sera appelé "spectre de Slaper" dans la suite.

   Le spectre de KittPeak [Kurucz et al., 1984] a été obtenu en 1984 grâce à l'utilisation conjointe d'un télescope solaire et d'un spectroradiomètre à transformée de Fourier installé au mont Kitt en Arizona. Ce spectre s'étend de 296 à 1300 nm avec une

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

résolution spectrale meilleure que 0.005 nm et un pas d'échantillonage extrêmement fin (de 0.00035 à 0.001 nm).

Ces deux spectres convolués par la fonction fente du spectroradiomètre sont comparés sur la figure 2.2, le spectre de "Thuillier" est tracé en noir, celui de "Slaper" en rouge. Sur cette figure, nous pouvons remarquer une différence d'éclairement au delà d'environ 400 nm. Celle-ci est d'environ 5% en moyenne entre les deux spectres comme le montre la figure 2.3. En revanche, pour les longueurs d'onde inférieures à 400 nm, les deux spectres sont en assez bon accord. Les oscillations que l'on observe sur la figure 2.3 sont probablement dues à la résolution différente des deux spectres à l'origine, même si nous les avons convolués par la fonction fente du spectroradiomètre. En effet, comme nous ne connaissions pas les fonctions fentes des instruments de mesure, nous n'avons pas pu déconvoluer les spectres avant de les convoluer par la fonction fente du spectroradiomètre. En dessous de 400 nm, le choix entre le spectre de "Slaper" et le spectre de "Thuillier" sera très peu différent. En revanche, la différence observée au delà de 400 nm nous conduira dans la suite à bien sélectionner le spectre convenable.

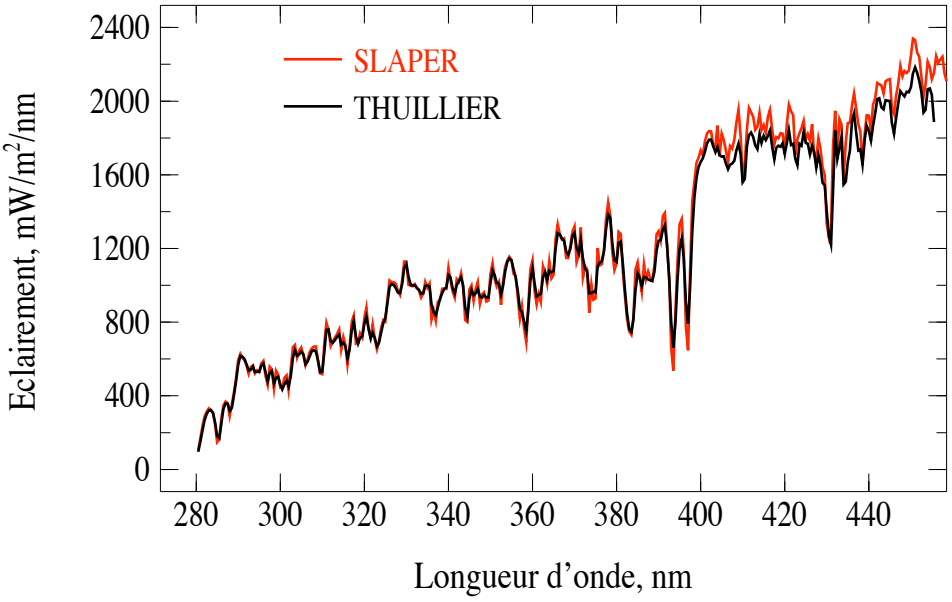

FIG. 2.2 – *Comparaison entre les deux spectres solaires hors atmosphère : celui de "Slaper" en rouge et celui de "Thuillier" en noir.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

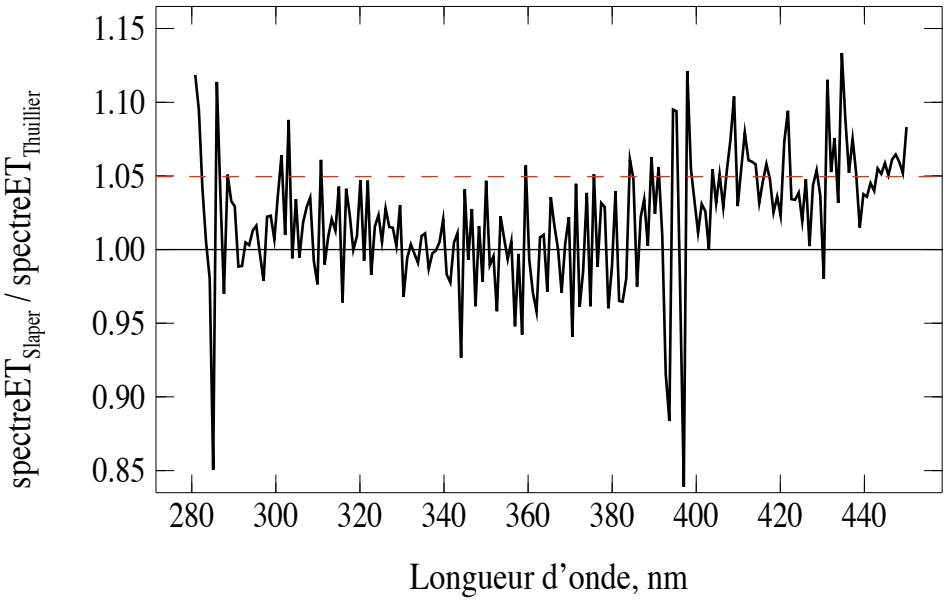

FIG. 2.3 – *Rapport des deux spectres solaires hors atmosphère de "Slaper" et de "Thuillier". La ligne rouge représente 5% d'écarts entre les deux.*

2.2 Détermination de la quantité d'ozone

2.2.1 Méthode

La quantité totale d'ozone est retrouvée à chaque acquisition de spectre global à l'aide d'une méthode d'absorption différentielle [Stamnes et al., 1988; Houët et Brogniez, 2004; Brogniez et al., 2005]. Cette méthode consiste à utiliser un rapport de deux éclairements globaux, l'un situé dans une région spectrale fortement absorbée par l'ozone et l'autre dans une région très peu absorbée ; ce rapport est ensuite comparé au rapport d'éclairements simulés à l'aide d'un code de transfert radiatif ("DISORT") aux mêmes longueurs d'onde et stocké dans une "Look Up Table" (LUT). Cinq rapports ont été choisis afin qu'ils ne soient pas trop dépendants des paramètres atmosphériques autres que l'ozone (aérosols, nuages) et d'un paramètre instrumental (fonction fente) :

$$R1 = \frac{E_{340}}{E_{305.5}}, R2 = \frac{E_{339}}{E_{305.5}}, R3 = \frac{E_{323.5}}{E_{305.5}}, R4 = \frac{E_{339} + E_{339.5} + E_{340}}{E_{304.5} + E_{305.5} + E_{306.5}}, R5 = \frac{E_{340}; E_{345}}{E_{305}; E_{310}} \quad (2.4)$$

Les LUT ont été construites pour différentes quantités d'ozone en utilisant les sections efficaces d'absorption de Paur et Bass [Paur et Bass, 1985] et pour différents angles solaires zénithaux. Comme on l'a mentionné au paragraphe 2.1.1, on utilise comme paramètres d'entrée du code de transfert radiatif, l'albédo de surface (qui peut être important si le sol est recouvert de neige), les profils verticaux standards de pression et de température, les paramètres aérosols tels que l'épaisseur optique, l'albédo de diffusion simple et le coefficient d'Angström. Pour les aérosols, des quantités moyennes rencontrées à VdA ont

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

été choisies, elles l'ont été grâce aux observations du réseau AERONET/PHOTONS.
A chaque spectre global, cinq quantités d'ozone sont retrouvées par comparaison des rapports mesurés avec ceux simulés ; la moyenne des cinq quantités est alors considérée comme une bonne estimation de l'ozone au moment de la mesure. L'incertitude sur la quantité d'ozone retrouvée est estimée à 3% par ciel clair [Houët et Brogniez, 2004] et peut atteindre 7% selon la couverture nuageuse [Brogniez et al., 2005].

2.2.2 Résultats

Nous avons poursuivi le travail de restitution de la colonne totale d'ozone initié par Houët [2003] ; malgré quelques interruptions dans la série de mesures (notamment en 2005 et 2007), les mesures effectuées depuis 2000 à VdA ont permis d'obtenir une série temporelle de près de huit années de l'ozone (figure 2.4).

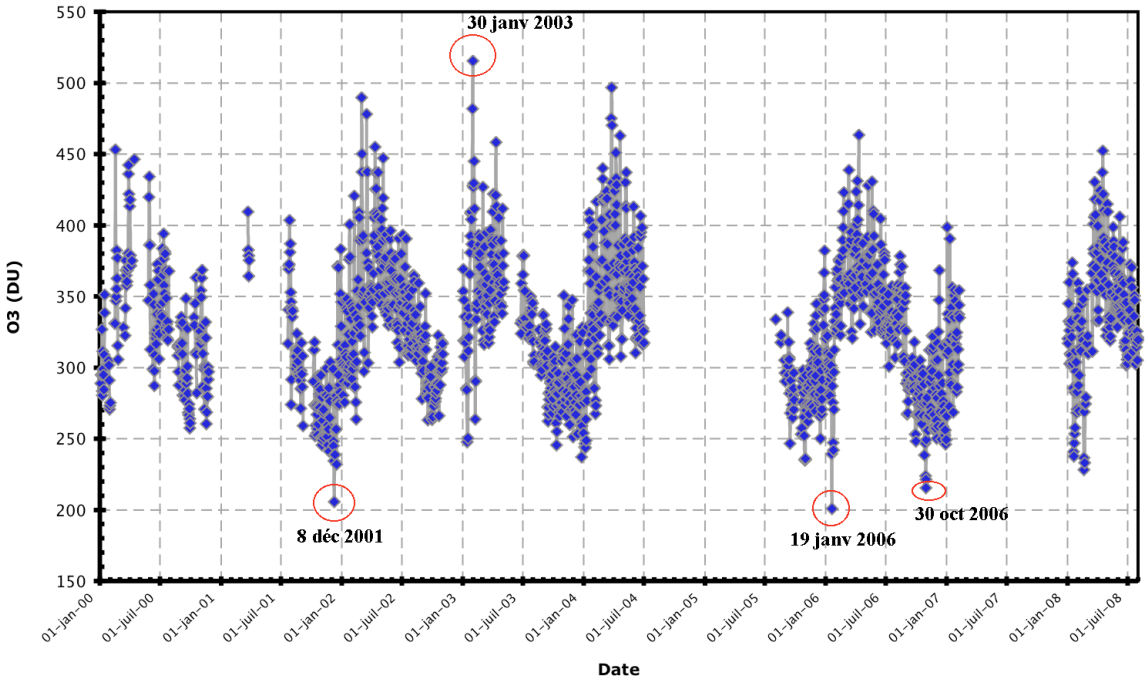

FIG. 2.4 – *Evolution de la quantité d'ozone retrouvée avec le SPUV01 (moyenne journalière) à VdA pour les huit années.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

L'absence de mesures sur la figure 2.4 à partir de la fin de l'année 2004 jusqu'à septembre 2005 correspond à la période des travaux qui ont été effectués sur la station toit du LOA. En 2007, c'est le changement des réseaux du spectroradiomètre qui a occasionné une absence de mesures.

Cette série temporelle permet de rendre compte des variations saisonnières de la quantité d'ozone existant au-dessus de VdA. La figure 2.5 montre les variations interannuelles pour ces huit années. Comme attendu [Brasseur et Solomon, 2005; Steinbrecht et al., 2006] les valeurs minimales de la quantité d'ozone sont généralement observées au cours des mois d'octobre à janvier alors que les valeurs maximales apparaissent au cours des mois de mars à avril. Cette variation saisonnière provient essentiellement du fait que l'ozone se forme principalement dans les régions équatoriales et est transporté vers les hautes et moyennes latitudes de l'hémisphère d'hiver par la circulation méridienne qui est maximum à la fin de l'hiver et minimum en automne.

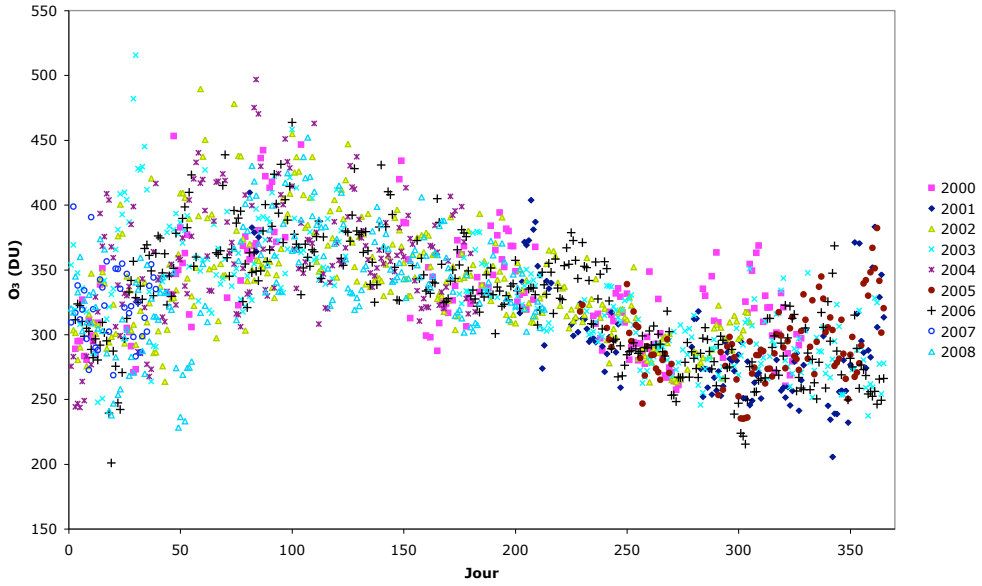

FIG. 2.5 – *Evolution temporelle de la quantité d'ozone retrouvée avec le SPUV*01 *(moyenne journalière) à VdA pour les huit années.*

En parallèle nous avons également tracé la série temporelle des doses érythémateuses journalières calculées à partir des mesures du radiomètre YES (figure 2.6).

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

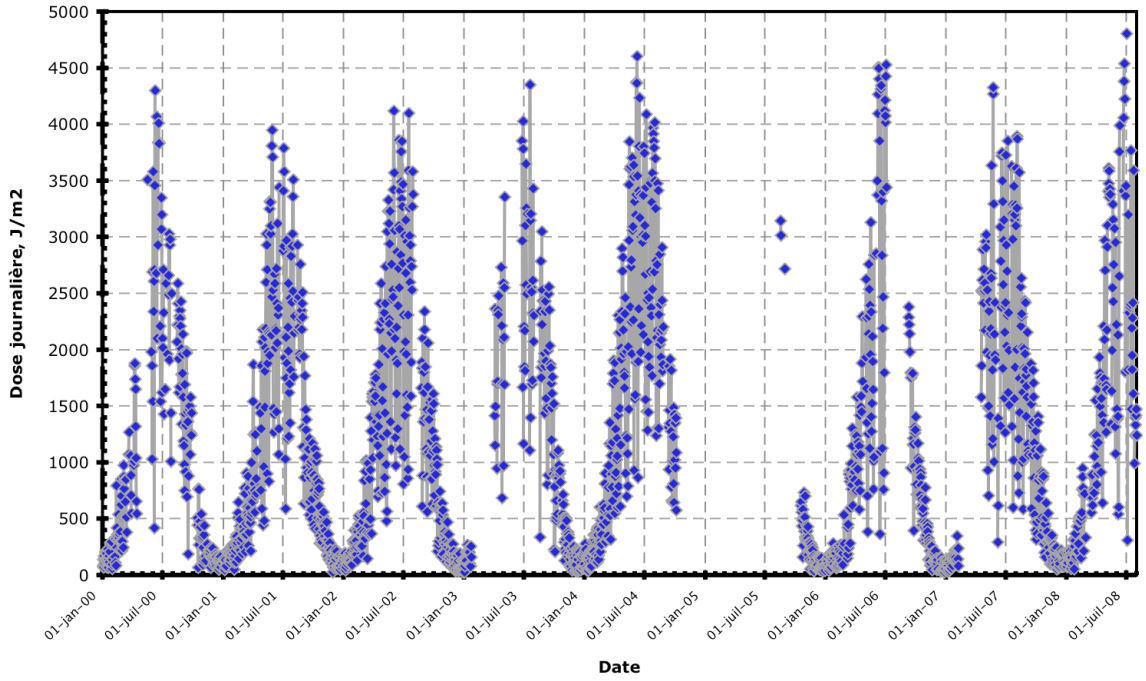

FIG. 2.6 – *Evolution des doses érythémateuses journalières du radiomètre YES à VdA du* 01 *janvier* 2000 *au* 31 *juillet* 2008.

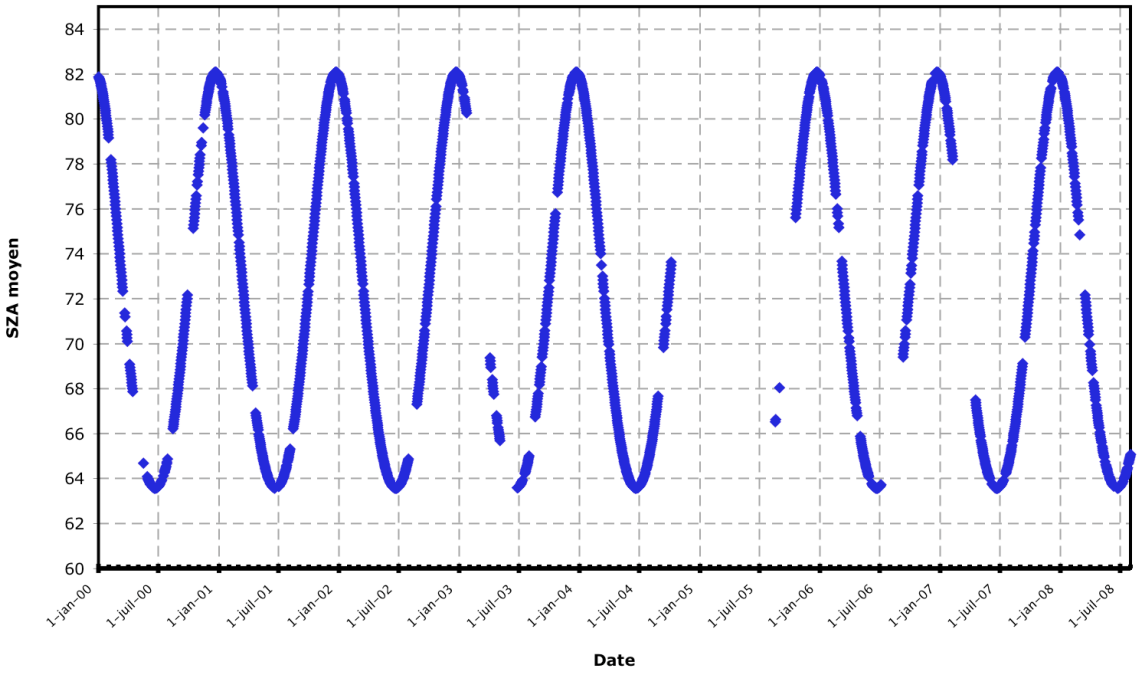

FIG. 2.7 – *Evolution de l'angle solaire zénithal journalier moyen à VdA du* 01 *janvier* 2000 *au* 31 *juillet* 2008.

En ce qui concerne les doses érythémateuses, les valeurs minimales sont observées durant les mois d'hiver (novembre à mars) et les valeurs maximales apparaissent au printemps et en été. L'ozone absorbant dans le domaine UVB, entraîne une diminution

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

de ce rayonnement atteignant le sol, on peut alors comparer les deux figures 2.4 et 2.6 afin de vérifier qu'il existe une anti-corrélation entre ces deux quantités. Il n'en est rien, ce qui n'est pas surprenant car plusieurs effets viennent s'ajouter à celui de l'ozone que ce soit celui de l'angle solaire zénithal, de la couverture nuageuse et aussi des aérosols. La figure 2.7 illustre la variation de l'angle solaire zénithal moyen pour chaque journée. Nous remarquons que lorsque cet angle est maximal, les doses érythémateuses journalières sont les plus faibles, confirmant que le rayonnement UVB qui atteint le sol dépend de l'angle solaire zénithal. L'effet des nuages est plus difficile à observer à cause de variations importantes de la couverture nuageuse au cours de la journée. Pour observer une anti-corrélation entre la quantité d'ozone et des doses érythémateuses, il faudrait donc supprimer les variations dues à l'angle solaire zénithal et aux nuages comme l'a fait Houët [2003] sur le site de VdA de 1997 à 2003. Nous n'avons pas poursuivi ce travail car nous avons choisi de nous consacrer à la caractérisation des aérosols et à la validation d'OMI.

Toutefois, nous pouvons remarquer sur la figure 2.4 des journées où la quantité d'ozone relevée est très faible. Notamment le 8 décembre 2001, le 19 janvier 2006 et le 30 octobre 2006, les quantités déduites des mesures du spectroradiomètre sont respectivement de 206, 201 et 215 DU.

Plusieurs hypothèses peuvent être émises pour expliquer ces valeurs :

- le transport de masses d'air appauvries en ozone depuis les hautes ou basses latitudes suivant la période et l'altitude,
- l'altitude de la tropopause : une altitude élevée tendant à diminuer la colonne totale d'ozone.

Nous avons alors étudié l'origine des masses d'air pour ces trois journées en examinant les rétrotrajectoires de 72h calculées à l'aide du logiciel HYSPLIT[1] (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) (figure 2.8).

[1] http ://www.arl.noaa.gov/ready.html

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

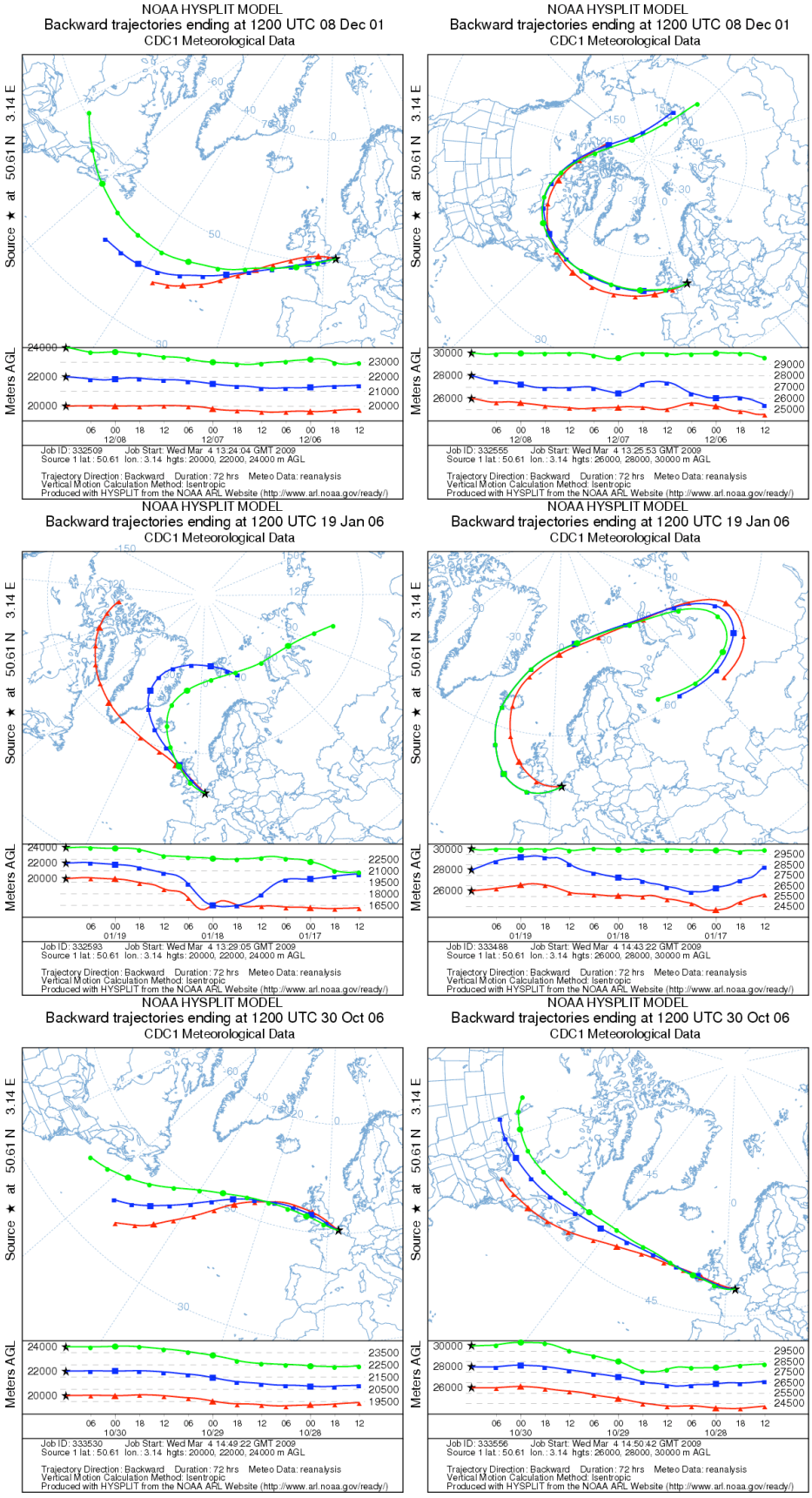

FIG. 2.8 – *Rétrotrajectoires issues de VdA calculées par le modèle HYSPLIT aux altitudes* 20, 22 *et* 24 *km sur les figures de gauche et* 26, 28 *et* 30 *km sur les figures de droite, les* 8 *décembre* 2001, 19 *janvier* 2006 *et* 30 *octobre* 2006.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Il est difficile de conclure sur une cause possible de la diminution de l'ozone durant ces journées à partir d'une simple analyse de ces rétrotrajectoires. En effet, on observe sur la figure 2.8 que selon l'altitude, les masses d'air proviennent de régions très différentes. Afin d'examiner l'altitude de la tropopause, cette étude nécessite des analyses complémentaires, qui n'ont pas pu être réalisées dans cette thèse par manque de temps.

La journée du 19 janvier 2006 a été l'objet d'une étude approfondie par Keckhut et al. [2007], nous nous y sommes donc intéressés plus particulièrement. Nous avons étudié les mesures de la colonne totale d'ozone sur une échelle temporelle de quelques jours autour de cette date. Le spectroradiomètre a observé des valeurs très faibles, inférieures à 250 DU durant cette période. La figure 2.9 présente des cartes de la quantité d'ozone observée par l'instrument OMI au-dessus de l'Europe du 18 au 21 janvier 2006.

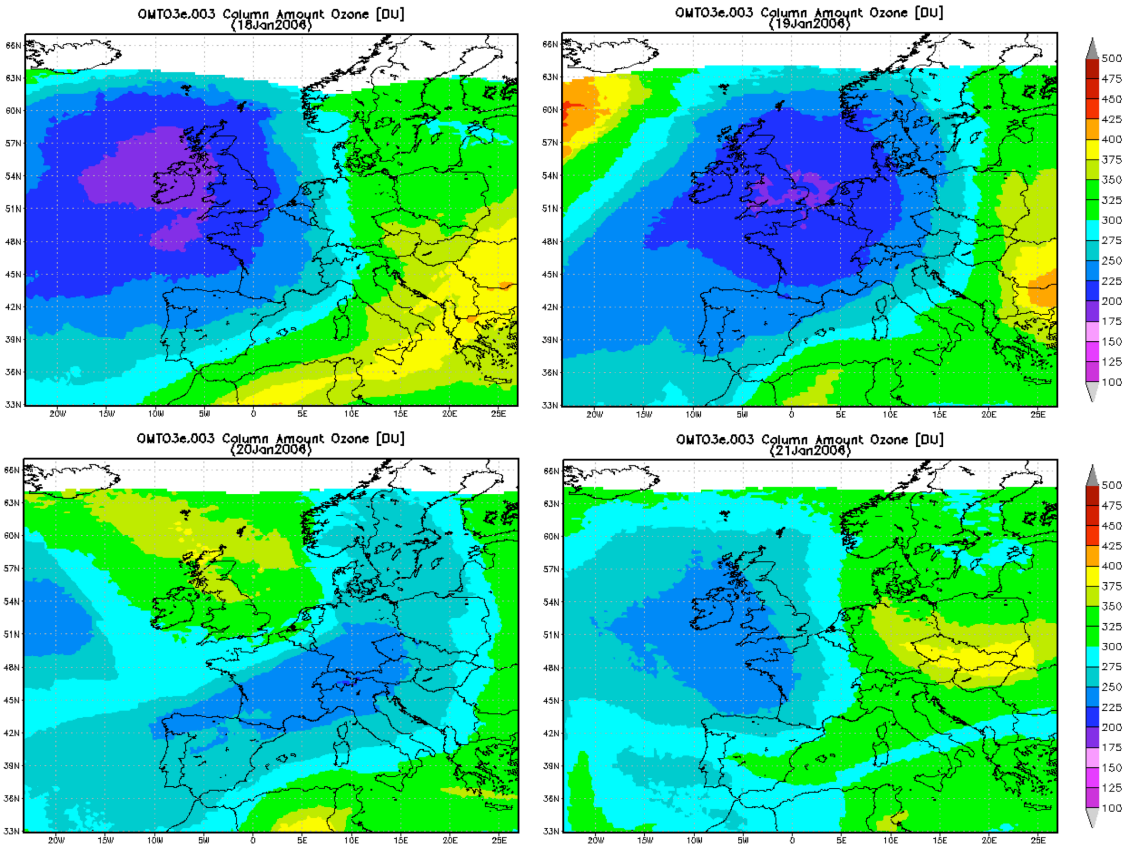

FIG. 2.9 – *Evolution de la quantité d'ozone observée par OMI/AURA (algorithme OMTO3) du* 18 *janvier* 2006 *au* 21 *janvier* 2006 *sur l'Europe.*

Nous remarquons que l'Europe a connu une période de baisse de la colonne totale d'ozone du 18 au 21 janvier 2006. La nette diminution d'ozone observée durant cette période a également été confirmée par Keckhut et al. [2007] qui ont observé par mesure LIDAR un PSC au-dessus de l'Europe (à l'OHP). Comme on l'a dit au chapitre 1, les PSC sont responsables de la conversion d'espèces chlorées réservoirs en chlorés destructeurs de l'ozone en présence de lumière. Selon Keckhut et al. [2007] cet événement

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

a donc conduit à une nette diminution de l'ozone. Toutefois, ce type d'évènements est très exceptionnel car il s'agit de l'unique observation de PSC en 25 années de mesures systématiques à l'OHP.

Contrairement aux valeurs relevées précédemment, le spectroradiomètre a observé le 30 janvier 2003 la quantité d'ozone la plus élevée au cours de ces huit années (515 DU). Une quantité très élevée a également été observée par le satellite TOMS (540 DU au-dessus de VdA) comme le montre la figure 2.10 de gauche. Nous avons de nouveau étudié la provenance des masses d'air à l'aide du modèle HYSPLIT.

La figure 2.10 de droite nous indique que les masses d'air provenaient des latitudes proches des tropiques, lieu privilégié de production de l'ozone du fait de l'éclairement solaire intense. Toutefois cette valeur d'ozone, supérieure aux valeurs observées généralement en cette saison nécessite comme précédemment d'être étudiée de manière plus approfondie.

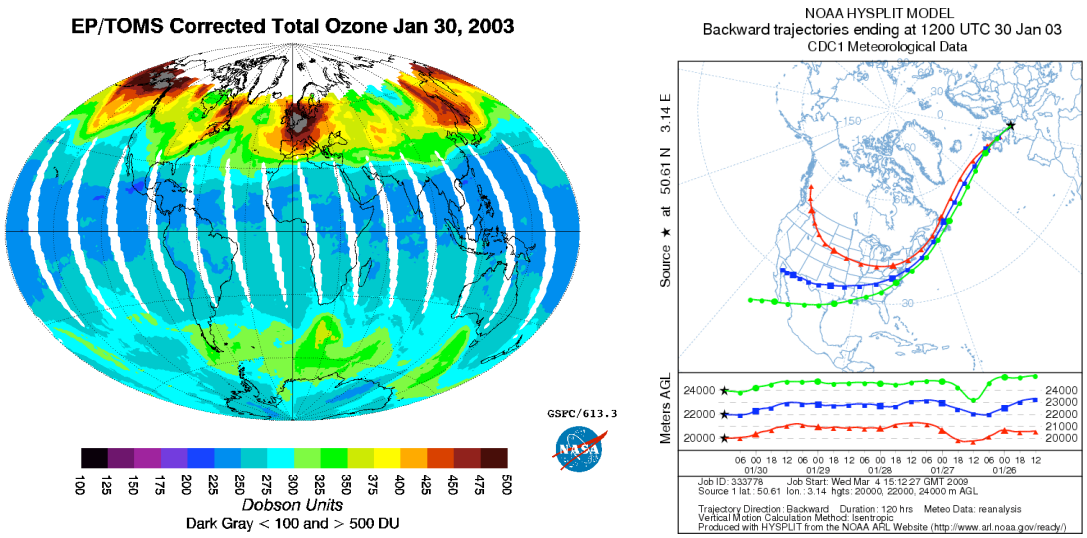

FIG. 2.10 – *A gauche, carte globale de la quantité d'ozone observée par l'instrument TOMS le* 30 *janvier* 2003. *A droite : rétrotrajectoires à* 5 *jours issues de VdA aux altitudes* 20, 22 *et* 24 *km calculées par le modèle HYSPLIT.*

Sur une période de huit années avec des interruptions, il est bien sûr difficile de voir des tendances avec nos mesures que ce soit pour la colonne totale d'ozone ou pour l'éclairement UV. Toutefois ces mesures seront poursuivies afin de permettre d'effectuer un suivi de l'ozone et de l'UV et vont servir dans le troisième chapitre à valider ces mêmes quantités qui sont restituées à partir des mesures d'OMI.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.3 Caractérisation des aérosols

2.3.1 Détermination de l'épaisseur optique des aérosols et du coefficient d'Angström

Comme nous l'avons évoqué en introduction, les aérosols influencent la quantité de rayonnement UV arrivant à la surface de la Terre, cependant la quantification de cet impact est encore assez mal connue [WMO, 2007]. Les mesures spectrales d'éclairement direct au sol peuvent être utilisées afin d'améliorer nos connaissances régionales sur les propriétés optiques des aérosols comme l'épaisseur optique des aérosols (Aerosol Optical Thickness ou AOT) et l'albédo de diffusion simple des aérosols (ω_0). Gröbner et Meleti [2004] ont déterminé des AOT à Ispra en Italie avec un spectroradiomètre Brewer équipé d'un collimateur. La même catégorie d'instrument a permis à Kazadzis et al. [2005] d'observer une variation saisonnière des AOT à Thessaloniki en Grèce. D'autres équipes ont aussi déterminé des AOT à Uccle avec les mêmes instruments [Cheymol et De Backer, 2003; Cheymol et al., 2006]. Contrairement aux instruments précédents, notre spectroradiomètre à VdA n'effectue pas des mesures d'éclairement direct mais d'éclairements global et diffus en utilisant un shadower. L'objectif de ce travail, qui a été initié par Houët [2003], est d'estimer une AOT à partir des éclairements directs déduits de la différence entre les mesures d'éclairements global et diffus de 330 à 450 nm. La méthode a été améliorée et les AOT obtenues ont été ensuite validées avec les produits des photomètres du réseau AERONET/PHOTONS situés sur le toit du LOA. Ce travail a fait l'objet d'une publication dans ACP (Atmospheric Chemistry and Physics) [Brogniez et al., 2008]. La détermination d'AOT spectrales en particulier dans l'UV, permet aussi de valider les produits retrouvés à partir des mesures satellitaires comme nous le verrons dans le chapitre 3.

2.3.1.1 Méthode

La télédétection des aérosols à partir des mesures effectuées au sol utilise l'éclairement direct du soleil transmis à travers l'atmosphère. L'éclairement solaire direct mesuré au sol $E_{dir}(\lambda, \theta_s)$ à un instant donné peut s'écrire selon la loi de Beer-Lambert :

$$E_{dir}(\lambda, \theta_s) = C_{TS}\, E_{ET}(\lambda) \cos\theta_s \exp[-\tau_{tot}(\lambda) \mathrm{m}(\theta_s)] \tag{2.5}$$

où :

- $\mathrm{m}(\theta_s)$ est la masse d'air, coefficient géométrique qui tient compte du chemin parcouru par la lumière à travers l'atmosphère (en négligeant la réfraction atmosphérique, $\mathrm{m}(\theta_s) = \frac{1}{\cos\theta_s}$).

- $\tau_{tot}(\lambda)$ est l'épaisseur optique atmosphérique totale, qui s'écrit comme la somme de l'épaisseur optique des molécules τ_{ray}, de celle des aérosols τ_{aer} et éventuellement

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

de celle des gaz absorbants (tels que l'ozone τ_{O_3} et le dioxyde d'azote τ_{NO_2}).

À une longueur d'onde donnée :

$$\tau_{tot}(\lambda) = \tau_{ray}(\lambda) + \tau_{O_3}(\lambda) + \tau_{NO_2}(\lambda) + \tau_{aer}(\lambda) \tag{2.6}$$

$\tau_{tot}(\lambda)$ se déduit des mesures de rayonnement direct par la relation :

$$\tau_{tot}(\lambda) = -\cos\theta_s \times \ln\left(\frac{E_{dir}(\lambda)}{E_{ET}(\lambda) \times \cos\theta_s \times C_{TS}}\right) \tag{2.7}$$

Par ciel clair, l'épaisseur optique des aérosols est alors calculée en retranchant à l'épaisseur optique totale les épaisseurs optiques dues aux molécules, à l'ozone et au dioxyde d'azote si nécessaire :

$$\tau_{aer}(\lambda) = \tau_{tot}(\lambda) - \tau_{ray}(\lambda) - \tau_{O_3}(\lambda) - \tau_{NO_2}(\lambda) \tag{2.8}$$

Afin de minimiser les erreurs associées aux grands angles solaires correspondant à des éclairements mesurés faibles, nous limitons notre calcul à des angles solaires inférieurs à 75°. Nous prenons également en compte la variation de θ_s durant les 6 minutes de mesure d'un spectre.

Les autres termes intervenant dans τ_{tot} sont les éclairements directs mesuré $E_{dir}(\lambda)$ et hors atmosphère E_{ET} :

- $E_{dir}(\lambda)$ est obtenu par différence entre les éclairements global et diffus mesurés (comme nous l'avons expliqué dans le chapitre 1 sous-section 1.2.1).

- En ce qui concerne le flux hors atmosphère $E_{ET}(\lambda)$, nous utilisons les deux spectres présentés dans la partie 2.1.2.2 couvrant le domaine de longueurs d'onde $280 - 450$ nm.

Comme nous l'avons évoqué dans la partie 2.1.2.2, afin d'avoir un spectre hors atmosphère à la résolution de notre spectroradiomètre, nous avons convolué ces deux spectres avec la fonction fente de l'instrument (FWHM = 0.75 nm). Nous les avons ensuite échantillonnés au pas de la mesure (0.5 nm). La qualité de notre épaisseur optique des aérosols retrouvée va dépendre du choix du spectre ET et nous verrons dans la suite de ce chapitre que nous avons choisi le spectre de "Thuillier", suite aux comparaisons effectuées avec les photomètres solaires AERONET/PHOTONS.

Enfin, dans l'équation (2.8), les derniers termes qui interviennent sont les épaisseurs optiques moléculaires, de l'ozone et du dioxyde d'azote qui sont déterminées de la manière suivante :

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Détermination de l'épaisseur optique moléculaire : une partie de l'atténuation du rayonnement solaire est attribuée à la diffusion par les molécules présentes dans l'atmosphère, décrite suivant la théorie de Rayleigh [Bodhaine et al., 1999].

$$\tau_{ray}(\lambda) = \frac{\sigma_{ray}(\lambda) \times N_A \times P_0}{M_{air} g} \tag{2.9}$$

Avec :

- N_A, le nombre d'Avogadro = 6.02252 10^{23} mol^{-1},
- M_{air}, la masse molaire de l'air = 29 $g.mol^{-1}$,
- g, l'accélération de la pesanteur = 9.81 $m.s^{-2}$,
- P_0, la pression atmosphérique à la surface,
  Pour la valeur de la pression de surface, nous utilisons celle fournie par une station météorologique située sur le toit du LOA depuis 2006. Avant cette date, une valeur standard est choisie selon la saison (1013 hPa en été et 1018 hPa en hiver).
- $\sigma_{ray}(\lambda)$, la section efficace de diffusion moléculaire en $cm^2.molécule^{-1}$, elle est définie comme suit [Bodhaine et al., 1999] :

$$\sigma_{ray}(\lambda) = \frac{24\pi^3}{\lambda^4 N_s^2} \left(\frac{m_s^2 - 1}{m_s^2 + 2} \right)^2 \left(\frac{6 + 3d}{6 - 7d} \right) \tag{2.10}$$

où :

- N_s est le nombre de molécules par unité de volume dans les conditions standards de pression et de température (P_s = 1013.25 hPa et T_s = 288.15 K), N_s = 2.5474 $10^{19} cm^{-3}$,

- d est le facteur de dépolarisation, il prend en compte l'anisotropie des molécules d'air. On appelle facteur de correction de la dépolarisation, le facteur de King F_k égal à $\left(\frac{6+3d}{6-7d}\right)$ qui varie en fonction de la longueur d'onde, de 1.05850 (à 280 nm) jusque 1.05011 (à 450 nm) [Bodhaine et al., 1999],

- m_s est l'indice de réfraction de l'air dans les conditions standards, selon Bodhaine et al. [1999], il est égal à :

$$m_s = 1 + \left(8060.77 + \frac{2481070}{132.274 - \lambda^{-2}} + \frac{17456.3}{39.32957 - \lambda^{-2}} \right).10^{-8} \tag{2.11}$$

avec λ en μm.

L'épaisseur optique moléculaire varie en λ^{-4} : c'est pourquoi le rayonnement de courtes longueurs d'onde sera plus sensible à la diffusion par les molécules.

Détermination de l'épaisseur optique de l'ozone : l'épaisseur optique de l'ozone est obtenue à partir de la quantité d'ozone présente dans l'atmosphère et des sections efficaces

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

d'absorption de l'ozone, elle s'écrit comme suit :

$$\tau_{O_3}(\lambda) = \frac{Q \times N_A \times \sigma_{eff}^{O_3}(\lambda)}{V_m \times 10^3} \tag{2.12}$$

La quantité d'ozone Q, exprimée en Dobson, est retrouvée à partir des mesures spectrales globales selon la méthode décrite au paragraphe 3.1.1, V_m est le volume molaire dans les conditions normales de température et de pression (= 22.4 l.mol^{-1}) et $\sigma_{eff}^{O_3}(\lambda)$ est la section efficace d'absorption de l'ozone en cm^2. molécule^{-1}. Afin de tenir compte de la résolution de notre instrument, nous l'avons convoluée par la fonction fente du spectroradiomètre.

Détermination de l'épaisseur optique de NO2 : de même que pour l'ozone, il est nécessaire de connaître la quantité de NO_2 dans l'atmosphère afin d'en déduire son épaisseur optique. Avant le lancement du satellite OMI, une climatologie des mesures de SCIAMACHY (Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmsopheric Chartography) a été utilisée. Après septembre 2004, l'abondance a été fournie par OMI. L'épaisseur optique NO_2 est ensuite obtenue à partir d'une relation du même type que 2.12.

Les variations spectrales de chaque épaisseur optique pour le 17 juillet 2006 sont présentées sur la figure 2.11. La figure commence à partir de 300 nm en raison de l'épaisseur optique de l'ozone qui est élevée en-dessous de cette longueur d'onde.

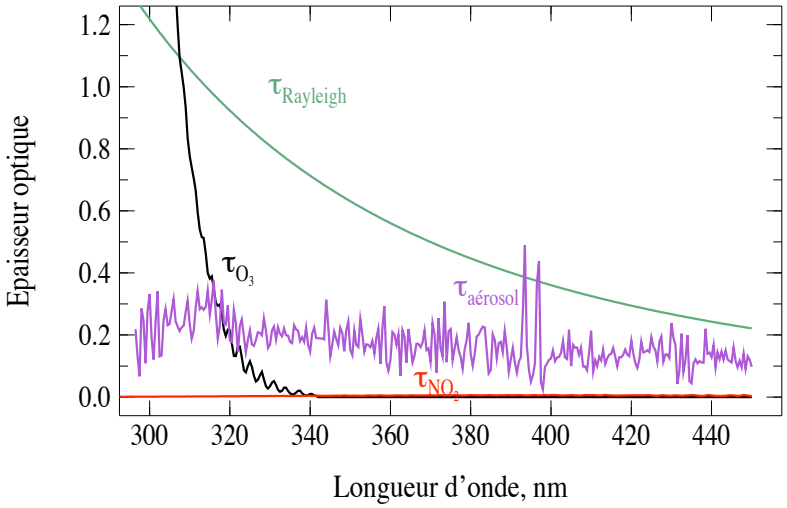

FIG. 2.11 – *Epaisseurs optiques des différents constituants calculées le 17 juillet 2006 à 12h00 : épaisseur optique moléculaire en vert, d'ozone en noir, du dioxyde d'azote en rouge et des aérosols en violet.*

Nous voyons que l'épaisseur optique moléculaire est très importante aux petites longueurs d'onde du spectre et décroît quand la longueur d'onde augmente. L'épaisseur optique de NO_2 est très faible sur tout le spectre.

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Les différentes contributions de chaque espèce à l'épaisseur optique sont présentées sur la figure 2.12. La contribution de l'épaisseur optique moléculaire devient la plus importante à partir de 310 nm. Avant cette longueur d'onde, c'est celle de l'ozone qui est la plus importante, son effet se prolonge jusque 330 nm puis devient nul à partir de 340 nm. En ce qui concerne l'épaisseur optique de NO_2, sa contribution est extrêmement faible.

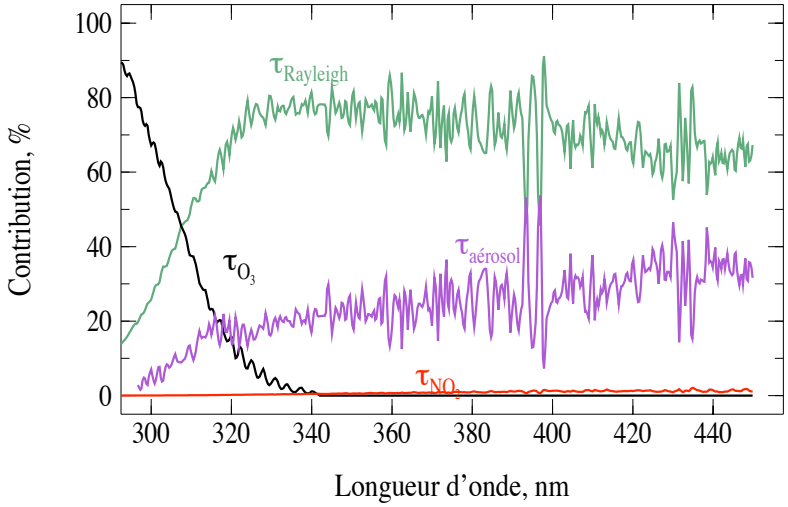

FIG. 2.12 – *Contribution de chaque composant à l'épaisseur optique pour le* 17 *juillet* 2006 *à* 12*h*00.

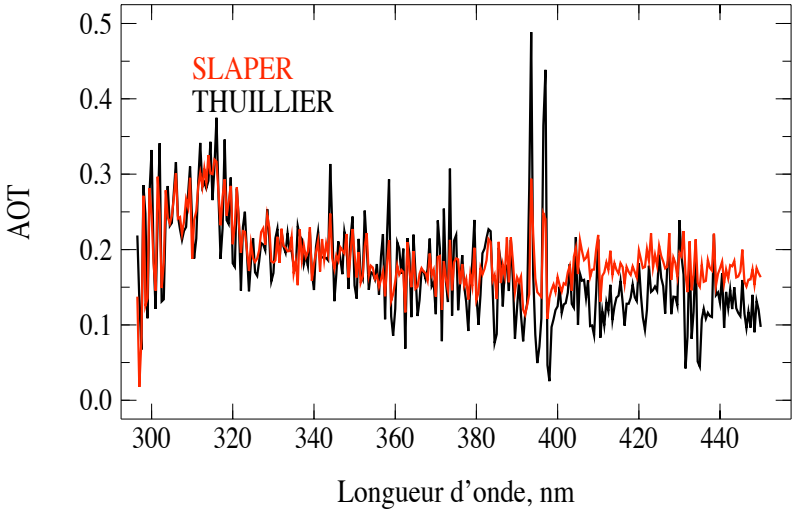

FIG. 2.13 – *Comparaison entre les deux spectres d'AOT obtenues à partir des spectres ET de "Slaper" en rouge et de "Thuillier" en noir le* 17 *juillet* 2006 *à* 12*h*00.

L'épaisseur optique des aérosols retrouvée entre 300 et 450 nm, avec un pas de 0.5 nm, présente des oscillations, plus importantes dans la région des raies de Fraunhofer à 393.5,

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

396.9 et 431.0 nm. Les valeurs obtenues, ainsi que les oscillations, sont différentes selon le spectre ET utilisé comme le montre la figure 2.13. Celles-ci sont moins importantes avec le spectre ET de "Slaper" en rouge qui est avant convolution le mieux résolu des deux. Ces oscillations semblent être dues à la différence de résolution existant entre le spectroradiomètre et le spectre ET (malgré la convolution du spectre hors atmosphère par la fonction fente du spectroradiomètre). Nous pouvons également supposer qu'une correction insuffisante du décalage en longueur d'onde du spectre mesuré peut être à l'origine de ces oscillations. Nous avons alors choisi d'appliquer une moyenne glissante sur l'AOT obtenue (figure 2.14). Pour ce lissage, nous avons utilisé différentes fonctions triangle de largeurs à mi-hauteur différentes. Nous avons finalement sélectionné pour la suite la fonction triangle de FWHM = 4 nm, qui semble être suffisante pour supprimer la plupart des oscillations, comme le montre la courbe noire de la figure 2.14. Néanmoins, les AOT retrouvées aux environs des raies de Fraunhofer sont à utiliser avec précaution.

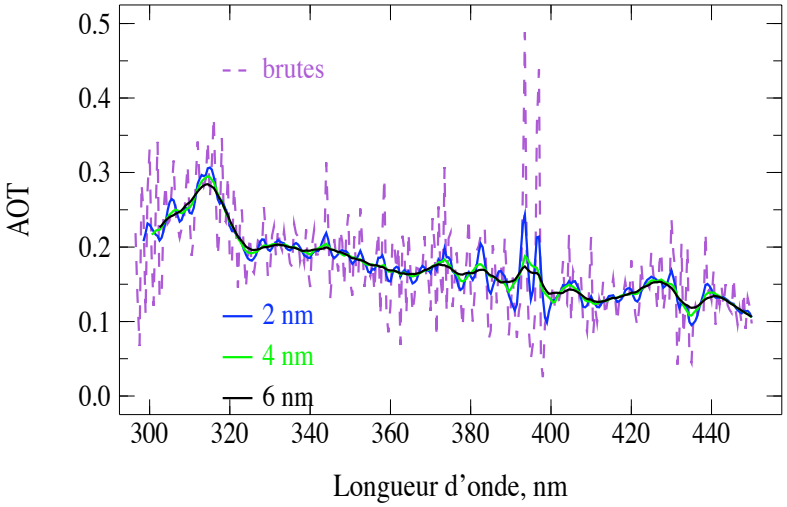

FIG. 2.14 – *Epaisseurs optiques des aérosols brutes retrouvées de* 300 *à* 450 *nm le* 17 *juillet* 2006 *à* 12*h*00 *en violet, les AOT obtenues après un lissage par une fonction triangle de largeur à mi-hauteur* 2 *nm en bleu,* 4 *nm en vert et* 6 *nm en noir sont également présentées.*

Incertitude sur l'épaisseur optique des aérosols retrouvée :

L'incertitude sur l'AOT retrouvée va dépendre des incertitudes sur l'épaisseur optique totale, sur l'épaisseur optique Rayleigh et sur les épaisseurs optique d'O_3 et de NO_2.

D'après l'équation 2.5, l'incertitude sur l'épaisseur optique totale va s'écrire :

$$\Delta\tau_{tot} = \cos(\theta_s) \times \sqrt{\left(\frac{\Delta E_{dir}(\lambda)}{E_{dir}(\lambda)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta E_{ET}(\lambda)}{E_{ET}(\lambda)}\right)^2}. \quad (2.13)$$

Cette incertitude est fonction de l'incertitude sur l'éclairement hors atmosphère $E_{ET}(\lambda)$, qui selon Thuillier et al. [2003] est d'environ 3%. $\Delta\tau_{tot}$ dépend également de l'incertitude sur l'éclairement direct $E_{dir}(\lambda)$ qui est fonction des incertitudes existant sur

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

la mesure des éclairements global et diffus (les incertitudes de mesure sont décrites dans le chapitre 1). En ce qui concerne l'incertitude sur l'épaisseur optique moléculaire, celle-ci est due à la fois à l'incertitude existant sur les sections efficaces de diffusion Rayleigh qui est inférieure à 1% [Bodhaine et al., 1999] et à l'incertitude existant sur la valeur de pression de surface. Son incertitude est estimée à 1.5% pour une valeur de pression standard ; lorsqu'elle est mesurée par la station météo, son incertitude est d'environ 0.2%.
L'incertitude sur l'épaisseur optique de l'ozone est due à l'incertitude sur les sections efficaces d'absorption de l'ozone qui selon Orphal et Chance [2003] sont connues à 2% près et aussi à celle sur la quantité d'ozone retrouvée, qui selon [Houët et Brogniez, 2004] est connue à environ 3% par ciel clair.
De la même manière, l'incertitude sur l'épaisseur optique du dioxyde d'azote est causée par celle de 2% des sections efficaces de NO_2 [Orphal et Chance, 2003] et par celle sur la quantité de NO_2. Cette valeur est estimée à 50% pour les données OMI [OMNO2 Readme File[2]].

Finalement, nous obtenons une incertitude sur l'AOT qui varie de 0.025 à 0.06 selon la longueur d'onde et l'angle solaire zénithal, les principales contributions venant de l'incertitude sur l'étalonnage de l'instrument et de celle du spectre hors atmosphère. Le tableau 15 résume les valeurs obtenues pour quatre longueurs d'onde et deux angles solaires zénithaux.

La dernière ligne du tableau contient également les incertitudes sur les AOT AERONET/PHOTONS, estimées selon la formule :

$$\Delta\tau_{A/P} = C \times cos(\theta_s)$$

avec une constante C =

- 0.01 à 440 nm,
- 0.015 à 380 nm,
- 0.02 à 340 nm.

[Eck et al., 1999; Hamonou et al., 1999]

[2]disponible à l'adresse : http ://avdc.gsfc.nasa.gov/

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 2.1 – *Bilan d'incertitude sur l'AOT retrouvée à partir des mesures du spectroradiomètre à* 4 *longueurs d'onde et* 2 *angles solaires zénithaux.*

	λ, nm	440	380	340	320
Spectro		SZA=40° SZA=70°	SZA=40° SZA=70°	SZA=40° SZA=70°	SZA=40° SZA=70°
$\Delta\tau_\lambda^{tot}$		0.040 0.028	0.047 0.031	0.051 0.033	0.055 0.035
$\Delta\tau_\lambda^{Ray}$	avt 2006	0.0043	0.0080	0.0128	0.0166
	2006	0.024	0.044	0.0071	0.0092
$\Delta\tau_\lambda^{O_3}$		0.	0.	0.	0.007*
					0.012**
$\Delta\tau_\lambda^{aer}$	avt 2006	0.040 0.028	0.048 0.032	0.053 0.034	0.058* 0.039*
spectro					0.059** 0.041**
	2006	0.040 0.028	0.047 0.031	0.052 0.033	0.056* 0.037*
					0.057** 0.038**
$\Delta\tau_\lambda^{aer}$		0.008 0.004	0.012 0.005	0.015 0.007	
photomètre					

∗Quantité d'ozone = 250 DU

∗∗Quantité d'ozone = 450 DU

Pour un SZA constant, l'incertitude sur l'AOT retrouvée à partir des mesures du spectroradiomètre augmente lorsque la longueur d'onde diminue. Pour une longueur d'onde fixée, cette incertitude augmente également lorsque le SZA diminue. A 320 nm, l'incertitude varie avec un autre paramètre qui est la quantité d'ozone, plus celle-ci est élevée et plus l'incertitude est grande. Du fait de cette grande incertitude observée à 320 nm, nous considérons nos AOT acceptables à partir de la longueur d'onde 330 nm afin d'éviter l'absorption par l'ozone. Nous remarquons également dans ce tableau que l'incertitude sur l'AOT déduite des mesures spectrales est, selon le SZA et la longueur d'onde, quatre à sept fois plus élevée que l'incertitude des AOT déduites des photomètres AERONET/PHOTONS.

2.3.1.2 Validation des AOT et des coefficients d'Angström avec AERONET/PHOTONS.

Afin de tester la fiabilité de nos AOT, nous avons effectué une comparaison avec celles restituées à partir des mesures des photomètres solaires du réseau AERONET/PHOTONS situés sur le toit du LOA.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Dans un premier temps, nous avons trié manuellement les mesures par ciel clair, c'est à dire considérées sans nuages, à partir des mesures du radiomètre YES faites simultanément à celles du spectroradiomètre. En effet, la fréquence des mesures du radiomètre, toutes les trois minutes, permet de détecter d'éventuelles variations rapides dans les mesures qui serait causées par la présence d'un nuage.

Ensuite, pour effectuer de la manière la plus correcte possible la comparaison avec les photomètres, nous avons appliqué un filtre sur nos AOT, correspondant aux filtres des photomètres solaires. La largeur à mi-hauteur FWHM du filtre du photomètre vaut 4 nm à 340 nm, 8 nm à 380 nm et 10 nm à 440 nm.

Notre étude commence à partir de l'année 2003 (année de mise en place du shadower) et se termine à la fin de l'année 2006 (avant le départ du spectroradiomètre pour le changement de ses réseaux) avec une interruption au cours de l'année 2005. En 2006, les photomètres présents sur le site de Villeneuve d'Ascq ont permis de faire des comparaisons à deux longueurs d'onde dans l'UV, 340 et 380 nm, alors qu'en 2003 et fin 2005 seule la longueur d'onde 440 nm était mesurée par les photomètres. Durant toute la période d'étude, les produits AERONET/PHOTONS de niveau 2 (niveau de qualité optimal des mesures assuré) ont été utilisés. Etant donné que nous effectuons une moyenne des éclairements diffus mesurés par le spectroradiomètre à une demi-heure d'intervalle, nous réalisons également une moyenne des AOT AERONET/PHOTONS mesurées durant les 30 minutes séparant la mesure des deux spectres diffus.

Afin de réaliser toutes les comparaisons qui vont suivre, un programme de régression linéaire robuste a été développé. Ce type de régression permet de mettre en évidence les points qui seront considérés comme "aberrants" lors de la comparaison entre deux quantités. Ces points sont ensuite éliminés lorsque l'origine du désaccord est identifiée et une régression linéaire simple est alors appliquée. Le principe des régressions linéaires simples et robustes est présenté en détail en annexe n° A).

Nous avons vu précédemment que les AOT du spectroradiomètre à 440 nm sont différentes selon le spectre hors atmosphère utilisé (figure 2.13). Aux deux autres longueurs d'onde, le problème ne se pose pas, les AOT obtenues à partir des deux spectres ET sont similaires à 0.004 près en moyenne. Une première comparaison avec les AOT déduites des photomètres à 440 nm a permis de choisir le spectre ET. Nous avons retenu le spectre ET de "Thuillier", car les écarts quadratiques moyens (RMS) (définition en annexe n°A) sont moins importants que ceux obtenus en prenant le spectre de "Slaper" (tab 2.2). De plus les valeurs des moyennes des différences égales à 0.024 en 2006 et 0.042 en 2003 − 2005 nous

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

indiquent qu'il existe un biais entre les AOT des photomètres et du spectroradiomètre lorsque le spectre de "Slaper" est utilisé.

TAB. 2.2 – *Tableau résumant les statistiques des comparaisons entre les AOT à 440 nm des photomètres AERONET/PHOTONS et du spectroradiomètre obtenues avec les deux spectres ET de "Slaper" et de "Thuillier" à VdA. (l'équation de la droite de régression simple est notée, n = nombre de points, r = coefficient de corrélation, RMS=*$\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(spectro - AERONET/PHOTONS)^2}$*, moyenne des différences =* $\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(spectro - AERONET/PHOTONS)$.

λ - année	Spectre ET	regr	n	r	RMS	Moy. des diff.
440 nm - 2006	**SLAPER**	$y = 0.94x + 0.034$	271	0.96	0.033	0.024
	THUILLIER	$y = 0.99x - 0.007$	271	0.96	0.030	-0.008
440 nm - 2003 & fin 2005	**SLAPER**	$y = 0.97x + 0.045$	313	0.96	0.050	0.042
	THUILLIER	$y = 0.95x + 0.02$	313	0.97	0.030	0.017

La figure 2.15 montre les résultats de la comparaison entre les AOT mesurées avec AERONET/PHOTONS en abscisse et les AOT obtenues avec le spectroradiomètre en ordonnée. Sur le graphique (a), les AOT à 340 nm pour l'année 2006 sont en bon accord : le coefficient de corrélation est très significatif (r = 0.98), la pente de la droite de régression est proche de l'unité (1.01) et son ordonnée à l'origine est faible (-0.003). Sur le graphique (b) pour la longueur d'onde 380 nm, l'accord est également très satisfaisant, le coefficient de corrélation est le même (r = 0.98), la pente est proche de l'unité (1.03) et l'ordonnée à l'origine est également faible (-0.009).

Pour la longueur d'onde 440 nm, l'accord est assez satisfaisant pour les deux périodes d'étude, l'année 2006 sur le graphique (c) et les années 2003 et 2005 sur le graphique (d). Les coefficients de corrélation sont significatifs (r = 0.96 et r = 0.97 respectivement) et les pentes proches de l'unité (0.99 et 0.95 respectivement). Toutefois on peut noter que les ordonnées à l'origine sont de signes contraires : -0.007 pour l'année 2006 et $+0.02$ pour les années 2003 et fin 2005. Cette différence de signe signifie qu'en moyenne les AOT du spectroradiomètre sont supérieures aux AOT des photomètres pour les années 2003 et fin 2005 alors que le contraire se présente pour l'année 2006. Le tableau 2.3 résume les statistiques de toutes ces comparaisons en AOT.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

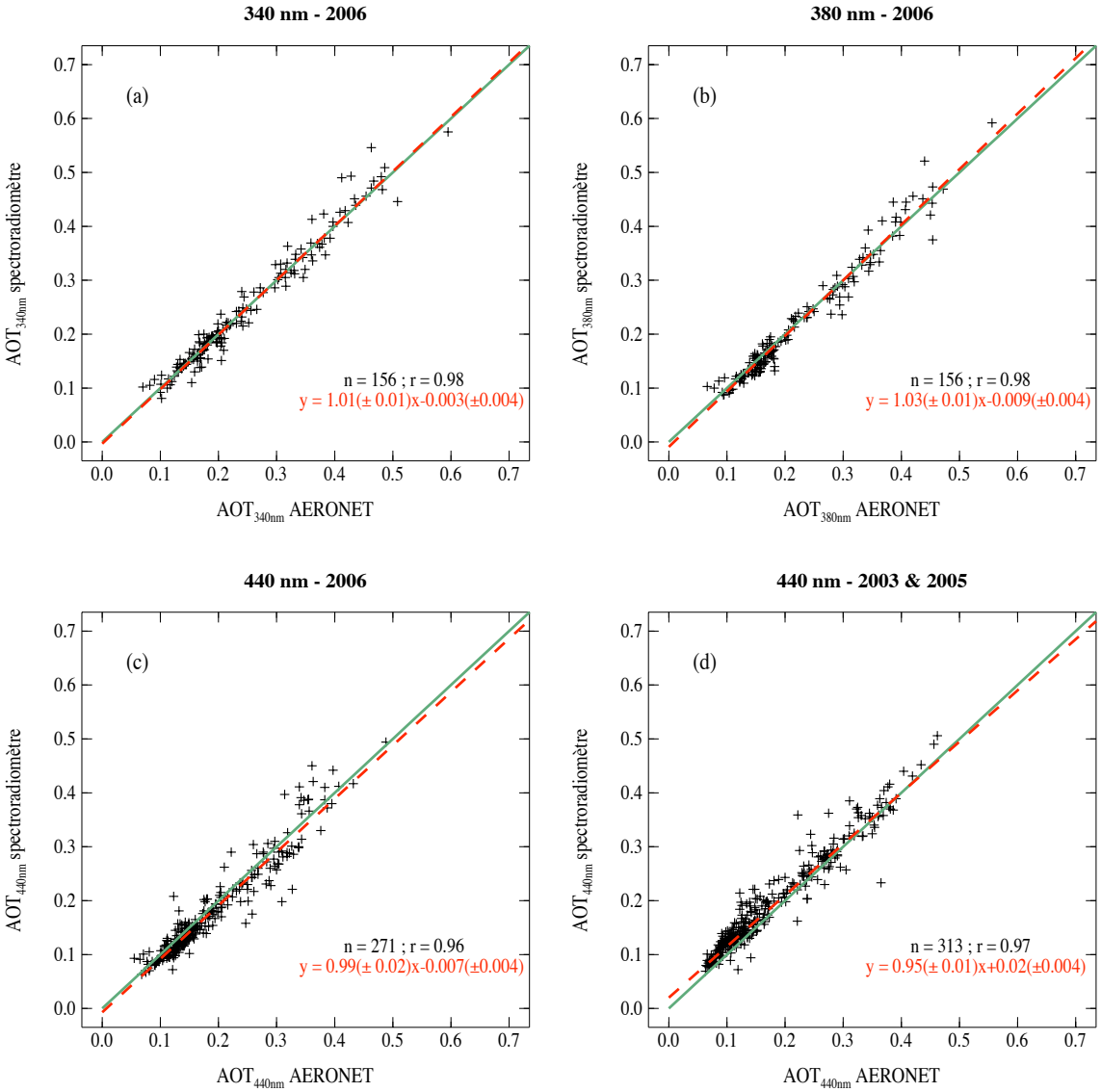

FIG. 2.15 – *Comparaison des épaisseurs optiques des aérosols mesurées par les photomètres solaires AERONET/PHOTONS en abscisse, par le spectroradiomètre en ordonnée à* 340 *nm en (a), à* 380 *nm en (b) et à* 440 *nm en (c) pour l'année* 2006 *et à* 440 *nm pour les années* 2003 *et fin* 2005 *en (d) à VdA. La première bissectrice est représentée en vert, la droite de régression en rouge.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 2.3 – *Même légende que 2.2 mais pour les comparaisons d'AOT à* 340, 380 *et à* 440 *nm pour l'année* 2006 *et à* 440 *nm pour les années* 2003 *et fin* 2005.

λ - année	**n**	**r**	**RMS**	**Moy. des diff.**
340 nm - 2006 : $y = 1.01x - 0.003$	156	0.98	0.021	0.001
380 nm - 2006 : $y = 1.03x - 0.009$	156	0.98	0.020	-0.003
440 nm - 2006 : $y = 0.99x - 0.007$	271	0.96	0.030	-0.008
440 nm - 2003 & fin 2005 : $y = 0.95x + 0.02$	313	0.97	0.030	0.017

On constate que les RMS sont de l'ordre de 0.02 pour les longueurs d'onde 340 et 380 nm confirmant le bon accord observé sur les figures 2.15 (a) et (b). Pour la longueur d'onde 440 nm, le RMS atteint 0.03 pour les deux périodes d'étude. Ces valeurs restent néanmoins dans le domaine d'incertitude de notre AOT (tab 15), ce qui nous permet de conclure que les AOT estimées à partir du spectroradiomètre aux trois longueurs d'onde sont correctes.

Toutefois pour la longueur d'onde 440 nm, la moyenne des différences nous permet de confirmer qu'en moyenne les AOT du spectroradiomètre sont supérieures aux AOT des photomètres pour les années 2003 et fin 2005 ; cette moyenne est positive et vaut environ 0.02. En revanche, c'est le contraire pour l'année 2006 : le spectroradiomètre retrouve des AOT inférieures d'environ 0.01 par rapport à celles des photomètres. A ce stade de la comparaison aucune explication sur l'origine de ces deux comportements différents selon les années ne peut être avancée.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

La figure 2.16 montre les différences entre les AOT du spectroradiomètre et celles des photomètres en fonction de l'AOT des photomètres pour la longueur d'onde 340 nm en (a), 380 nm en (b), 440 nm pour l'année 2006 en (c) et 440 nm pour les années 2003 – 2005 en (d). De manière générale, les différences observées sont inférieures aux incertitudes existant sur les AOT du spectroradiomètre. Les plus petites différences apparaissent pour les plus faibles AOT quelle que soit la longueur d'onde et la période.

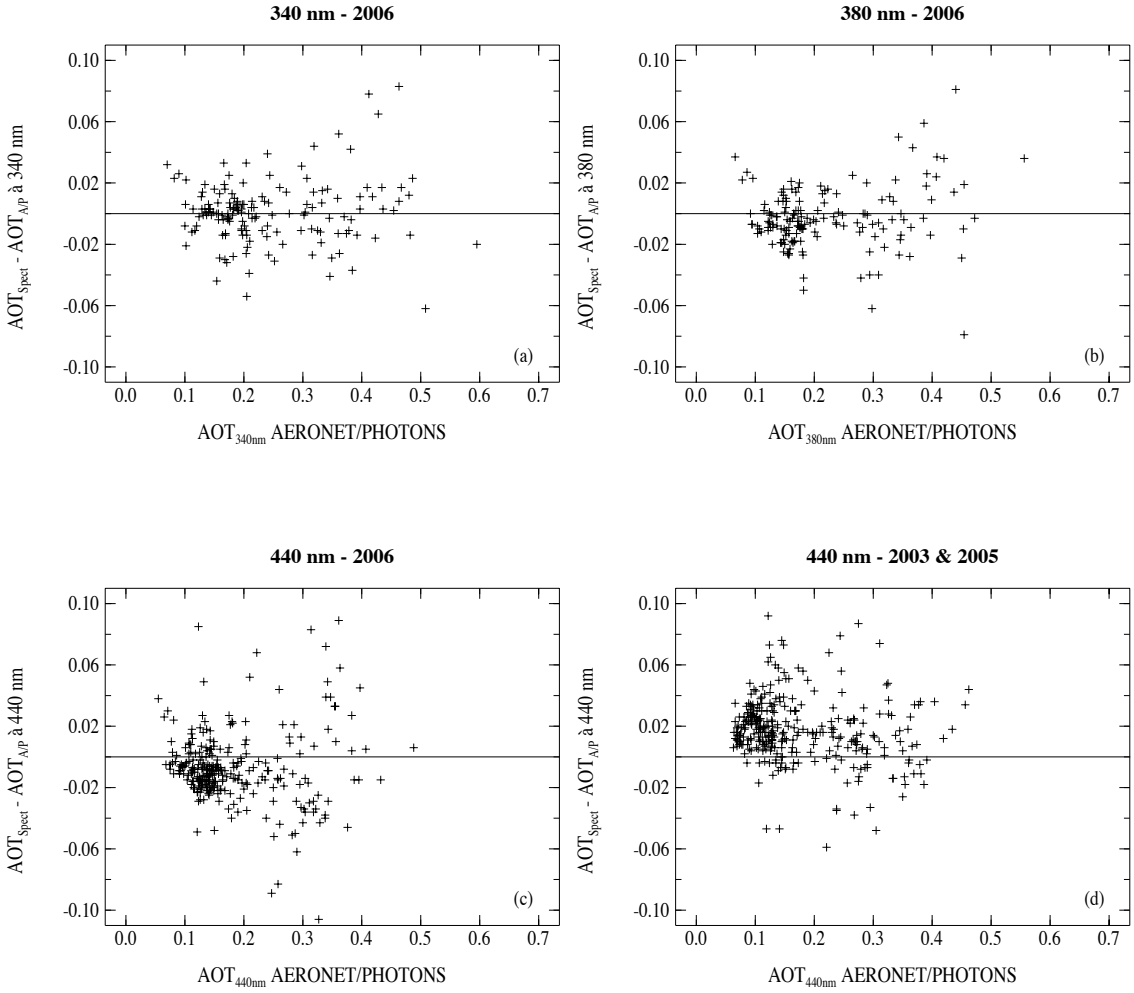

FIG. 2.16 – *Différences entre les épaisseurs optiques des aérosols mesurées par le photomètre solaire AERONET/PHOTONS et par le spectroradiomètre en fonction de l'épaisseur optique des aérosols AERONET/PHOTONS, à* 340 *nm en (a), à* 380 *nm en (b), à* 440 *nm pour l'année* 2006 *en (c) et à* 440 *nm pour les années* 2003 *et fin* 2005 *en (d).*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

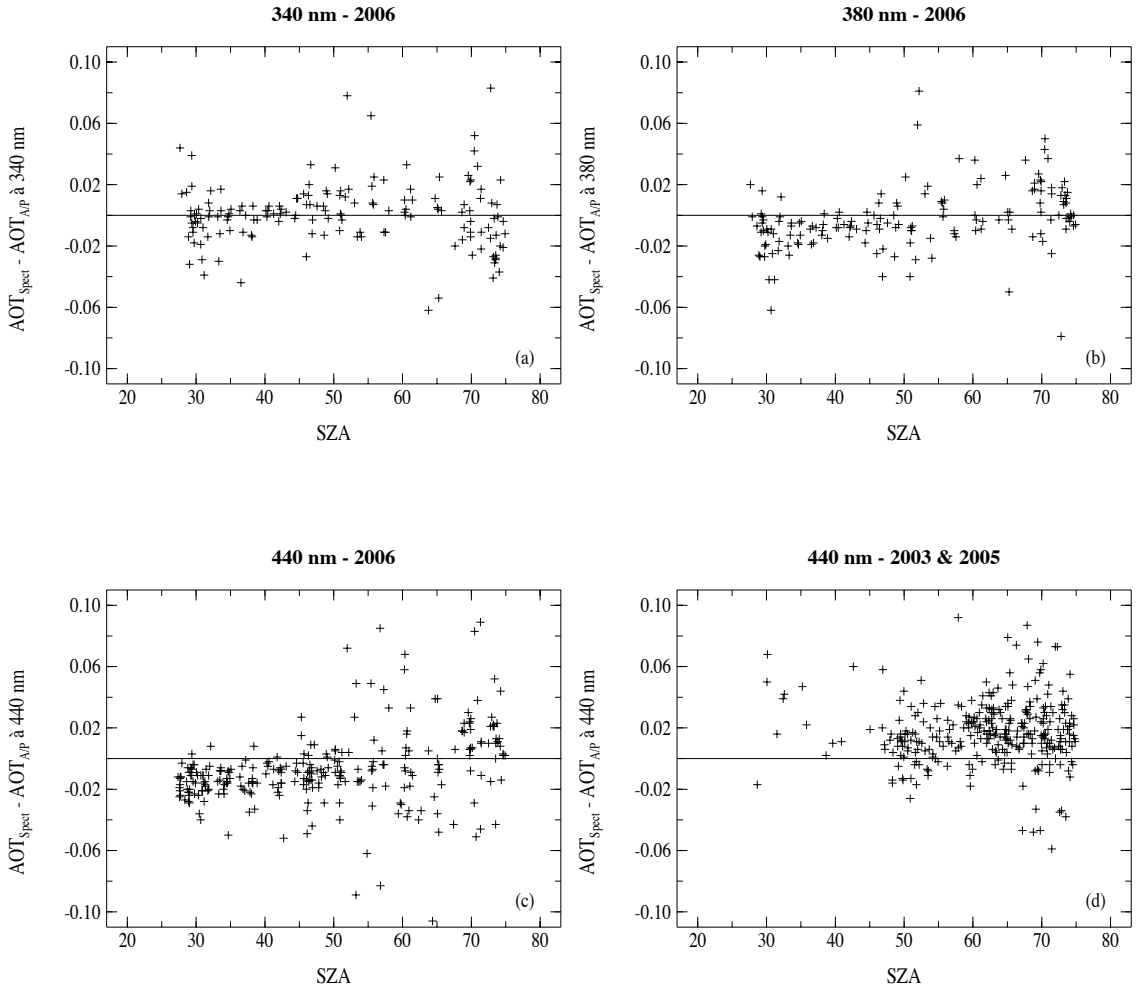

FIG. 2.17 – *Différences entre les épaisseurs optiques des aérosols mesurées par le photomètre solaire AERONET/PHOTONS et par le spectroradiomètre en fonction de l'angle solaire zénithal, à* 340 *nm en (a), à* 380 *nm en (b), à* 440 *nm pour l'année* 2006 *en (c) et à* 440 *nm pour les années* 2003 *et fin* 2005 *en (d).*

La figure 2.17 présente les différences d'AOT en fonction de l'angle solaire zénithal pour les trois longueurs d'onde et les mêmes périodes que la figure 2.16. En 2006 comme on peut le voir sur les figures (b) et (c) (longueurs d'onde 380 et 440 nm) un grand nombre de différences sont positives (négatives) lorsque les SZA sont supérieurs (inférieurs) à 50°. Pour la longueur d'onde 340 nm (figure (a)), ces effets en fonction de SZA apparaîssent de manière moins prononcée. En ce qui concerne les années 2003 – 2005 en (d), on constate également que les différences sont positives lorsque SZA est supérieur à 50° mais il nous est impossible de conclure lorsque SZA est inférieur à 50° en raison du nombre insuffisant de points. Pour les années 2003 et 2005 nous avons une majorité de points où le SZA est supérieur à 50°, en revanche pour l'année 2006 à 440 nm, la majorité des points (environ 2/3) se situe pour des SZA inférieurs à 50°. Ainsi, les différences de comportement entre 2003-2005 et 2006 que nous avons évoquées précédemment (figure 2.15 c et d) apparaissent liées à l'intervalle de SZA couvert pour les conditions de ciel clair imposées.

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Comme nous l'avons vu dans le chapitre 1 (equation 1.8), il est possible de représenter les variations spectrales de l'AOT au moyen de la loi d'Angström. Une régression linéaire en échelle logarithmique de l'AOT déduite des mesures du spectroradiomètre en fonction de la longueur d'onde permet alors d'estimer le coefficient d'Angström, dénommé dans la suite α_{reg}.

Le domaine de longueur d'onde choisi va de 330 à 440 nm. La limite inférieure est fixée à 330 nm car en-dessous de cette valeur, les effets de l'ozone et de la diffusion moléculaire sont trop importants ce qui entraîne une incertitude sur notre AOT élevée comme l'a montré le tableau 15.

Afin d'effectuer une comparaison avec les produits AERONET/PHOTONS, nous avons aussi déterminé un coefficient d'Angström uniquement à partir de l'AOT aux deux longueurs d'onde 340 et 440 nm que ce soit pour le spectroradiomètre et pour le photomètre :

$$\alpha_{2\lambda} = \frac{\ln\left(\frac{\tau_{aer}(340)}{\tau_{aer}(440)}\right)}{\ln\left(\frac{440}{340}\right)}. \tag{2.14}$$

Ainsi un $\alpha_{2\lambda}$ est obtenu avec les AOT du spectroradiomètre ($\alpha_{2\lambda,S}$) et un autre avec les mesures AERONET/PHOTONS ($\alpha_{2\lambda,A/P}$).

L'incertitude sur $\alpha_{2\lambda}$ va dépendre de l'AOT aux à 340 et 440 nm et des incertitudes existant sur ces AOT :

$$\Delta\alpha_{2\lambda} = \frac{1}{\ln\frac{440}{340}} \times \sqrt{\left(\frac{\Delta\tau_{aer}(340)}{\tau_{aer}(340)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta\tau_{aer}(440)}{\tau_{aer}(440)}\right)^2}. \tag{2.15}$$

Plus l'incertitude sur la restitution des AOT sera élevée et plus l'incertitude $\Delta\alpha_{2\lambda}$ sera grande.

La comparaison entre $\alpha_{2\lambda,S}$ et α_{reg} est effectuée sur la figure 2.18 : la corrélation est très significative (r = 0.99), la pente de la droite de régression est proche de l'unité, elle est égale à 0.98, et l'ordonnée à l'origine vaut 0.04. Les différences existant entre les deux valeurs sont dues aux oscillations prises en compte dans le calcul de α_{reg} et aussi au fait que l'intervalle de longueur d'onde utilisé pour la détermination de chaque coefficient $\alpha_{2\lambda,S}$ et α_{reg} est différent. Etant donné le bon accord observé, l'utilisation de deux longueurs d'onde semble être suffisante pour estimer un coefficient d'Angström représentatif du comportement spectral de l'épaisseur optique des aérosols dans le domaine 330 - 440 nm.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

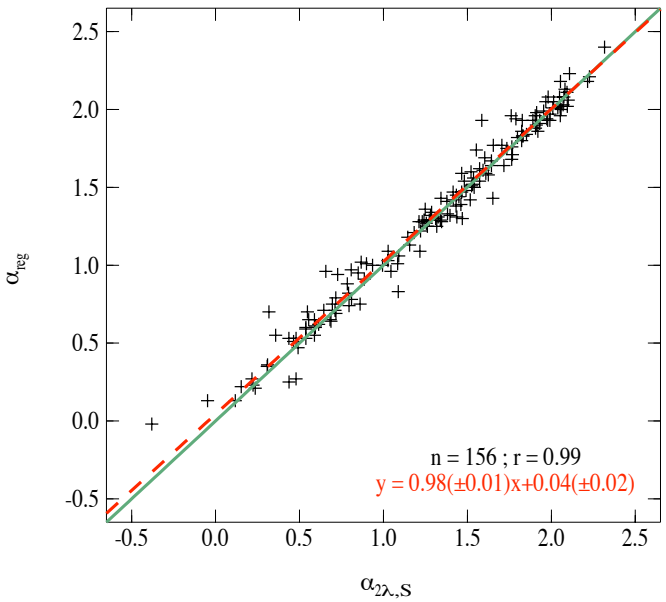

FIG. 2.18 – *Comparaison des deux coefficients d'Angström déduits des mesures du spectroradiomètre, pour les longueurs d'onde* 340 *et* 440 *nm* ($\alpha_{2\lambda,S}$, *en abscisse) et par regression* (α_{reg}, *en ordonnée) à VdA en* 2006. *La première bissectrice est représentée en vert, la droite de régression en rouge.*

Après avoir observé le bon accord entre les deux coefficients d'Angström déduits du spectroradiomètre, nous avons comparé $\alpha_{2\lambda,S}$ avec celui déduit des mesures AERONET/PHOTONS ($\alpha_{2\lambda,A/P}$). Nous avons moyenné les $\alpha_{2\lambda,A/P}$ sur 30 minutes d'intervalle.

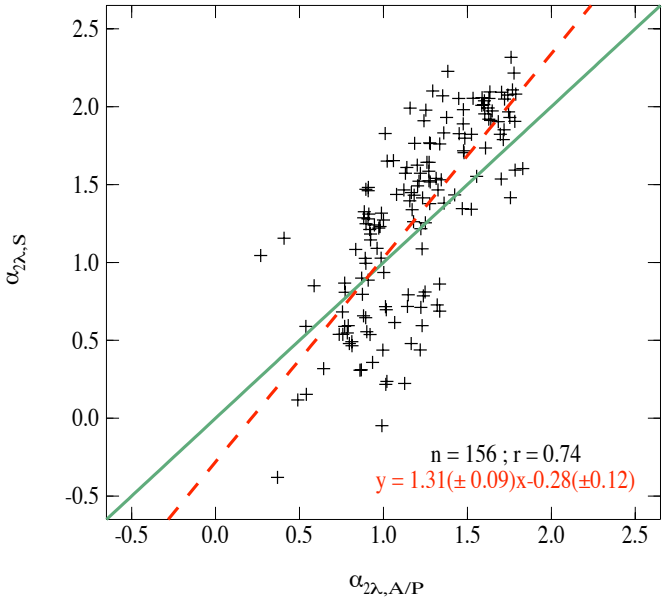

FIG. 2.19 – *Comparaison entre les coefficients d'Angström calculés à partir des AOT à* 340 *et* 440 *nm du spectroradiomètre en ordonnée et des photomètres solaires AERONET/PHOTONS en abscisse à VdA en* 2006. *La première bissectrice est représentée en vert, la droite de régression en rouge.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Le graphique de $\alpha_{2\lambda,S}$ en fonction de $\alpha_{2\lambda,A/P}$ (figure 2.19) présente un accord moins satisfaisant, le coefficient de corrélation vaut 0.74, la pente est éloignée de l'unité ($= 1.31$) et l'ordonnée à l'origine vaut -0.28. Ces comparaisons montrent que le produit issu des mesures du spectroradiomètre est peu satisfaisant.

La figure 2.20 montre la variation de $\alpha_{2\lambda,S}$ en fonction de l'AOT déduite des mesures du spectroradiomètre à 440 nm. Cette variation indique que les coefficients d'Angström élevés, c'est à dire des petits aérosols, sont obtenus pour des faibles valeurs d'AOT.

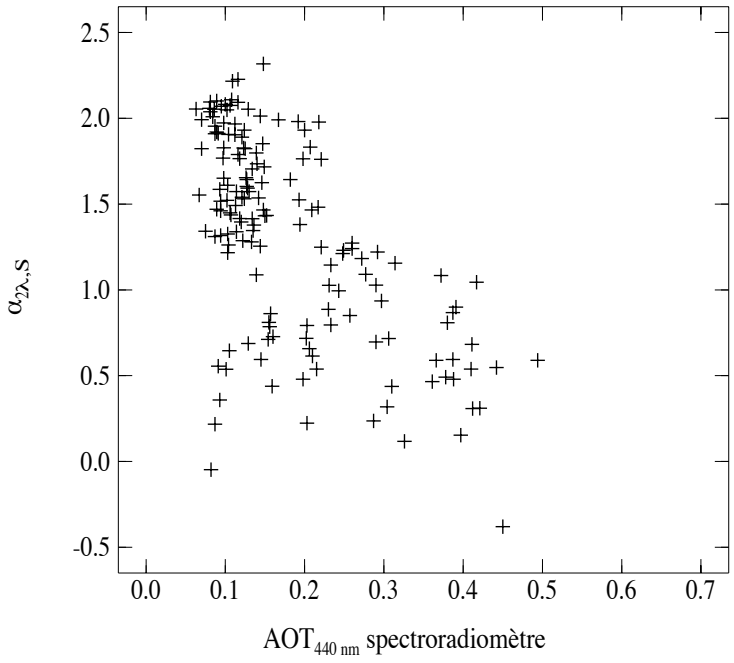

FIG. 2.20 – *Coefficient d'Angström du spectroradiomètre en fonction de l'AOT déduite des mesures du spectroradiomètre à* 440 *nm à VdA en* 2006.

La figure 2.21 montre que les différences entre $\alpha_{2\lambda,S}$ et $\alpha_{2\lambda,A/P}$ sont généralement plus élevées quand les AOT déduites des mesures du spectroradiomètre à 440 nm sont faibles. Cela sous-entend la difficulté à estimer un coefficient d'Angström pour des faibles AOT.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

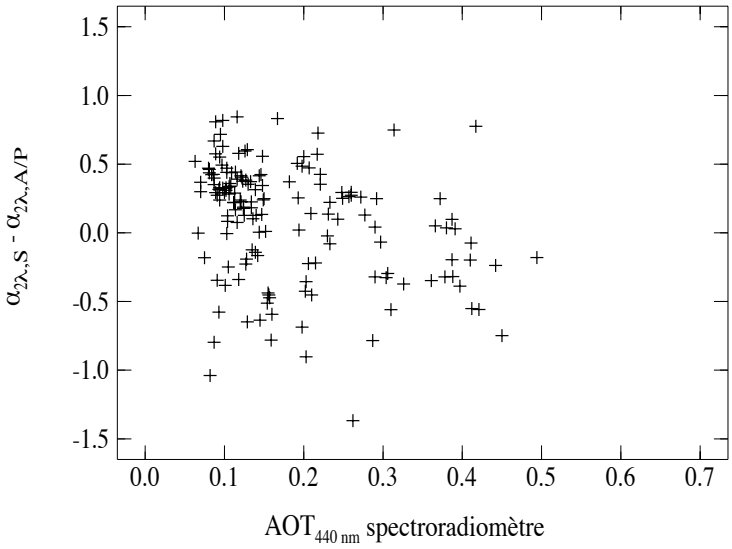

FIG. 2.21 – *Différences entre $\alpha_{2\lambda,S}$ et $\alpha_{2\lambda,A/P}$ en fonction de l'AOT déduite des mesures du spectroradiomètre à* 440 *nm à VdA en* 2006.

La figure 2.22 montre qu'il existe également une corrélation entre les différences existant entre les AOT déduites des mesures du spectroradiomètre et d'AERONET/PHOTONS avec $\alpha_{2\lambda,A/P}$. Les plus faibles différences d'AOT sont obtenues pour les plus grandes valeurs de $\alpha_{2\lambda,A/P}$, c'est à dire pour des petits aérosols.

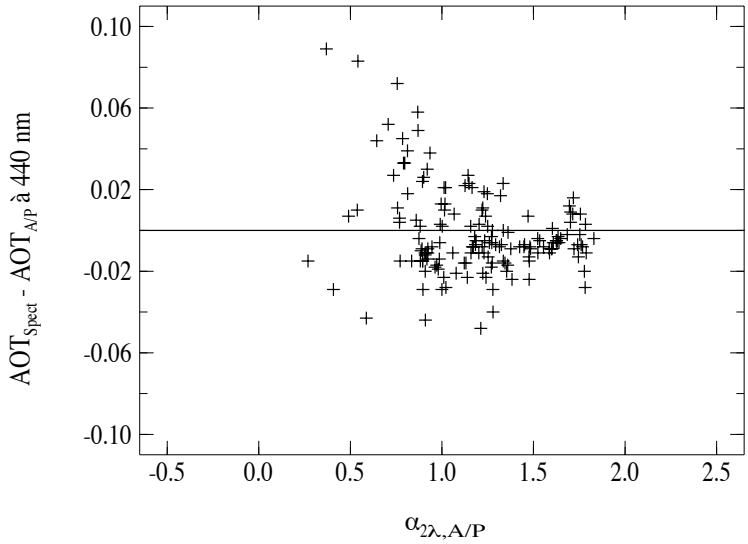

FIG. 2.22 – *Différences entre les AOT déduites des mesures du spectroradiomètre et des photomètres à* 440 *nm en fonction de $\alpha_{2\lambda,A/P}$ à VdA en* 2006.

La figure 2.23 (a) présente un exemple de variation journalière des AOT à 340 et 440 nm pour la journée du 17 juillet 2006. Les barres d'incertitudes sont également reportées. Pour les AOT déduites des mesures du spectroradiomètre, nous avons considéré

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

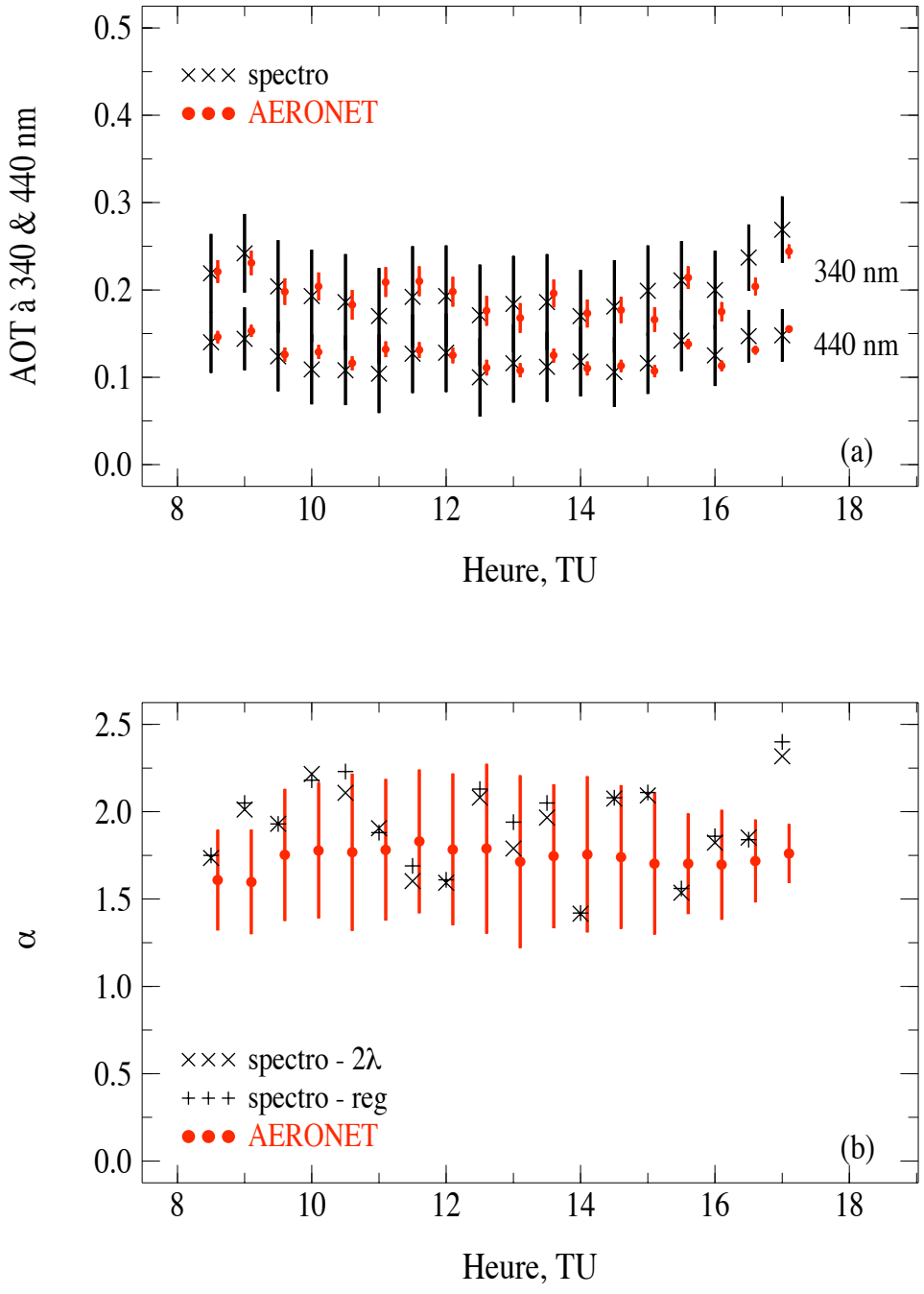

FIG. 2.23 – *Figure (a) : Variation journalière des AOT à* 340 *et* 440 *nm déduites des mesures du spectroradiomètre (X noirs) et d'AERONET/PHOTONS (points rouges) le* 17 *juillet* 2006. *Figure (b) : Variation journalière des coefficients d'Angström déduits des mesures du spectroradiomètre (+ et X noirs) et d'AERONET/PHOTONS (points rouges). Nous avons reporté les incertitudes sur les valeurs AERONET/PHOTONS mais pas celles sur les valeurs du spectroradiomètre car elles sont trop élevées.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

celles du tableau 15. Concernant les AOT AERONET/PHOTONS, la dispersion autour de la moyenne effectuée ainsi que les incertitudes officielles ont été prises en compte, nous avons considéré la valeur la plus élevée des deux. Les AOT retrouvées avec le spectroradiomètre sont en très bon accord avec celles mesurées par les photomètres, les variations journalières sont très bien représentées. Les variations journalières des coefficients d'Angström sont présentées sur la figure 2.23 (b). Les deux coefficients d'Angström du spectroradiomètre (+ et x noires) sont en très bon accord comme nous l'avions montré sur la figure 2.18. En revanche, les coefficients d'Angström AERONET/PHOTONS (points rouges) présentent des écarts très importants avec les valeurs du spectroradiomètre. Toutefois les valeurs du spectroradiomètre sont généralement situées dans les barres d'incertitudes de $\alpha_{2\lambda,A/P}$. D'après l'équation 2.15, les incertitudes sur les coefficients d'Angström sont dépendantes des incertitudes liées à la détermination des AOT. Comme les incertitudes sur les AOT AERONET/PHOTONS sont plus faibles que celles sur les AOT déduites des mesures du spectroradiomètre (figure 2.23(a)), les incertitudes sur $\alpha_{2\lambda,A/P}$ sont moins grandes que celles sur $\alpha_{2\lambda,S}$. Cependant, malgré la faible incertitude sur les AOT AERONET/PHOTONS, l'incertitude sur $\alpha_{2\lambda,A/P}$ est élevée (figure 2.23(b)), on notera également l'effet de la petitesse de l'intervalle spectral à partir duquel on détermine $\alpha_{2\lambda}$. Concernant les incertitudes sur les produits du spectroradiomètre, $\alpha_{2\lambda,S}$, des valeurs supérieures à 1 voire 2 sont généralement obtenues, c'est pourquoi nous ne les avons pas tracées sur la figure 2.23(b)).

En conclusion, la comparaison des épaisseurs optiques des aérosols est très satisfaisante aux trois longueurs d'onde. Les coefficients de corrélation observés le confirment ainsi que les pentes de chaque droite de régression très proches de l'unité et les ordonnées à l'origine proches de zéro. Les écarts-type sont inférieurs ou égaux à 0.03, ce qui se situe dans le domaine d'incertitude des AOT retrouvées à partir des mesures du spectroradiomètre. En revanche, la comparaison des coefficients d'Angström montre qu'il est difficile d'estimer ce paramètre, surtout lorsque les épaisseurs optiques sont faibles.

Le travail réalisé sur le site de VdA va permettre d'évaluer sur une période de plusieurs années, une éventuelle évolution des propriétés optiques des aérosols, AOT et α, dans l'UV. Les AOT spectrales retrouvées peuvent de plus être utilisées pour valider les produits aérosols des capteurs satellitaires comme OMI, ce que nous verrons dans le chapitre 3.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.3.2 Détermination de l'albédo de diffusion simple dans l'UV - visible

L'albédo de diffusion simple représente la capacité d'absorption des aérosols. En complément de l'AOT, une connaissance approfondie de ce paramètre est nécessaire afin de quantifier l'impact des aérosols sur le climat et sur le rayonnement UV à la surface. De plus une meilleure connaissance des caractéristiques régionales de l'albédo de diffusion simple dans l'UV permettrait de diminuer les erreurs dans l'estimation de l'éclairement UV à la surface à partir des instruments satellitaires [Krotkov et al., 2005; Arola et al., 2005]. Toutefois ce paramètre est particulièrement difficile à estimer à cause des incertitudes existant sur les mesures sol photométriques et satellitaires dans l'UV et le visible [Petters et al., 2003; Bais et al., 2005; Torres et al., 1998].

Dans cette section, nous présentons une méthode d'inversion permettant de restituer l'albédo de diffusion simple des aérosols (ω_0) à partir des mesures d'éclairements spectraux qui s'inspire des travaux de Petters et al. [2003] et Bais et al. [2005]. Ensuite, nous présentons des exemples d'application à partir des mesures du spectroradiomètre de VdA. Enfin nous comparons les ω_0 que nous avons obtenus à 440 nm avec ceux dérivés des mesures AERONET/PHOTONS.

2.3.2.1 Méthode

Afin de déterminer ω_0, l'approche générale consiste à coupler les mesures de flux plans au sol avec un modèle de transfert radiatif comme le proposent Petters et al. [2003] et Bais et al. [2005]. Le principe consiste à modéliser des éclairements spectraux directs, diffus et globaux en faisant varier la valeur de ω_0 en entrée du code. Ensuite, les éclairements globaux, diffus simulés et le rapport des éclairements direct/diffus (noté dr/df dans la suite) obtenus pour chaque ω_0 sont comparés aux mêmes quantités spectrales mesurées par les instruments au sol. Nous avons de nouveau utilisé le code de transfert DISORT et nous rappelons que les paramètres d'entrée du code sont le contenu en ozone, le facteur d'asymétrie (g), l'angle solaire zénithal (SZA), l'albédo de sol (ρ_s) et pour chaque longueur d'onde à laquelle on veut travailler, l'éclairement hors atmosphère (ET) et l'AOT. Le rapport dr/df est particulièrement intéressant car il ne dépend pas du spectre ET.

Nous avons appliqué cette méthode aux mesures du spectroradiomètre à VdA suivant l'organigramme de la figure 2.24. La quantité d'ozone (partie 3.1.1) et l'AOT (partie 2.3.1) sont des grandeurs déduites des mesures du spectroradiomètre. Le coefficient d'asymétrie (g) est supposé égal à 0.7 pour toutes les longueurs d'onde et pour tous les jours d'étude. Nous avons choisi cette valeur car selon Madronich [1993], g varie entre 0.6 et 0.8 dans le domaine de longueur d'onde UV. De plus, une étude faite par Bais et al. [2005] avec l'utilisation d'un code de Mie permettant de générer une fonction de phase a montré que pour des aérosols de type urbains, g vaut 0.7 à 340 nm. En complément, nous

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

avons examiné les valeurs fournies par AERONET/PHOTONS et une valeur moyenne de 0.70 ± 0.02 est observée à 440 nm à VdA. Suite à une étude de sensibilité du ω_0 à g, nous avons trouvé qu'une variation de g de 0.68 à 0.72 engendre une variation de 0.01 sur la valeur de ω_0. L'albédo de sol est supposé égal à 0.02 pour toutes les longueurs d'onde [Feister et Grewe, 1995]. Comme pour l'étude des AOT, nous travaillons uniquement par ciel clair.

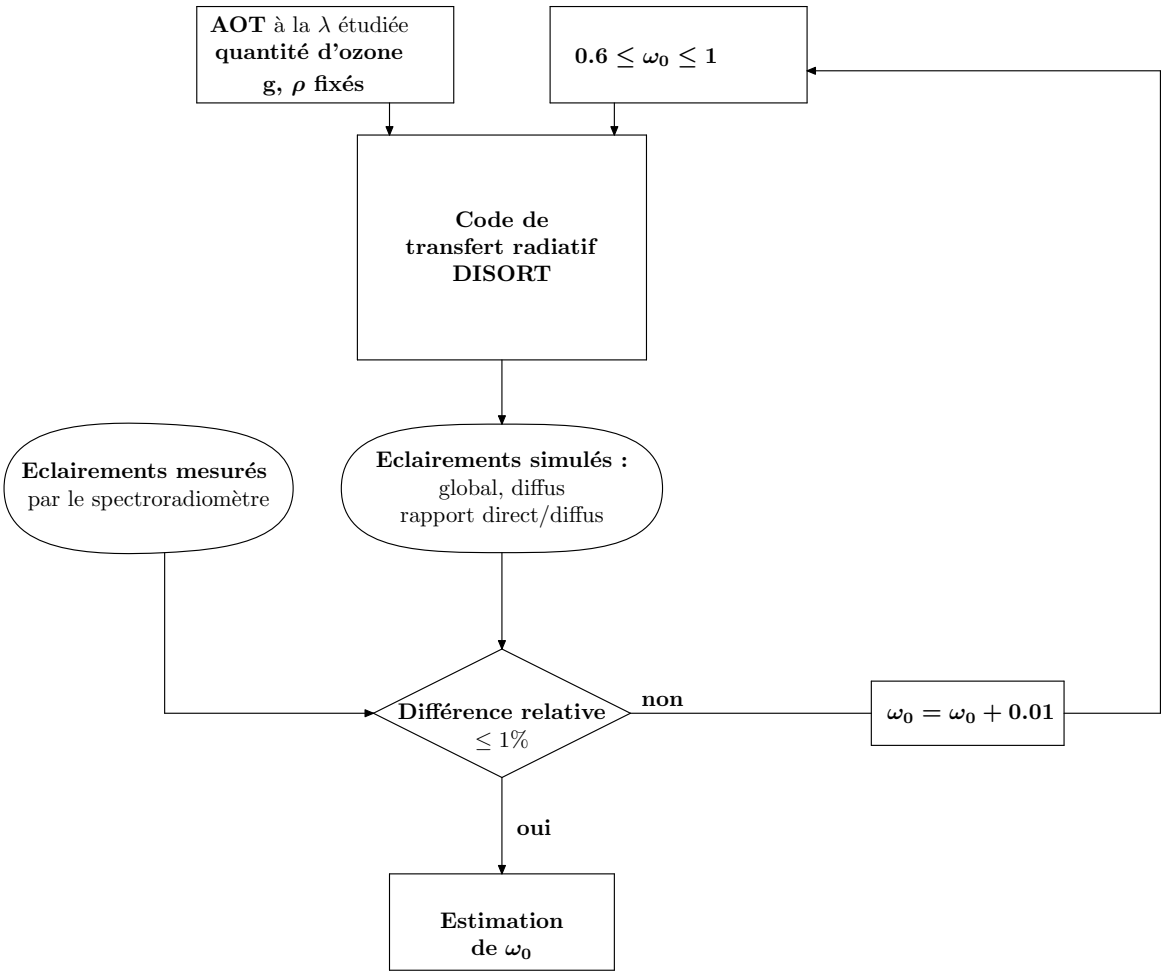

FIG. 2.24 – *Organigramme de la procédure d'inversion pour estimer l'albédo de diffusion simple des aérosols.*

Dans notre procédure d'inversion, nous déterminons les valeurs de ω_0 pour lesquelles la mesure et la modélisation sont en accord à 1% près. Nous avons choisi 1% pour suivre les études de Bais et al. [2005], faites avec un spectroradiomètre Brewer à Thessaloniki en Grèce. La sensibilité à la variation de ω_0 des trois quantités, flux global, diffus et le rapport dr/df utilisée pour déterminer une valeur de ω_0, est présentée dans la partie suivante.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.3.2.2 Sensibilité au ω_0 en fonction du SZA et de l'AOT.

Afin de déterminer la sensibilité des différents flux à ω_0 en fonction de SZA ou de l'AOT plusieurs simulations ont été réalisées. Celles-ci ont été obtenues en prenant un ω_0 variant de 0.6 à 1 avec un pas de 0.05. La figure 2.25 présente la variation du flux global normalisé[3] par rapport au flux global obtenu pour $\omega_0 = 1$ en fonction de l'AOT, pour 2 SZA différents à 380 nm.

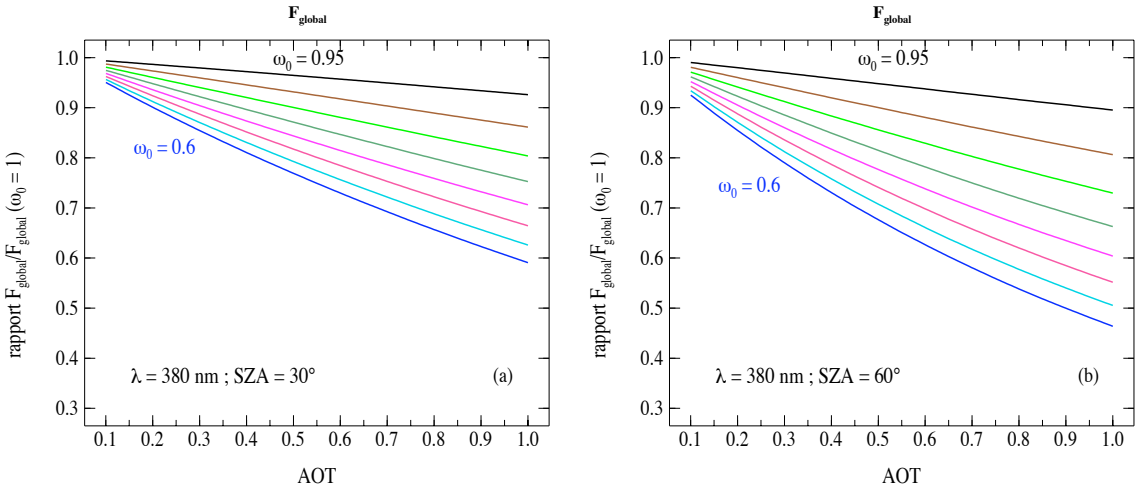

FIG. 2.25 – *Sensibilité du rapport $F_{global}(\omega_0)/F_{global}(\omega_0 = 1)$ à 380 nm en fonction de l'AOT et de ω_0, pour deux SZA : 30° (a) et 60° (b).*

Des études analogues sont effectuées pour l'éclairement diffus présenté sur la figure 2.26 et pour le rapport dr/df présenté sur la figure 2.27.

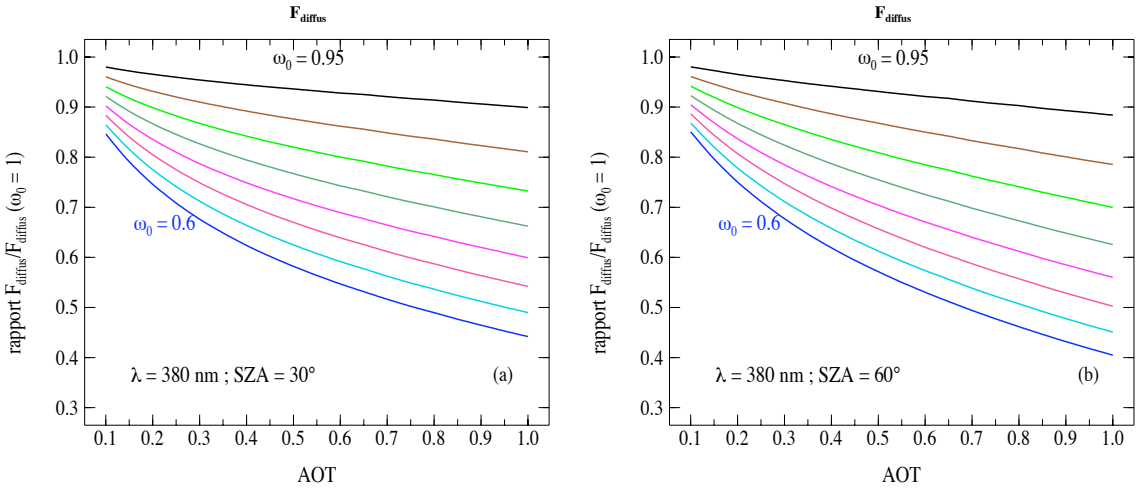

FIG. 2.26 – *Même légende que la figure 2.25 mais pour le rapport $F_{diffus}(\omega_0)/F_{diffus}(\omega_0 = 1)$.*

[3]Le flux global est normalisé par rapport au flux global obtenu pour $\omega_0 = 1$ afin de mettre en évidence la sensibilité de celui-ci par rapport à une variation de ω_0.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

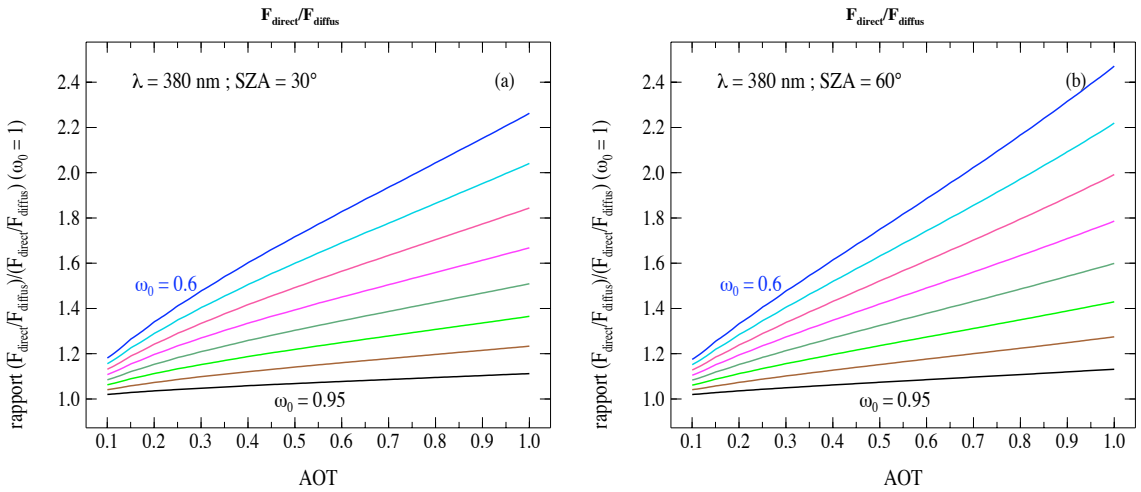

FIG. 2.27 – *Même légende que la figure 2.25 mais pour le rapport* $(F_{direct}/F_{diffus})/(F_{direct}/F_{diffus}(\omega_0 = 1))$ *en fonction de l'AOT et de* ω_0*, pour deux SZA : 30°* (a) *et 60°* (b).

Les figures 2.25, 2.26 et 2.27 montrent que les différentes quantités (flux global, diffus et dr/df) sont plus sensibles à ω_0 si l'AOT ou le SZA sont élevés. D'autre part, pour un SZA ou une AOT fixé, c'est le rapport dr/df qui présente la plus grande sensibilité à ω_0.

Les incertitudes à la fois sur les mesures d'éclairement et sur les paramètres d'entrée du code vont contribuer à l'incertitude sur le ω_0 retrouvé et comme le montrent les figures 2.25, 2.26 et 2.27, cette incertitude va dépendre de SZA et de l'AOT. Plus la valeur de SZA ou de l'AOT sera faible, plus l'incertitude sur le ω_0 retrouvé sera grande.

A partir des incertitudes existant sur la mesure des trois quantités (voir chapitre 1) et les études de sensibilité ci-dessus nous avons quantifié les incertitudes sur l'estimation de ω_0 pour deux AOT et deux SZA différents. Ces incertitudes sont résumées dans le tableau 2.4.

TAB. 2.4 – *Incertitudes sur l'estimation de* ω_0 *à partir des mesures des éclairements global, diffus et du rapport dr/df à 380 nm pour deux AOT et deux SZA.*

Quantité	flux global		flux diffus		rapport dr/df	
AOT	0.2	0.4	0.2	0.4	0.2	0.4
$\Delta\omega_0$						
SZA = 30°	0.16	0.09	0.08	0.05	0.06	0.04
SZA = 60°	0.13	0.07	0.08	0.05	0.06	0.04

Les incertitudes retrouvées sont cohérentes avec celles retrouvées par Bais et al. [2005] et Petters et al. [2003]. Les incertitudes les plus élevées sont obtenues à partir du flux global qui est la quantité la moins sensible aux variations de ω_0. La quantité la plus apte

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

à déterminer ω_0 est le rapport dr/df, car c'est le plus sensible aux variations de cette grandeur. Nous remarquons également dans ce tableau que l'incertitude sur ω_0 varie en fonction de l'AOT et pour le flux global, du SZA. L'incertitude augmente lorsque l'AOT et le SZA diminue. Ainsi selon l'AOT et le SZA, plusieurs valeurs de ω_0 vont être restituées à partir des trois quantités. De plus le nombre de valeurs sera fonction de la quantité choisie.

Ces études de sensibilité ont également été réalisées pour les longueurs d'ondes 340 et 440 nm et ont abouti aux mêmes conclusions.

2.3.2.3 Application aux mesures du spectroradiomètre

A chaque longueur d'onde du spectre, nous obtenons une valeur moyenne de ω_0. Si l'on compare les ω_0 moyens obtenus à deux longueurs d'onde voisines, généralement les valeurs sont différentes. Comme nous venons de le voir, l'inversion de ω_0 dépend de l'AOT déduite à partir des mesures du spectroradiomètre. Cependant, l'AOT restituée par le spectroradiomètre présente des oscillations comme nous l'avons vu dans la partie (2.3.1). Or les tests de sensibilité ont mis en évidence que pour une faible AOT, l'incertitude sur l'inversion de ω_0 peut être importante. Les variations de l'AOT sur un intervalle spectral vont donc induire une variation importante sur la restitution de ω_0 en fonction de la longueur d'onde. Afin d'éviter des fluctuations trop importantes du ω_0 nous avons donc utilisé une AOT lissée[4] correspondant à une variation plus réaliste de l'AOT en fonction de la longueur d'onde.
La figure 2.28 présente des exemples de variations spectrales de ω_0 sur 5 nm autour de 340 nm. Sur la figure 2.28(a) des AOT brutes sont utilisées dans l'inversion de ω_0 ; sur la figure 2.28(b) des AOT lissées sont utilisées. Les ω_0 déduits des trois quantités sont représentés par différentes couleurs.

[4]Application d'une fonction triangle de FWHM=4 nm sur l'AOT brute restituée à partir du spectroradiomètre (même que dans la partie 2.3.1).

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

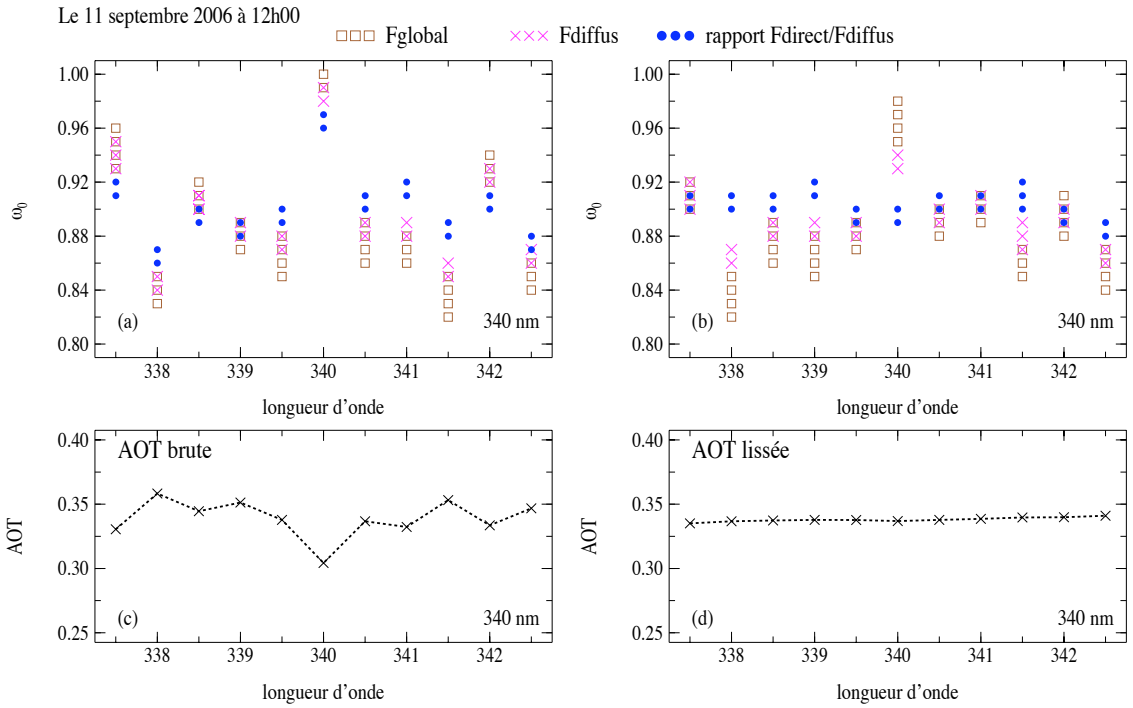

FIG. 2.28 – *Exemple des variations spectrales autour de la longueur d'onde* 340 *nm, des* ω_0 *retrouvés à partir du flux global (carrés marrons), du flux diffus (croix roses) et du rapport dr/df (cercles bleus) mesurés le* 11/09/2006 *à* 12*h*00. *Pour la figure en (a), les AOT brutes correspondant à chaque longueur d'onde (tracées en c) sont introduites dans le code de transfert radiatif. Pour la figure en (b) ce sont les AOT lissées (tracées en d) qui sont introduites dans le code de transfert radiatif.*

Comme nous l'avons évoqué plus haut, à chaque longueur d'onde, plusieurs valeurs de ω_0 sont obtenues à partir des flux global, diffus et du rapport dr/df. Ces différentes valeurs sont représentées sur les figures 2.28(a) et (b) par des symboles identiques. Nous remarquons sur ces figures que si nous utilisons le rapport dr/df, l'écart entre les valeurs extrêmes de ω_0 est le plus faible.

De plus, nous constatons sur la figure 2.28(a) que lorsque les AOT brutes sont utilisées dans l'inversion, de grandes variations des ω_0 apparaissent en fonction de la longueur d'onde et ceci quelle que soit la quantité utilisée. En revanche, les valeurs de ω_0 obtenues à partir des AOT lissées (figure 2.28(b)) n'oscillent pas autant en fonction de la longueur d'onde, particulièrement pour le rapport dr/df. Toutefois, afin de réduire les erreurs que nous pourrions faire sur la valeur de ω_0 déterminé à une longueur d'onde, à cause d'une AOT mal restituée ou bien d'une mesure incorrecte à cette longueur d'onde (suite à un mauvais recalage du spectre par exemple), nous avons décidé de tenir compte des ω_0 obtenus aux longueurs d'onde voisines. Nous avons choisi d'effectuer une moyenne des ω_0 obtenus sur un intervalle de 5 nm, soit 2.5 nm avant et après la longueur d'onde centrale.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Les figures 2.29 et 2.30 présentent un exemple de ω_0 retrouvés à 340 nm en (a), à 380 nm en (b) et à 440 nm en (c) à partir du flux global, du flux diffus et du rapport dr/df. Afin d'obtenir les ω_0, deux étapes ont été nécessaires. La première étape a consisté à prendre, pour chaque longueur d'onde, la moyenne des valeurs extrêmes de ω_0 obtenues à partir de chaque quantité. La seconde étape a consisté à effectuer une moyenne des ω_0 obtenus précédemment sur 5 nm autour de la longueur d'onde nominale. Les barres représentent les écarts-type correspondant à cette deuxième opération. Deux journées, différentes par leur contenu en aérosol, sont étudiées ; la journée du 14 juillet 2006 (figure 2.29) est caractérisée par une AOT faible au cours de la journée (les moyennes journalières valent 0.163, 0.139, 0.112 à 340, 380 et 440 nm respectivement) et la journée du 11 septembre 2006 (figure 2.30) est caractérisée par une AOT plus élevée (les moyennes pour la journée sont de 0.330, 0.300, 0.255 à 340, 380 et 440 nm respectivement) :

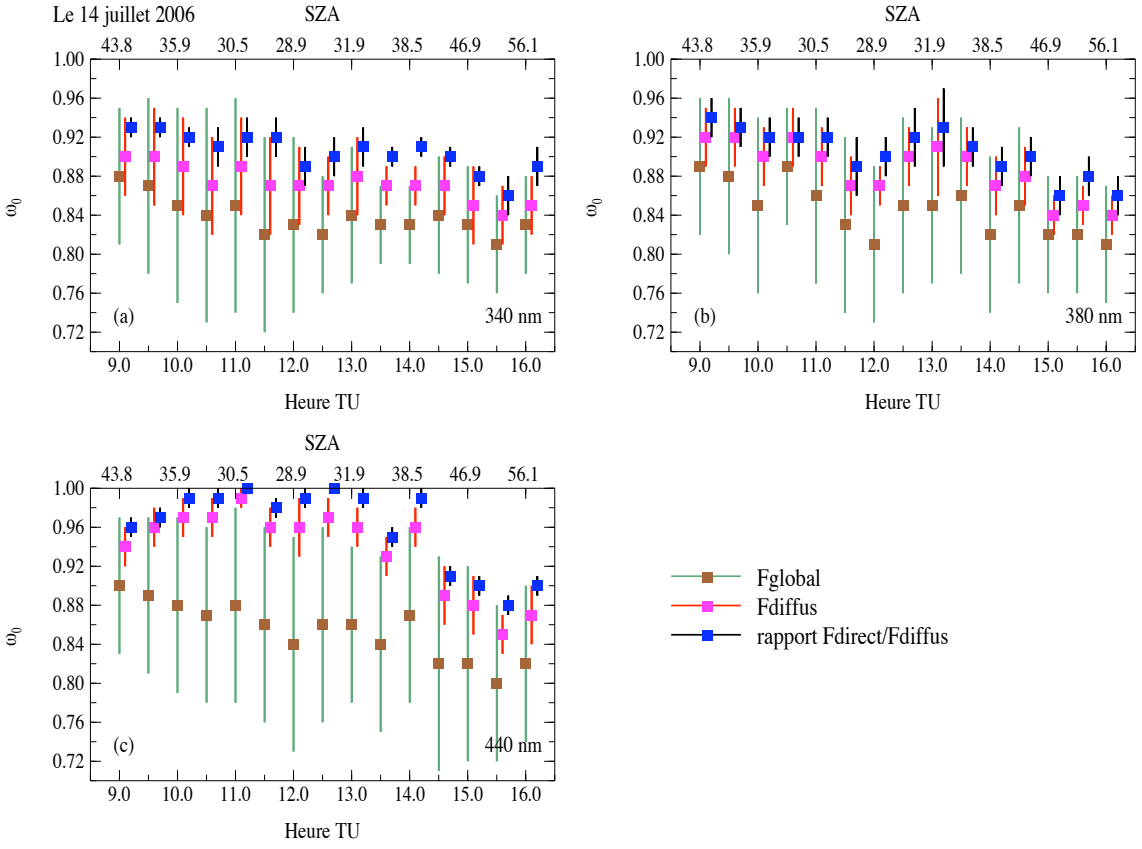

FIG. 2.29 – *ω_0 retrouvés à partir du flux global, du flux diffus et du rapport direct/diffus pour la journée du 14 juillet 2006 à 340 nm en (a), à 380 nm en (b) et à 440 nm en (c), les écarts-type relatifs à l'ensemble des valeurs obtenues sur les 5 nm autour de chaque longueur d'onde sont représentés.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

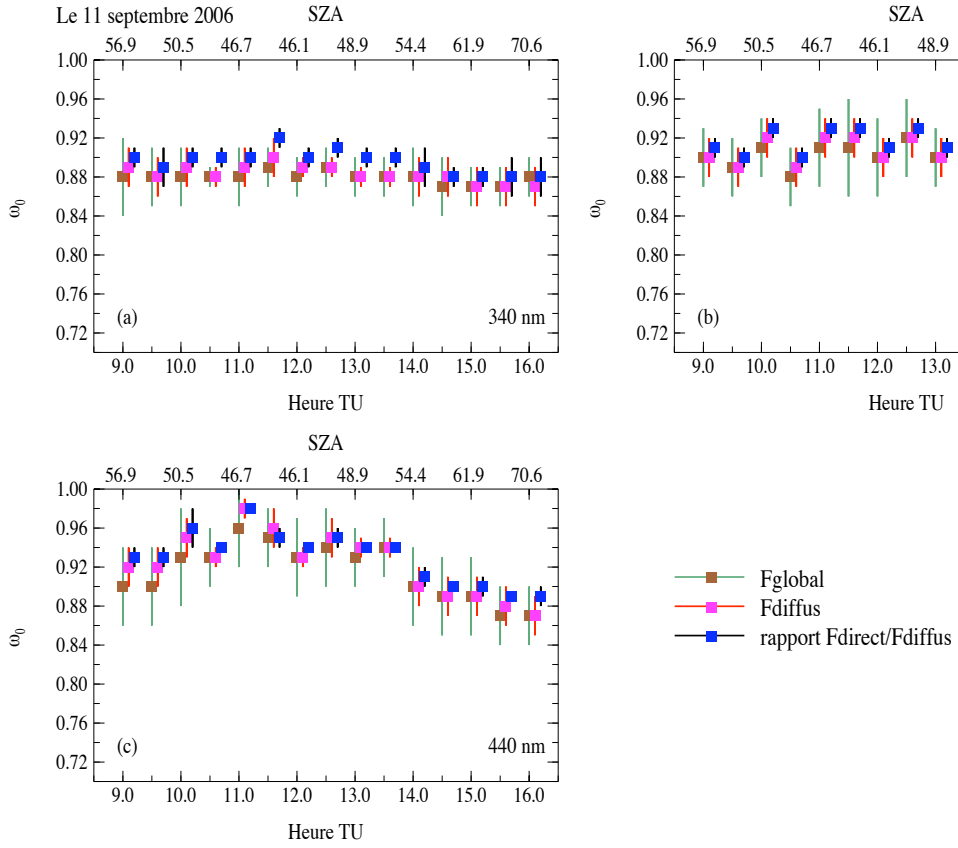

FIG. 2.30 – *Même légende que la figure 2.29 mais pour le* 11 *septembre* 2006.

Comme prévu, les ω_0 retrouvés à partir du flux global ont les écarts-type les plus élevés (barre verte) lors des deux journées alors que les ω_0 retrouvés à partir du rapport dr/df (barre noire) possèdent les écarts-type les plus faibles. Ce résultat est cohérent avec ce que nous avons vu précédemment, le flux global est la quantité la moins sensible aux variations de ω_0 contrairement au rapport dr/df. D'autre part, quelle que soit la grandeur utilisée, la journée du 14 juillet (AOT faible) présente des écarts-type plus élevés que la journée du 11 septembre (AOT élevée). Un dernier point à noter est le 11 septembre, lorsque l'AOT est la plus élevée, les ω_0 moyens issus des trois grandeurs sont du même ordre de grandeur (figure 2.30), ce qui n'est pas le cas lorsque l'AOT est faible (14 juillet) (figure 2.29).

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Nous avons constaté précédemment que le rapport dr/df est la quantité la plus sensible aux variations de ω_0 pour des AOT les plus faibles et que les résultats semblent plus fiables. C'est pourquoi dans la suite, nous présentons les résultats de ω_0 obtenus à partir de cette quantité.

Comme nous l'avons souligné dans la première partie de ce chapitre, il existe différents spectres ET dans le domaine spectral 280 - 450 nm. Concernant les longueurs d'onde 340 et 380 nm, nous avons regardé l'impact des AOT déterminées à partir de deux spectres ET différents, Atlas3 et le spectre de "Thuillier", sur la restitution de ω_0. Rappelons que le rapport dr/df ne dépend pas du spectre ET et donc seul l'effet de l'AOT est mis en évidence. La figure 2.31 présente les résultats obtenus pour la longueur d'onde 340 nm :

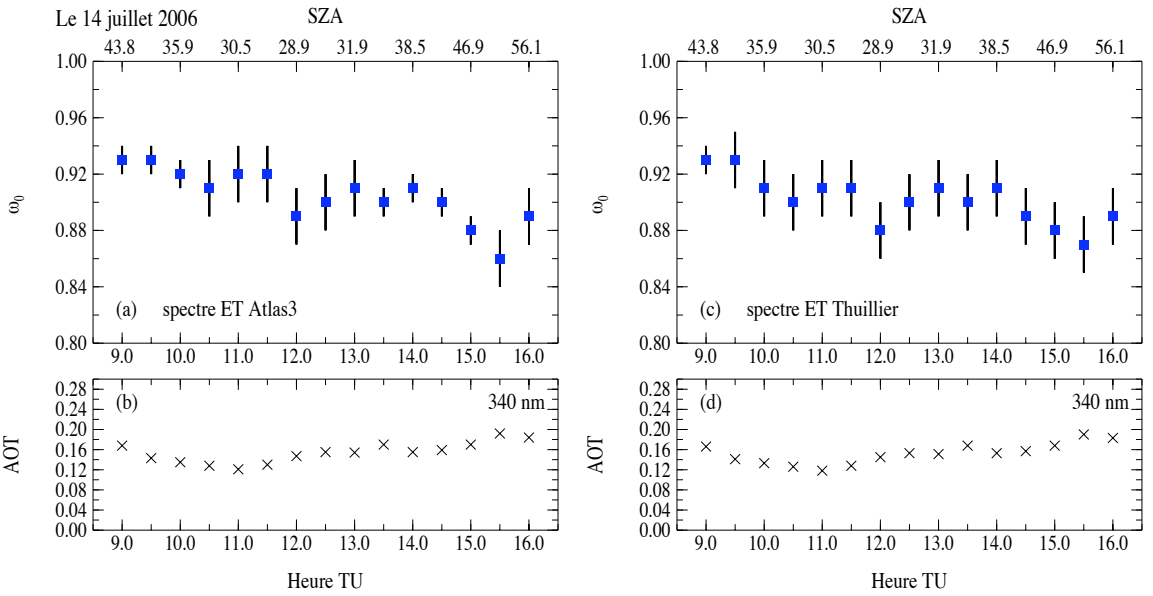

FIG. 2.31 – ω_0 *retrouvé à* 340 *nm à partir du spectre ET Atlas*3 *en (a) et de "Thuillier" en (c) pour le* 14 *juillet* 2006. *AOT retrouvées à partir du spectroradiomètre à* 340 *nm avec le spectre Atlas*3 *en (b) et le spectre de "Thuillier" en (d).*

Dans un premier temps, nous pouvons remarquer que les AOT lissées obtenues à partir d'Atlas3 (figure 2.31b) et du spectre de "Thuillier" (figure 2.31d) sont sensiblement les mêmes à 340 nm (écart maximum = 0.003). Les ω_0 calculés à partir de ces AOT sont aussi très proches avec une variation journalière similaire. La principale différence entre les deux figures se situe au niveau des écarts-type pour certaines heures de la journée. Les écarts-type sont les plus élevés avec le spectre ET de "Thuillier", signifiant que les variations spectrales de ω_0 sur 5 nm autour de 340 nm sont plus importantes avec ce spectre. Nous avons réalisé la même étude à 380 nm qui a conduit au même résultat.

A 440 nm, nous disposons des spectres ET de "Thuillier" et de "Slaper". Or, lors de notre étude sur les AOT du spectroradiomètre, nous avons déduit que les AOT obtenues avec le spectre de "Thuillier" étaient en meilleur accord avec celles d'AERONET/PHOTONS et que les éclairements du spectre de "Slaper" étaient trop élevés pour obtenir des AOT

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

convenables. Cependant ce spectre possède la meilleure résolution spectrale. Notre souhait est donc de conserver le niveau radiométrique du spectre de "Thuillier" et de posséder la résolution spectrale du spectre de "Slaper". Pour cela, nous avons essayé de déterminer un nouveau spectre, uniquement entre 400 et 450 nm, qui posséderait ces deux caractéristiques. Dans un premier temps, nous avons calculé les énergies radiatives pour des intervalles spectraux de 5 et 10 nm entre 400 - 450 nm de chacun des deux spectres ET. Ensuite nous avons calculé le rapport des énergies radiatives retrouvées pour les deux spectres et un coefficient moyen de 0.95 a été trouvé. Nous avons appliqué ce coefficient correctif de 0.95 au spectre de "Slaper" afin de déduire notre nouveau spectre. Celui-ci est illustré en bleu sur la figure 2.32. Son amplitude coïncide avec celle du spectre de "Thuillier" alors que sa résolution spectrale est proche de celle du spectre de "Slaper".

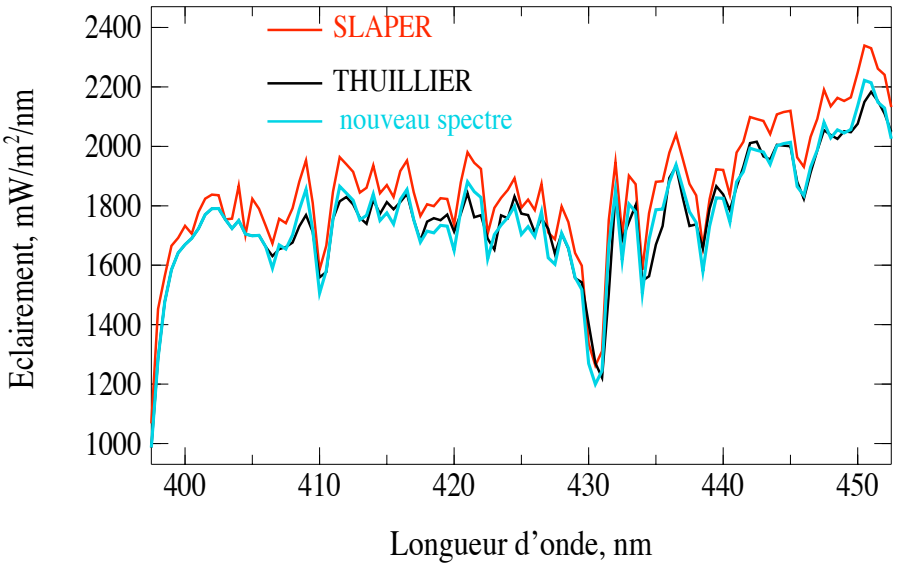

FIG. 2.32 – *Spectre ET entre* 400 *et* 450 *nm de "Slaper" en rouge, de "Thuillier" en noir et le nouveau spectre en bleu.*

Nous avons restitué des nouvelles AOT à partir de ce nouveau spectre afin de déduire des nouveaux ω_0. Ils sont tracés sur la figure 2.33 (a) et sont comparés avec les ω_0 obtenus avec le spectre de "Thuillier" (figure 2.33 c).

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

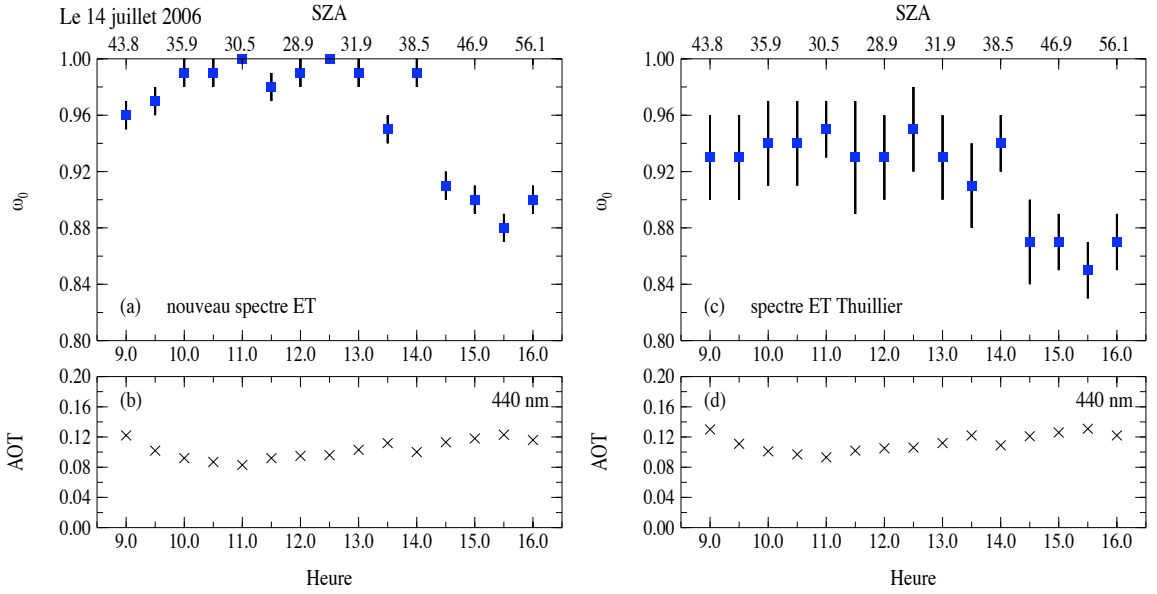

FIG. 2.33 – ω_0 *retrouvé à* 440 *nm à partir du nouveau spectre ET en (a) et du spectre de "Thuillier" en (c) pour le* 14 *juillet* 2006. *AOT retrouvées à partir du spectroradiomètre à* 440 *nm avec le nouveau spectre ET en (b) et avec le spectre de Thuillier en (d).*

En ce qui concerne les AOT, les valeurs obtenues sont différentes d'environ 0.01 (figure 2.33 b et 2.33 d). Les variations du ω_0 en fonction de l'heure ont le même comportement sur les deux figures. En revanche, les valeurs moyennes de ω_0 sont très différentes et les écarts-type sont les plus faibles avec l'utilisation du nouveau spectre. L'AOT est faible au cours de la journée du 14 juillet, l'utilisation de la simulation nous a permis de constater qu'une variation de 0.01 sur cette AOT faible entraînait une variation de 0.04 en moyenne sur la valeur de ω_0 restituée.

Nous avons alors regardé l'impact de ce changement de spectre ET lors d'une journée où l'AOT est plus élevée, la journée du 11 septembre 2006 (figure 2.34).

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

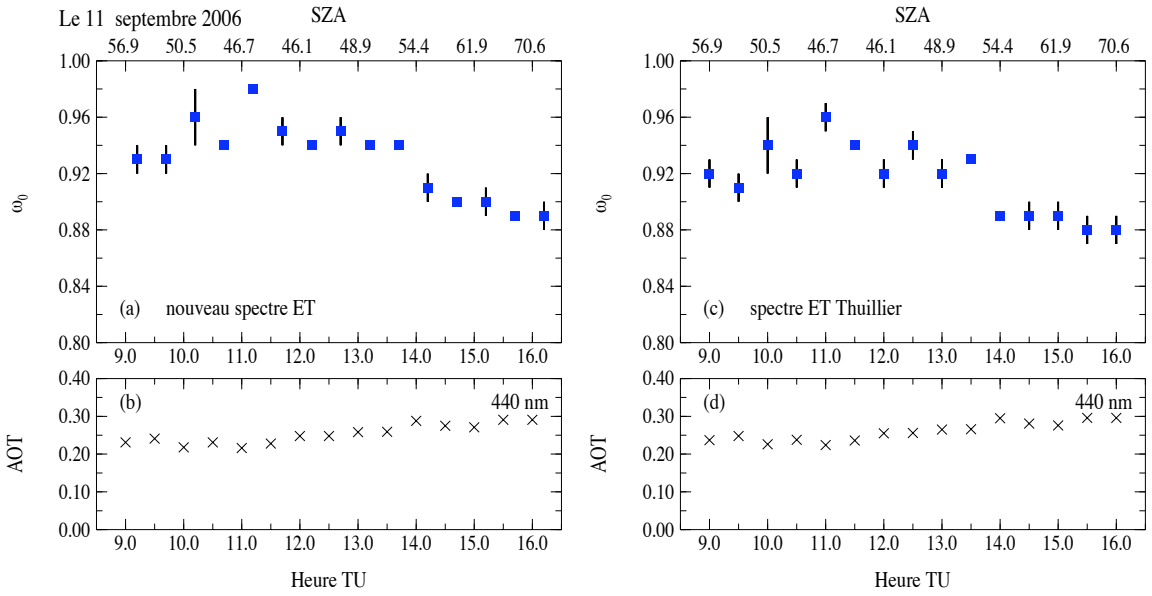

FIG. 2.34 – *Même légende que la figure 2.33 mais pour le* 11 *septembre* 2006.

Lors de cette journée, les AOT obtenues à partir des deux spectres ET sont aussi différentes de 0.01 en moyenne. Toutefois la simulation montre que cette différence sur une AOT comprise entre 0.2 et 0.3 entraîne une plus faible variation estimée à environ 0.02 sur la valeur de ω_0. Ce qui explique les valeurs peu différentes de ω_0 observées sur les figures 2.34(a) et (c).

En conclusion, lorsque les AOT sont très faibles, la différence de résolution des spectres ET entraîne des différences importantes sur la valeur de ω_0 restituée. En revanche, lorsque les AOT sont plus élevées, le choix du spectre ET a peu de conséquences sur la détermination de ω_0. Une analyse, établie sur plusieurs journées, consistant à comparer les ω_0 restitués à partir des deux spectres ET avec les ω_0 déduits des mesures photométriques AERONET/PHOTONS à 440 nm, va nous permettre de choisir le spectre ET le plus satisfaisant.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.3.2.4 Analyse des albédos de diffusion simple restitués

a) Validation avec AERONET/PHOTONS

Les figures 2.35 et 2.36 montrent les comparaisons entre les ω_0 déduits des mesures du spectroradiomètre à partir du rapport dr/df à 440 nm et les ω_0 déduits des mesures des photomètres AERONET/PHOTONS à la même longueur d'onde (le niveau 1.5 a été utilisé, les produits sont à utiliser avec précaution) [Dubovik et al., 2000; Dubovik et King, 2000]. Le nombre de mesures photométriques qui sont inversées au cours d'une journée est généralement faible à cause des conditions nécessaires à une bonne inversion (entre autres : un SZA élevé, des AOT mesurées à $\pm$16 min de la mesure dans l'almucantar et une mesure d'AOT précédant immédiatement la mesure dans l'almucantar devant être présente....), ce qui explique le faible nombre de points observé (46). La différence entre les deux figures est le choix du spectre ET utilisé dans la détermination des AOT spectrales à partir des mesures du spectroradiomètre, qui sont introduites dans l'inversion de ω_0. Sur la figure 2.35, le spectre de "Thuillier" a été utilisé alors que sur la figure 2.36 c'est le nouveau spectre qui a été utilisé. Les AOT supérieures et inférieures à 0.2 utilisées dans l'inversion sont différenciées par les couleurs rouges et noires.

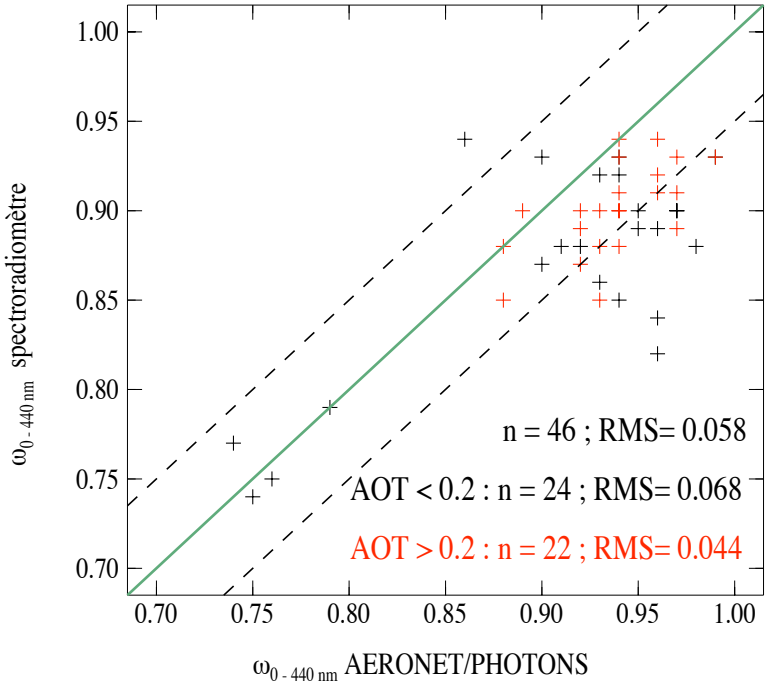

FIG. 2.35 – *Comparaison entre les ω_0 déduits des mesures du spectroradiomètre à partir du rapport dr/df à 440 nm en ordonnée et du photomètre solaire AERONET/PHOTONS en abscisse à VdA en 2006. Le spectre ET de "Thuillier" a été utilisé pour déterminer les AOT avec les mesures du spectroradiomètre. Lorsque les AOT sont supérieures à 0.2, les ω_0 sont tracés en rouge. Lorsque les AOT sont inférieures à 0.2, les ω_0 sont tracés en noir. La première bissectrice est représentée en vert, les droites en pointillés noirs sont situées à $\pm$0.05.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

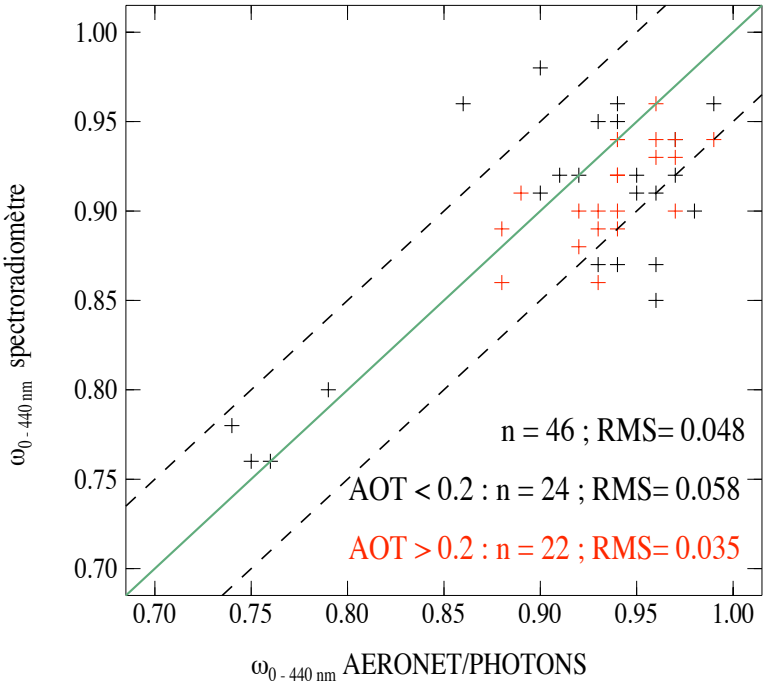

FIG. 2.36 – *Même légende que la figure 2.35. Le nouveau spectre ET a été utilisé pour déterminer les AOT avec les mesures du spectroradiomètre.*

Sur chacune des figures, nous comparons des ω_0 obtenus à partir de deux méthodes d'inversion différentes et globalement l'accord observé entre les deux est satisfaisant quel que soit le spectre ET utilisé. Nous pouvons constater que les points caractérisés par une forte absorption ont été retrouvés à partir des mesures du spectroradiomètre et aussi à partir des photomètres.

Si nous comparons maintenant les deux figures, la différence se situe au niveau du RMS. Si nous considérons l'ensemble des ω_0, le RMS est égal à 0.058 lorsque le spectre de "Thuillier" est utilisé alors que le RMS est égal à 0.048 avec le nouveau spectre ET. Nous constatons que les comparaisons sont en meilleur accord lorsque le nouveau spectre est utilisé. Toutefois ces deux valeurs se situent dans le domaine d'incertitude de nos ω_0 (tab 2.4) et de celui des ω_0 des photomètres. Selon Dubovik et al. [2000], l'incertitude sur le ω_0 retrouvé à partir des mesures dans l'almucantar des photomètres AERONET varie entre 0.03 et 0.07 selon le type d'aérosol et l'AOT. Pour des aérosols de type urbains, le ω_0 est inversé avec une précision comprise entre $0.05 - 0.07$ lorsque l'AOT à 440 nm est inférieure ou égale à 0.2. Lorsque l'AOT est supérieure à 0.2, ω_0 est inversé avec une précision de 0.03.

Nous avons séparé les AOT utilisées dans l'inversion en deux catégories : si nous considérons les AOT qui sont inférieures à 0.2, nous avons un RMS qui est égal à 0.068 avec le spectre de "Thuillier" et 0.058 avec le nouveau spectre. En revanche lorsque les AOT

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

sont supérieures à 0.2, les RMS sont plus faibles et valent 0.044 et 0.035 respectivement. Ces résultats confirment la difficulté à retrouver un ω_0 lorsque les AOT sont faibles.

Ces comparaisons ont montré que les ω_0 obtenus à partir des mesures du spectroradiomètre sont corrects, particulièrement lorsque l'AOT est élevée. Comme nous l'avons vu précédemment, le choix du spectre ET peut engendrer des différences dans la restitution de nos ω_0, surtout lorsque l'AOT est faible. Or, sur le site de VdA les AOT sont généralement faibles, expliquant les différences de RMS calculés sur les deux figures. Ces valeurs de RMS nous permettent de conclure que les ω_0 estimés à partir du nouveau spectre sont plus approchés des valeurs des ω_0 AERONET/PHOTONS. Nous avons donc choisi d'utiliser le nouveau spectre pour déterminer les ω_0 à 440 nm.

b) Exemple de résultats à VdA

Les figures suivantes présentent des exemples de variations journalières de ω_0 retrouvés à 340, 380 et 440 nm pour 4 journées claires différentes, correspondant à des valeurs d'AOT et de SZA différents à VdA.

La journée du 6 janvier est caractérisée par une AOT assez élevée et un SZA élevé également. La valeur de ω_0 varie peu au cours de la journée mais les écarts-type associés à chaque valeur sont élevés :

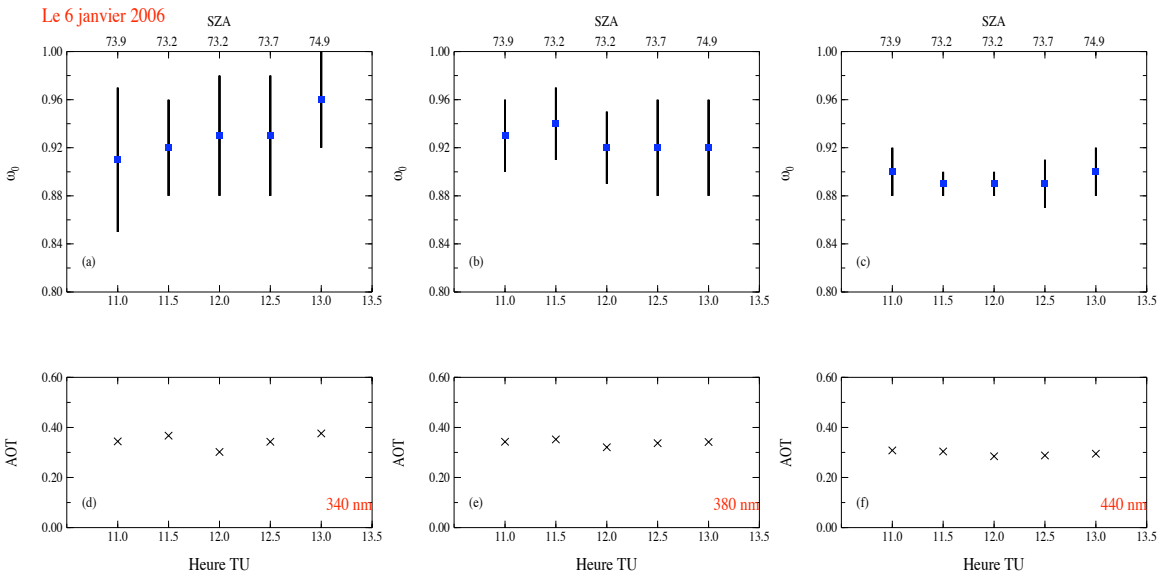

FIG. 2.37 – *Variation journalière du ω_0 retrouvé le 6 janvier 2006 à 340 nm en (a), 380 nm en (b) et 440 nm en (c). La barre noire représente l'écart-type.*

La journée du 18 mars est caractérisée par une AOT assez élevée et un SZA moyen. Les valeurs de ω_0 se stabilisent dans la matinée et chutent dans l'après-midi quelle que soit la longueur d'onde. Les valeurs obtenues à chaque longueur d'onde sont peu différentes.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

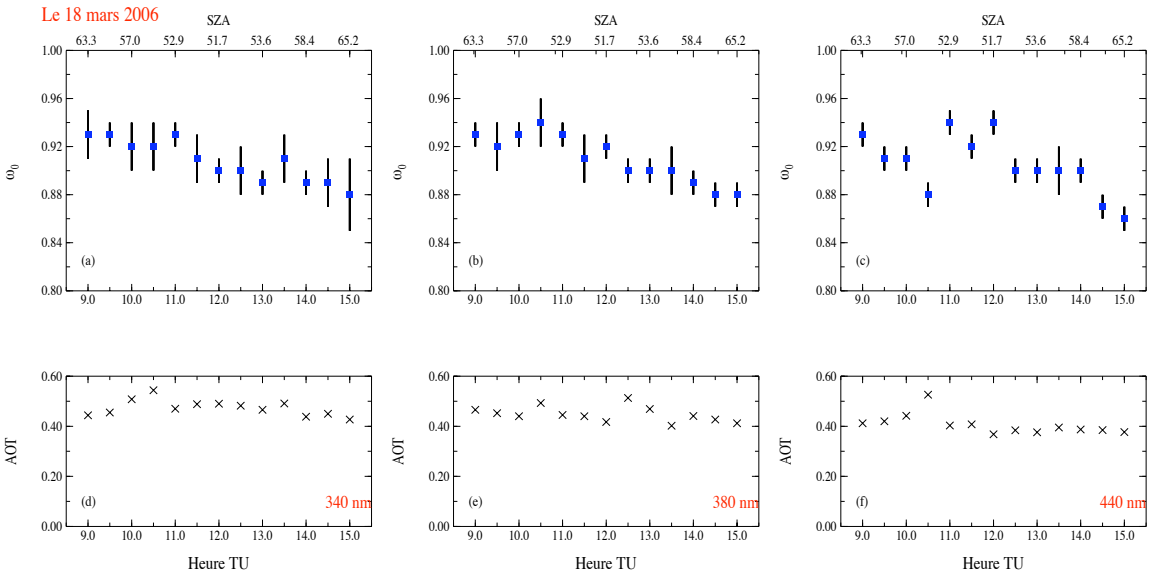

FIG. 2.38 – *Même légende que la figure 2.37 mais pour le* 18 *mars* 2006

La journée du 14 juillet est caractérisée par une AOT faible et un SZA faible. Les ω_0 retrouvés varient beaucoup au cours de la journée, notamment à 440 nm. De plus, les valeurs à 440 nm sont différentes des deux autres longueurs d'onde.

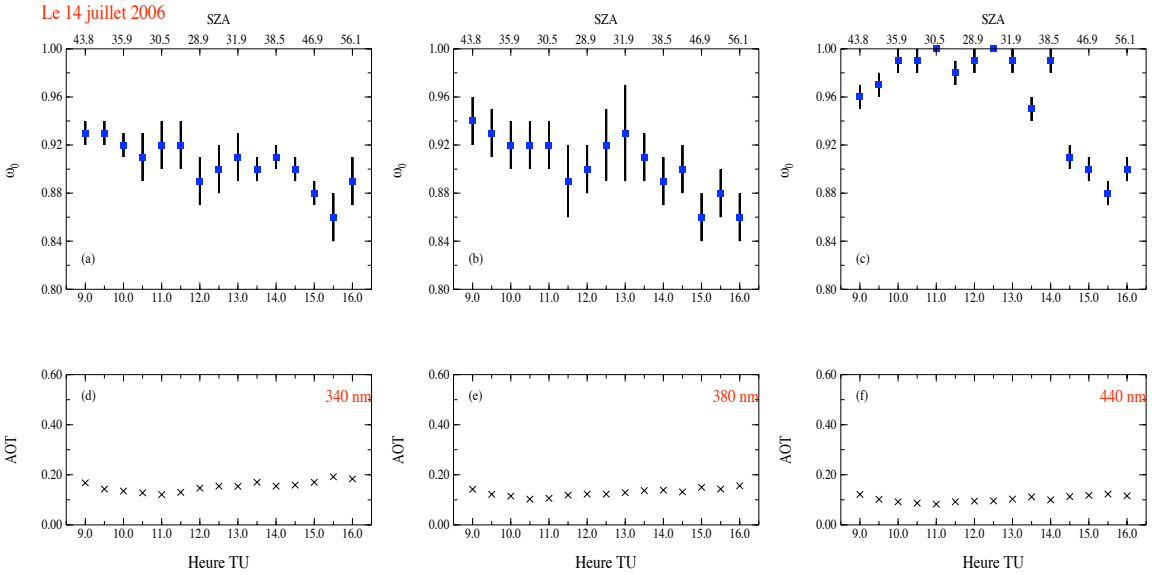

FIG. 2.39 – *Même légende que la figure 2.37 mais pour le* 14 *juillet* 2006

La journée du 11 septembre est caractérisée par une AOT assez élevée et un SZA moyen. Les ω_0 varient très peu au cours de la journée et les écarts-type associés à chaque valeur sont très faibles. Les valeurs de ω_0 augmentent légèrement avec la longueur d'onde.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

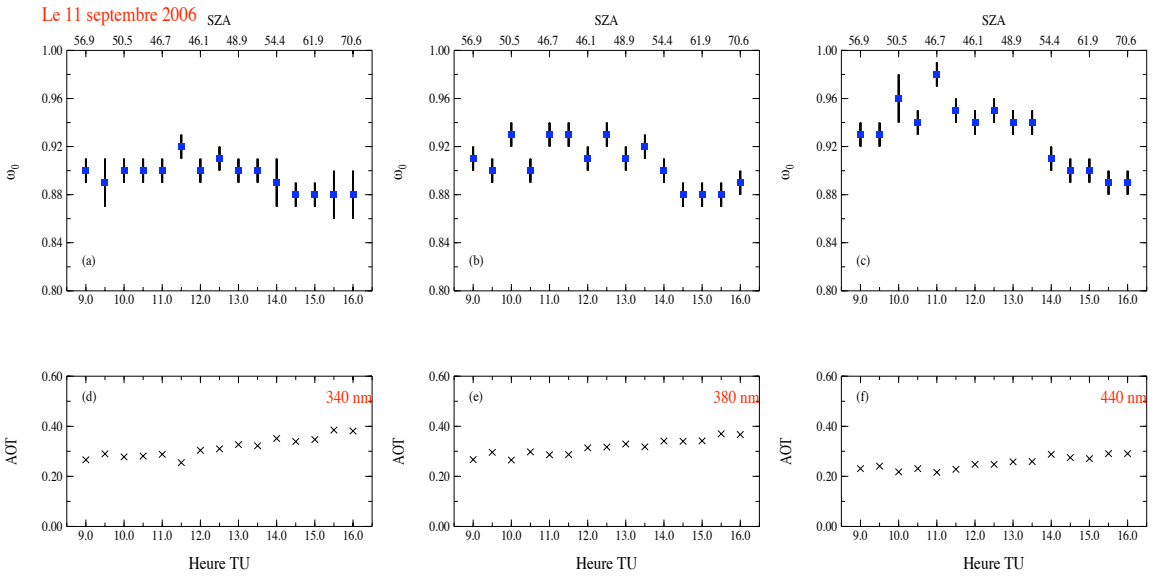

FIG. 2.40 – *Même légende que la figure 2.37 mais pour le* 11 *septembre* 2006

Conclusion : les mesures spectrales du spectroradiomètre et la modélisation nous ont permis d'estimer un albédo de diffusion simple des aérosols à plusieurs longueurs d'onde dans l'UV-visible à VdA. Ce paramètre est particulièrement difficile à estimer à cause des incertitudes existant sur les mesures au sol. Il est également difficile à retrouver lorsque les AOT sont faibles. Le choix du spectre ET dans l'inversion est également un paramètre à ne pas négliger surtout quand l'AOT est faible. Les comparaisons avec AERONET/PHOTONS ont montré que notre ω_0 déterminé à 440 nm est du même ordre de grandeur que celui déduit des mesures photométriques, ce qui est encourageant. L'avantage que nous présentons par rapport aux mesures photométriques est la détermination d'un ω_0 à plusieurs longueurs d'onde dans l'UV. Nous verrons dans le chapitre 3 qu'une estimation du ω_0 à 330 nm nous a été utile pour la validation de l'éclairement UV d'OMI. A partir de plusieurs années de mesures, une climatologie du ω_0 à VdA pourra alors être établie en fonction des saisons et ainsi être utilisée dans les inversions de l'éclairement UV à la surface à partir des mesures satellitaires.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.4 Application à la pollution de l'air

2.4.1 Introduction

Depuis quelques années, le LOA participe, en collaboration avec d'autres laboratoires français, à des campagnes de mesures de pollution photochimique. L'objectif de ces campagnes est d'étudier l'impact de l'ozone troposphérique et des espèces radicalaires sur la capacité oxydante de l'atmosphère. Pour cela, la communauté française dispose d'instruments permettant la mesure des concentrations des radicaux et aussi des espèces chimiques intervenant dans leur bilan : les composés organiques volatils (COV), l'ozone, les oxydes d'azote, les fréquences de photolyse de certains gaz (dioxyde d'azote, ozone ...).
La mesure de ces composés permet de mieux comprendre les processus chimiques mis en jeu et aussi de vérifier l'adéquation des modèles de chimie utilisés (CHIMERE [5] par exemple) aux situations réelles.

Les mesures du spectroradiomètre permettent de déterminer des fréquences de photolyse (notées J) de certains gaz :

La principale source responsable de la formation de l'ozone troposphérique (rappelons que dans la troposphère c'est un polluant majeur) est la photolyse du dioxyde d'azote :

$$\begin{aligned} NO_2 + h\nu &\rightarrow NO + O \qquad \lambda \leq 420nm \quad J(NO_2) \\ O + O_2 + M &\rightarrow O_3 + M \end{aligned} \tag{2.16}$$

Dans la troposphère, les oxydes d'azotes proviennent essentiellement des émissions de la circulation routière et de diverses industries.

Le radical hydroxyle OH est connu pour jouer un rôle important dans les processus chimiques de l'atmosphère. Sa grande réactivité conduit à l'oxydation de la majorité des composés dans la troposphère. Pour les atmosphères peu polluées, la principale source de ces radicaux hydroxyles est essentiellement initiée par la photodissociation de l'ozone aux longueurs inférieures à 330 nm produisant l'oxygène atomique dans son état excité $O(^1D)$. La réaction de cet atome excité $O(^1D)$ avec la vapeur d'eau conduit à la formation de deux radicaux hydroxyles :

$$\begin{aligned} O_3 + h\nu &\rightarrow O(^1D) + O_2 \qquad \lambda \leq 330nm \quad J(O^1D) \\ O(^1D) + H_2O &\rightarrow 2\,OH \end{aligned} \tag{2.17}$$

[5] Modèle de chimie - transport développé par l'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL/CNRS), une description de ce modèle est disponible à l'adresse : *http ://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/*. CHIMERE s'appuie sur le mécanisme chimique MELCHIOR du SA (Service d'Aéronomie).

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Dans les environnements très pollués, d'autres processus photolytiques peuvent intervenir et donner lieu également à la production d'OH. Il s'agit essentiellement de la photolyse de l'acide nitreux :

$$HONO + h\nu \rightarrow OH + NO \qquad \lambda \leq 400nm \quad J(HONO) \tag{2.18}$$

La photolyse de HONO est responsable de l'augmentation des radicaux OH très tôt le matin. En effet, ce gaz se forme principalement la nuit et subit une photolyse rapide au lever du soleil [Alicke et al., 2003]. Bien que l'importance de ce mécanisme soit reconnue depuis plusieurs années, le rôle de HONO dans le système chimique est complexe et encore très mal évalué. Des études récentes ont révélé une production diurne et des concentrations de HONO supérieures aux prédictions calculées par les modèles numériques de chimie [Vogel et al., 2003]. En effet, d'autres sources de HONO sont suspectées, pouvant conduire à une production de OH supplémentaire tout au long de la journée [Kleffmann, 2007]. La mesure de HONO et de ses précurseurs potentiels ainsi que l'estimation des fréquences de photolyse sont donc essentielles lors de campagne de mesures de pollution.

2.4.2 Principe de la photolyse

La première étape d'un processus photochimique est l'excitation de la molécule AB par l'absorption d'un photon selon :

$$AB + h\nu \rightarrow AB^* \tag{2.19}$$

où AB^* représente un état electronique excité de la molécule AB et $h\nu$ est l'énergie du photon absorbé lors de la transition électronique. Une fois excitée, la molécule peut être ionisée (par expulsion d'un électron), émettre un rayonnement de luminescence ou se dissocier (par rupture de liaisons chimiques) selon :

$$A - B + h\nu \rightarrow A\cdot + B\cdot \tag{2.20}$$

où A· et B· sont des fragments radicalaires ou des atomes.

Dans ce cas, on parle alors de photodissociation ou de photolyse. Les processus de photodissociation sont directement proportionnels au flux sphérique (défini au 1.1.1.2), ainsi le taux de molécules AB dissociées par unité de temps (appellé fréquence de photolyse J_{AB}) est déterminé selon la relation :

$$J_{AB} = \int_{\lambda} F(\lambda)\sigma^{AB}(\lambda)\phi^{AB}(\lambda)d\lambda \qquad (s^{-1}) \tag{2.21}$$

dans laquelle $F(\lambda)$ est le flux sphérique, appelé aussi flux actinique, $\sigma^{AB}(\lambda)$ et $\phi^{AB}(\lambda)$ sont, respectivement la section efficace d'absorption et le rendement quantique de photodissociation de la molécule AB. Le rendement quantique $\phi^{AB}(\lambda)$ rend compte de la

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

probabilité que la molécule AB soit photolysée après absorption d'un photon. Ces deux dernières quantités sont des propriétés intrinsèques aux molécules absorbantes, mesurées expérimentalement en laboratoire.

2.4.3 Méthodes de restitution et de mesure

Différentes méthodes existent pour déterminer les fréquences de photolyse. La première est l'utilisation d'un actinomètre chimique effectuant des mesures directes. Le principe et le fonctionnement d'un actinomètre J_{O^1D} sont décrit en détail dans Shetter et al. [1996]. Nous ne nous attarderons pas sur cet instrument car nous ne l'utilisons pas dans la suite.

Un autre instrument permettant la mesure de taux de photolyse est le radiomètre à filtre. Cet instrument fait l'objet d'une description détaillée dans Bohn et al. [2004]. Il consiste en deux détecteurs identiques ayant chacun une réponse uniforme sur un angle solide de 2π sr. L'un est dirigé vers le bas, l'autre vers le haut afin de recueillir le rayonnement dans un angle solide de 4π sr. Cette disposition permet la séparation des contributions individuelles de J à partir des composantes du flux actinique venant du haut et du bas. Le détecteur est étalonné chez le fabricant grâce à une procédure d'intercalibration par rapport à un détecteur de référence, lui-même étalonné avec un actinomètre chimique. Grâce à cet étalonnage préalable, la mesure du flux actinique permet de calculer la valeur de la constante de photolyse J. Ces instruments sont dédiés à une seule espèce et les gaz pour lesquels existent ce genre d'instrument sont NO_2 et O_3. Selon Bohn et al. [2006], l'incertitude sur la mesure de J_{NO_2} est estimée à 10% quel que soit le SZA et l'incertitude sur la mesure de J_{O^1D} est estimée à 10% pour un SZA inférieur à 70°, à 15% pour un SZA supérieur à 70°.

Enfin une autre approche consiste à utiliser les mesures spectrales d'un spectroradiomètre. Cet instrument mesure directement des flux sphériques lorsqu'il est équipé d'une tête actinique [Hofzumahaus et al., 1999]. Mais peu d'instruments sont équipés de ces têtes optiques à cause de la difficulté de construction et de leur prix. La plupart des spectroradiomètres mesurent des flux plans qu'il faut ensuite convertir en flux sphériques [Cotte et al., 1997; Bais et al., 2003].

Les flux sphériques obtenus permettent, à partir de l'équation (2.21), de déterminer des fréquences de photolyse. Le principal avantage à utiliser les mesures d'éclairement spectral est que celles-ci permettent la détermination de fréquences de photolyse de différentes molécules, à la condition qu'elles absorbent dans le domaine spectral couvert par le spectroradiomètre.

Notre spectroradiomètre mesure des flux plans, nous avons par conséquent appliqué

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

à nos mesures spectrales la méthode de conversion en flux sphériques décrite dans Cotte et al. [1997], que nous détaillons :

Le flux sphérique global est décomposable de la même manière que l'éclairement global selon :

$$F_{global}(\lambda) = F^{\downarrow}_{direct}(\lambda) + F^{\downarrow}_{diffus}(\lambda) + F^{\uparrow}_{refl}(\lambda) \tag{2.22}$$

où :

- $F^{\downarrow}_{direct}(\lambda)$ est le flux sphérique direct descendant. $F^{\downarrow}_{direct}(\lambda)$ peut s'écrire en fonction de l'éclairement direct sur un plan horizontal :

$$F^{\downarrow}_{direct}(\lambda) = \frac{E_{direct}(\lambda)}{cos(\theta_s)}. \tag{2.23}$$

- $F^{\downarrow}_{diffus}(\lambda)$ est le flux sphérique diffus descendant. Il peut s'obtenir à partir de l'éclairement diffus descendant par l'intermédiaire du paramètre $r_{dd}(\lambda)$ appelé "coefficient de diffusivité", défini comme suit :

$$r_{dd}(\lambda) = \frac{F^{\downarrow}_{diffus}(\lambda)}{E^{\downarrow}_{diffus}(\lambda)}. \tag{2.24}$$

  Ce coefficient peut se calculer pour différents modèles d'atmosphère à partir d'un code de transfert radiatif. Comme dans nos études précédentes, nous avons utilisé le code DISORT.
  $F^{\downarrow}_{diffus}(\lambda)$ se déduit alors d'une mesure d'éclairement diffus par la relation :

$$F^{\downarrow}_{diffus}(\lambda) = r_{dd}(\lambda) \times E^{\downarrow}_{diffus}(\lambda). \tag{2.25}$$

- $F^{\uparrow}_{refl}(\lambda)$ est le flux sphérique réfléchi par la surface et vaut :

$$F^{\uparrow}_{refl}(\lambda) = \iint_{2\pi} L_{refl}(\lambda) d\Omega = 2\pi L_{refl}(\lambda) = 2E^{\uparrow}_{refl}(\lambda). \tag{2.26}$$

  Si nous supposons le sol lambertien (c'est à dire que la luminance réfléchie $L_{refl}(\lambda)$ est la même quelle que soit la direction) alors l'éclairement réfléchi s'écrit :

$$E^{\uparrow}_{refl}(\lambda) = \iint_{2\pi} L_{refl}(\lambda) cos(\theta) d\Omega = \pi L_{refl}(\lambda) \tag{2.27}$$

  L'albédo de sol ρ_λ définit la proportion de rayonnement incident qui est réfléchi par le sol, ainsi :

$$\rho_\lambda = \frac{E^{\uparrow}_{refl}(\lambda)}{E_{incident}(\lambda)} = \frac{E^{\uparrow}_{refl}(\lambda)}{E_{global}(\lambda)}. \tag{2.28}$$

$$F^{\uparrow}_{refl}(\lambda) = 2\rho_\lambda E_{global}(\lambda). \tag{2.29}$$

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

L'équation 2.22 s'écrit finalement :

$$F_{global}(\lambda) = \frac{E_{direct}(\lambda)}{cos(\theta_s)} + E^{\downarrow}_{diffus}(\lambda) \times r_{dd}(\lambda) + 2\rho_{\lambda} E_{global}(\lambda). \quad (2.30)$$

Le flux sphérique global est déduit à partir des mesures de flux plans direct, diffus et global que nous réalisons avec notre spectroradiomètre.

La précision avec laquelle seront estimées les J dépend de la précision de la mesure des flux plans, de la précision de la modélisation du coefficient r_{dd} et aussi de la précision avec laquelle les paramètres moléculaires de photodissociation ($\sigma(\lambda)$ et $\phi(\lambda)$) sont mesurés. Ces derniers peuvent être une grande source d'erreur dans le calcul [Kraus et Hofzumahaus, 1998; Bohn, 2006].

A partir des incertitudes existant sur nos mesures d'éclairements global, nous estimons retrouver pour un SZA moyen, le flux sphérique global avec une précision de 10% pour les longueurs d'onde inférieures à 320 nm et avec une précision de 6% pour les longueurs d'onde plus élevées. L'incertitude sur $J_{O(^1D)}$ est ainsi de 14% si l'on considère une incertitude sur les sections efficaces d'absorption d'ozone de 2% selon Orphal et Chance [2003] et une incertitude de 10% sur le rendement quantique selon Matsumi et al. [2002]. L'incertitude sur J_{NO_2} est estimée à 12% si l'on considère une incertitude de 2% sur les sections efficaces d'absorption de NO_2 Orphal et Chance [2003] et une incertitude de 10% sur le rendement quantique [Kraus et Hofzumahaus, 1998; Shetter et al, 2003].
L'erreur sur J_{HONO} est dominée par les incertitudes existant sur les sections efficaces d'absorption, qui sont de l'ordre de 20% selon Kraus et Hofzumahaus [1998]. L'incertitude sur la détermination de J_{HONO} est alors d'environ 23%.

La première campagne de mesure de la qualité de l'air à laquelle le LOA a participé avec son spectroradiomètre, a eu lieu dans la région du Rhin Supérieur à environ 30 km de Strasbourg, durant les mois de mai et juin 2003. Cette campagne fut organisée dans le cadre du programme européen INTERREG III. Le LISA (Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques) à Paris XII et le BTU (Brandenburgische Technische Universität) de Berlin étaient également présents pour effectuer des mesures de fréquences de photolyse de NO_2 à l'aide de radiomètres à filtres. L'analyse des mesures de cette campagne a fait l'objet d'une étude présentée dans mon rapport de DEA [Buchard, 2005]. Au cours de ce travail, des tests de sensibilité ont montré que le coefficient r_{dd} etait sensible à l'AOT, en revanche l'impact de l'albédo de diffusion simple des aérosols sur la variation de ce coefficient était très faible [Buchard, 2005], ce qui confirmait les études de Cotte et al. [1997].

En septembre 2005, une autre campagne s'est déroulée dans la région parisienne sur le

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

site de l'INRA (Institut National de la Recherche Agronomique) à Grignon dans le cadre d'un projet Programme National de Chimie Atmosphérique "Etude de la chimie rapide radicalaire, lien avec la pollution photo-oxydante en milieux pollués". La partie suivante concerne l'analyse des mesures effectuées lors de cette campagne par le LOA en collaboration avec le LISA et le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement).

Une campagne similaire a eu lieu dans la continuité du projet en juin 2007 mais, en raison de conditions météorologiques déplorables et de problèmes instrumentaux, l'exploitation des données a été limitée.

2.4.4 Analyse des mesures de la campagne de 2005 à Grignon

Notre analyse concerne les instruments suivants, permettant la détermination de fréquences de photolyse :

- Le spectroradiomètre du LOA mesurant des flux plans globaux et diffus de 280 à 450 nm.
- Deux radiomètres mesurant J_{NO_2}, appartenant au LISA.
- Deux radiomètres mesurant J_{NO_2}, appartenant au LSCE.
- Un radiomètre dirigé vers le haut mesurant les contributions descendantes de J_{O^1D}, appartenant au LSCE.

Mesures annexes :

- Un photomètre solaire du réseau AERONET/PHOTONS mesurant les paramètres aérosols.

Toutes nos études se limitent actuellement aux conditions de ciel clair, elles concernent la demi-journée du 20 septembre et les journées des 21 et 22 septembre 2005.

Les premières études présentées concernent les comparaisons des différentes fréquences de photolyses mesurées par les radiomètres du LSCE et du LISA, J_{NO_2} et J_{O^1D} avec celles déduites des mesures de flux plans du spectroradiomètre suivant la modélisation décrite plus haut (réferencée "calcul LOA" dans la suite).
Ensuite, comme il n'existe pas de radiomètres mesurant les fréquences de photolyse de l'acide nitreux, J_{HONO}, nous les déterminons à partir du calcul LOA ainsi qu'à partir d'une méthode proposée par Holland et al. [2003] utilisant les mesures de J_{NO_2} et J_{O^1D}.

Dans notre calcul LOA, comme paramètres aérosols utilisés dans la simulation de r_{dd} (eq 2.24), nous nous sommes servi de l'AOT à 440 nm et du coefficient d'Angström déduits des mesures du spectroradiomètre. L'albédo de diffusion simple des aérosols nous a été fourni par le photomètre solaire AERONET/PHOTONS. En ce qui concerne l'albédo de sol utilisé dans l'équation 2.30, ce paramètre est difficile à évaluer. Etant donné

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

l'environnement dans lequel les instruments étaient installés (un champ de blé et maïs) et des valeurs proposées par Feister et Grewe [1995], nous avons choisi la valeur de 0.05. De plus, nous avons maintenu cette valeur constante sur tout le domaine spectral étudié [Buchard, 2005].

2.4.4.1 Comparaison des fréquences de photolyse du dioxyde d'azote

Dans le calcul LOA, les fréquences de photolyse du dioxyde d'azote (J_{NO_2}) ont été déterminées à partir des sections efficaces obtenues par Merienne et al. [1995] et des rendements quantiques obtenus par Troe [2000]. Le produit de ces paramètres avec des flux sphériques obtenus par simulation (DISORT) est tracé sur la figure 2.41. Nous constatons que la photodissociation de NO_2 n'est possible que pour les longueurs d'onde inférieures à 420 nm et atteint un maximum aux environs de 400 nm.

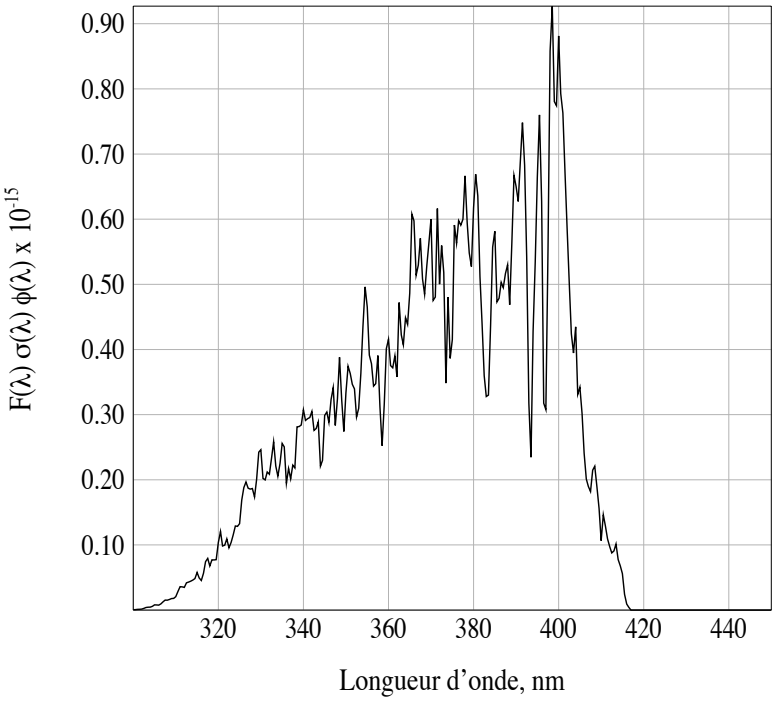

FIG. 2.41 – *Distribution spectrale des fréquences de photolyse $F(\lambda) \times \sigma(\lambda) \times \phi(\lambda)$. Flux sphérique simulé $F(\lambda)$, sections efficaces $\sigma(\lambda)$ de NO_2 d'après Merienne et al. [1995], rendement quantique $\phi(\lambda)$ de NO_2 d'après Troe [2000].*

La figure 2.42 représente les comparaisons de fréquences de photolyse de NO_2 obtenues à partir des mesures des radiomètres du LISA (en bleu), des mesures des radiomètres du LSCE (en noir) et des résultats issus du calcul LOA (en violet) pour les journées claires du 20 septembre 2005 en (a), du 21 septembre en (c) et pour celle du 22 en (e). Les différences relatives entre les mesures du LISA et du calcul LOA sont tracées en bleu et celles entre les mesures du LSCE et du calcul LOA sont tracées en noir sur les figures 2.42 (b, d, f). Ces comparaisons concernent les J_{NO_2} totales, il s'agit donc d'une combinaison des

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

mesures des radiomètres dirigés vers le haut et vers le bas. De même, dans notre calcul, tous les termes de l'équation 2.30 ont été pris en compte.

Nous constatons un désaccord très net, d'environ 15 à 20% entre les mesures des radiomètres du LISA et du LSCE avec les calculs du LOA quelle que soit la journée étudiée. En revanche, les mesures du LISA sont en très bon accord avec celles du LSCE, les différences entre les deux étant d'environ 3% à 5% en moyenne selon la journée. Afin de comprendre ce désaccord, nous avons étudié séparément les mesures des radiomètres haut et bas du LSCE et du LISA. Celui dirigé vers le haut nous permet d'obtenir la contribution descendante au J et celui vers le bas nous permet d'obtenir la contribution réfléchie au J.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

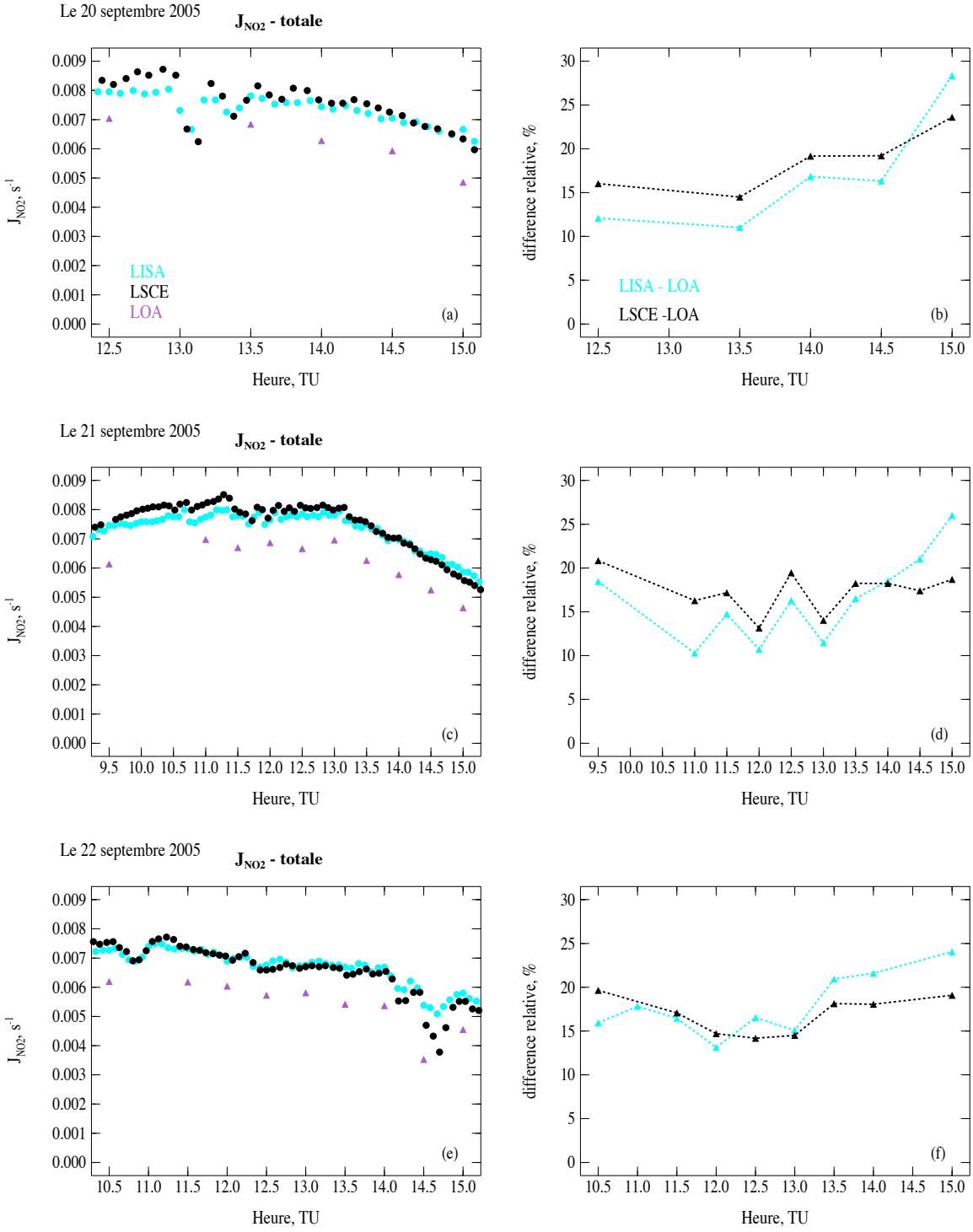

FIG. 2.42 – *Figures de gauche : fréquences de photolyse de NO_2 mesurées par le LISA en bleu, mesurées par le LSCE en noir et calculées à partir des mesures du spectroradiomètre avec un albédo de sol de* 0.05 *en violet. Figures de droite : différences relatives* $(200 \times (rad - LOA)/(rad + LOA))$ *en % entre les mesures du LISA et du LOA en bleu et celles entre le LSCE et LOA en noir. (a) et (b) le* 20 *septembre, (c) et (d) le* 21 *septembre, (e) et (f) le* 22 *septembre.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

La figure 2.43 représente les contributions descendantes aux J à partir des mesures du LISA (en bleu), du LSCE (en noir) et du calcul LOA (en violet). Les différences relatives entre les deux radiomètres et le calcul LOA ont nettement diminué, celles-ci n'excèdent pas 10% en moyenne. Nous pouvons également remarquer que hormis lors de la journée du 22 septembre, le calcul LOA de J_{NO_2} est généralement plus proche des mesures du radiomètre du LISA.

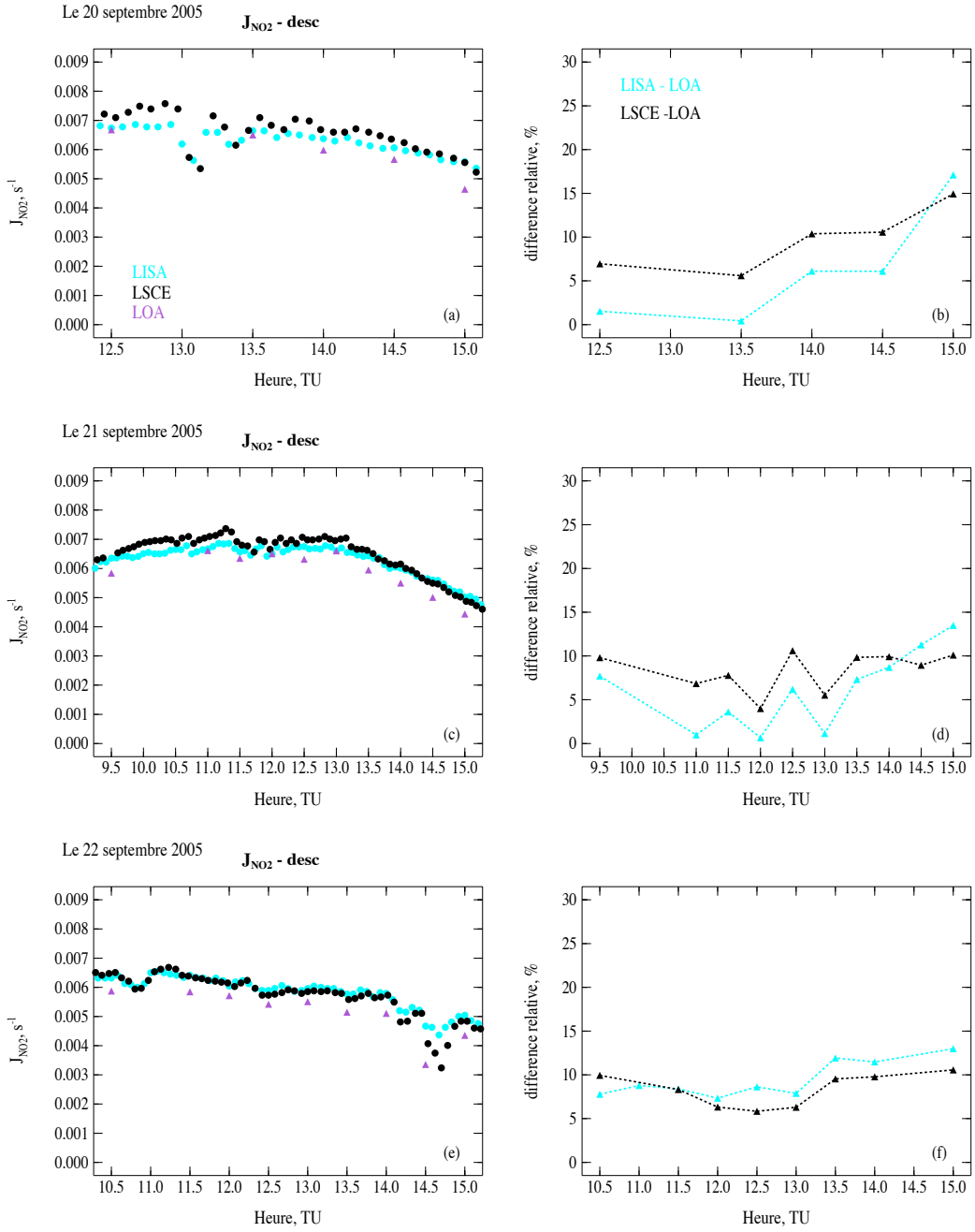

FIG. 2.43 – *Même légende que la figure 2.42 mais uniquement pour les contributions descendantes.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Nous nous intéressons maintenant aux contributions montantes qui sont dépendantes de l'albédo de surface. Notre calcul LOA de fréquences de photolyse correspond à la partie réfléchie $2\rho E_{global}(\lambda)$ du flux actinique total. Pour cette raison, nous présentons les résultats du calcul LOA pour différentes valeurs de ρ, variant de 0.05 à 0.15, sachant que cette dernière valeur est nettement supérieure à la réflectance de surface estimée pour le site de mesure [Feister et Grewe, 1995].

Les tracés (a), (c) et (e) de la figure 2.44 représentent les contributions montantes aux J à partir des mesures du LISA (en bleu), du LSCE (en noir) et du calcul du LOA pour différentes valeurs d'albédo de sol (de violet à rose) pour nos trois jours d'étude. Nous constatons sur les tracés (b), (d) et (f) de la figure 2.44 que si l'on prend un albédo de 0.05 dans notre calcul, les écarts avec les mesures des radiomètres du LISA et du LSCE sont très importants, de l'ordre de 100% pour les trois jours. En revanche, si l'on augmente cet albédo de sol et qu'on lui attribue la valeur 0.15, les écarts avec les radiomètres du LISA et du LSCE diminuent considérablement et sont en moyenne inférieurs à 20% quelle que soit la journée d'étude.

Ce que nous pouvons conclure suite à cette étude est que les désaccords de 15 à 20% constatés précédemment lors des comparaisons entre le calcul LOA et les mesures de J_{NO_2} totales par les radiomètres du LISA et du LSCE (figure 2.42) semblent s'expliquer par un albédo de sol sous estimé ($\rho = 0.05$) dans notre calcul de J_{NO_2} (Eq. 2.30).

Néanmoins, étant donné que la valeur de ($\rho = 0.15$) n'est pas réaliste [Feister et Grewe, 1995], nous avons essayé de comprendre pourquoi il faut introduire dans notre modélisation une valeur aussi élevée afin d'obtenir des J_{NO_2} comparables à ceux mesurés par les radiomètres. Pour cela, nous avons examiné des photos prises sur le site de mesures, et une explication serait la localisation des radiomètres du LISA et du LSCE. Ces derniers étaient situés au sommet d'un mât monté sur une camionnette peinte en blanc. Nous comprenons alors que le radiomètre dirigé vers le bas recevait en plus du rayonnement solaire refléchi par le sol, celui réfléchi par la camionnette.

Cette étude a permis de mettre en évidence la nécessité de corriger les mesures des radiomètres dirigés vers le bas du LISA et du LSCE. Les mesures du spectroradiomètre ont permis d'établir les corrections à apporter aux valeurs mesurées par ces radiomètres.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

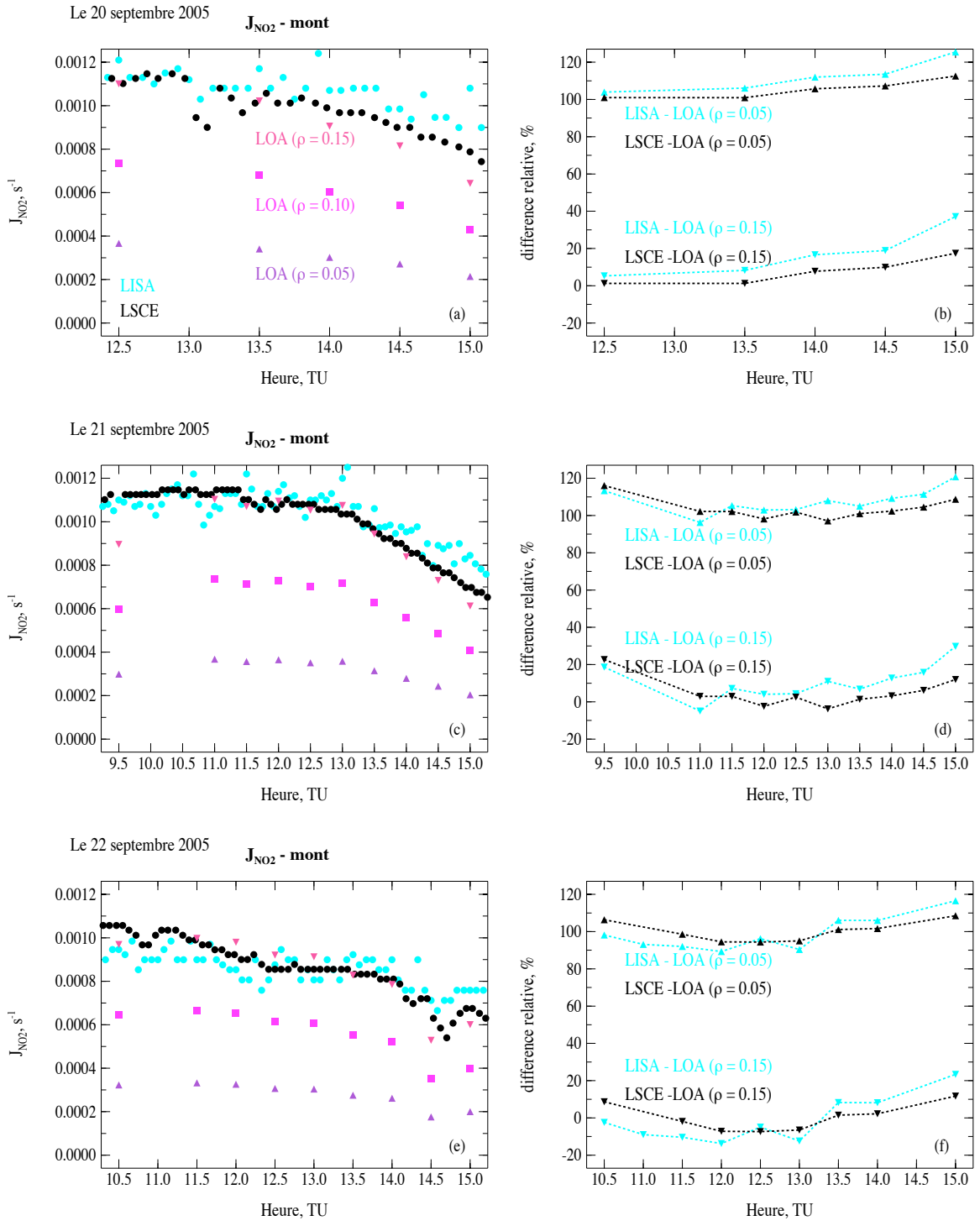

FIG. 2.44 – *Figures de gauche : les contributions montantes des fréquences de photolyse de NO_2 (mesurées par le LISA en bleu, mesurées par le LSCE en noir et calculées à partir des mesures du spectroradiomètre avec un albédo de sol de* 0.05 *en violet, un albédo de sol de* 0.10 *en rose et un albédo de sol de* 0.15 *en orange. Figures de droite : différences relatives en % entre les mesures du LISA et du LOA en bleu et entre celles du LSCE et du LOA en noir. L'albédo de sol est de* 0.05 *pour les triangles dirigés vers le haut,* 0.15 *pour les triangles vers le bas. (a) et (b) le* 20 *septembre, (c) et (d) le* 21 *septembre, (e) et (f) le* 22 *septembre.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.4.4.2 Comparaison des fréquences de photolyse de l'ozone

A partir des mesures de flux plans du spectroradiomètre, nous avons également déterminé les fréquences de photolyse de l'ozone (J_{O^1D}) en utilisant les sections efficaces d'absorption de Burrows et al. [1999] et les rendements quantiques de Matsumi et al. [2002]. Le produit de ces paramètres avec des flux sphériques obtenus par simulation est tracé sur la figure 2.45. La photodissociation de l'ozone se produit essentiellement dans la bande d'absorption de Huggins allant de 300 à 320 nm.

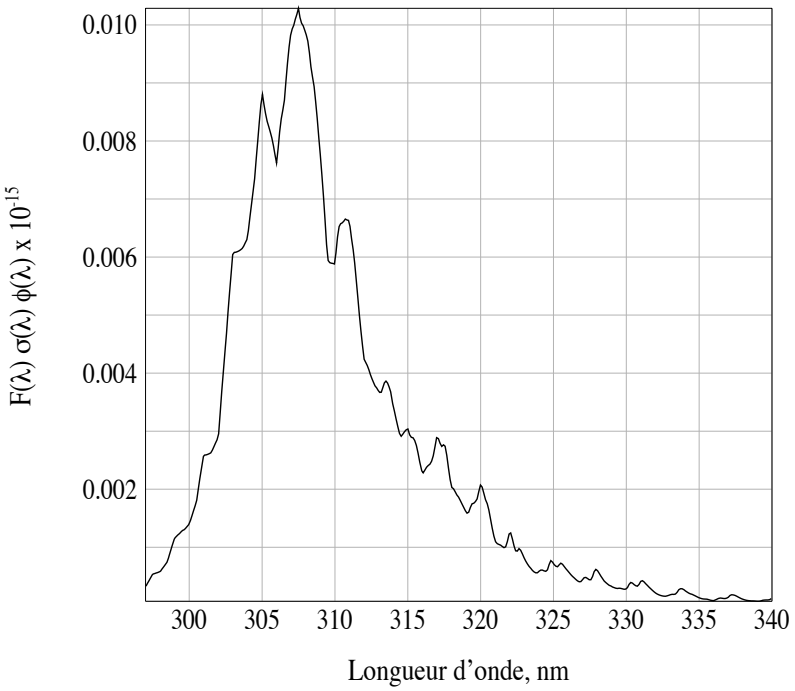

FIG. 2.45 – *Distribution spectrale des fréquences de photolyse $F(\lambda) \times \sigma(\lambda) \times \phi(\lambda)$ pour l'ozone. Flux sphérique simulé $F(\lambda)$, section efficace d'absorption $\sigma(\lambda)$ de O_3 d'après Burrows et al. [1999] et rendements quantiques de photodissociation $\phi(\lambda)$ d'après Matsumi et al. [2002].*

Seules les contributions descendantes aux J sont comparées au calcul LOA en raison de la présence d'un seul détecteur du LSCE (figure 2.46). La comparaison entre le calcul et le radiomètre du LSCE présente des écarts supérieurs à 15%, augmentant en début et fin de journée et pouvant atteindre 35 à 40% vers 15 heures TU. Les écarts observés ne sont pas causés par un problème d'albédo de surface car seules les contributions descendantes sont comparées. Mais comme nous l'avons souligné plus haut, dans cette région spectrale les éclairements sont très faibles surtout aux SZA élevés, induisant des incertitudes de mesures d'éclairement d'environ 7% à SZA = 40° à 9% pour SZA = 70°. Toutefois, les incertitudes obtenues sur le calcul de (J_{O^1D}), estimées à 14-15%, n'expliquent pas les écarts supérieurs à 35% aux SZA supérieurs à 60° (vers 15h00).

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

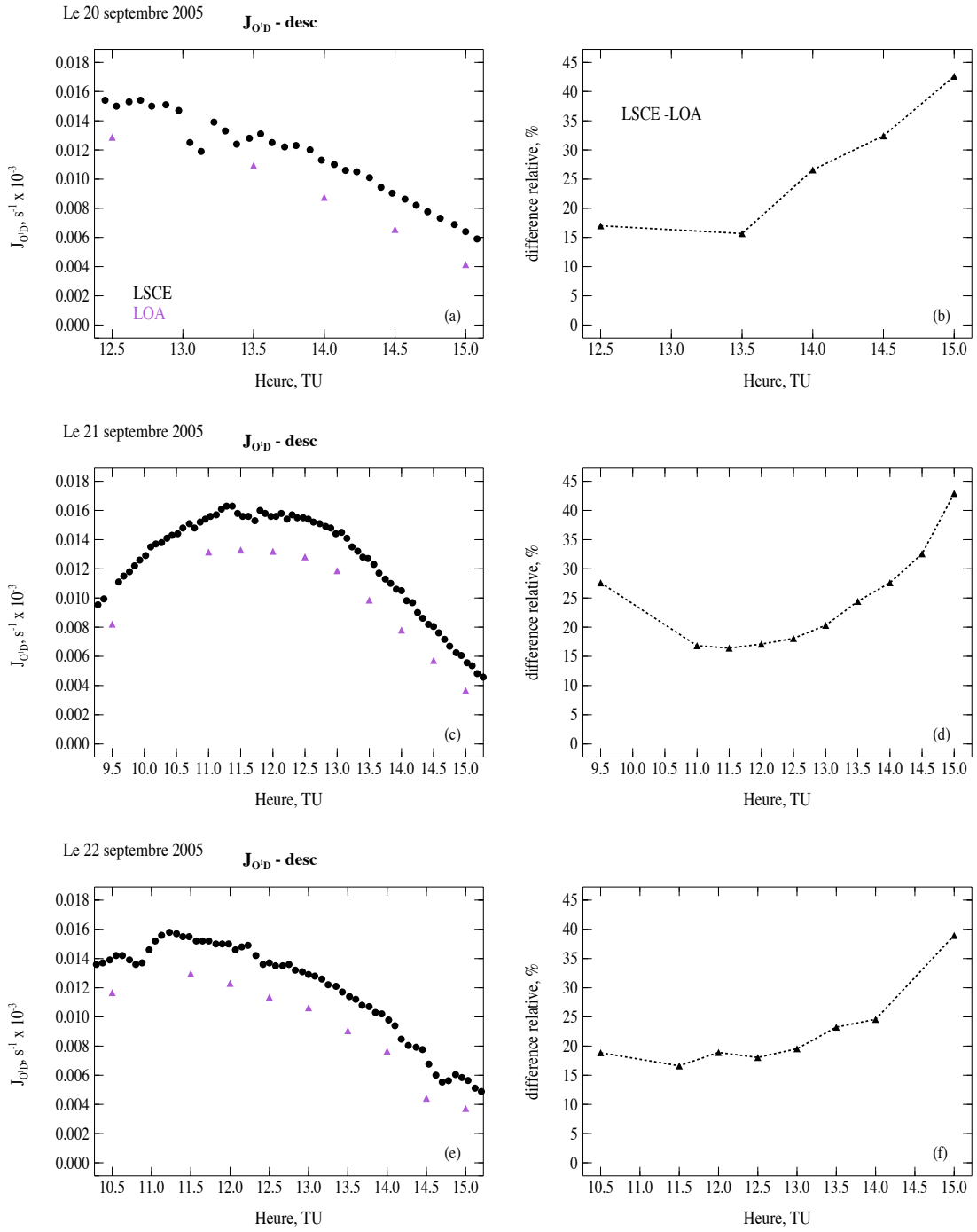

FIG. 2.46 – *Figures de gauche : fréquences de photolyse de O^1D mesurées par le LSCE en noir et calculées à partir des mesures du spectroradiomètre avec un albédo de sol de* 0.05 *en violet. Seules les contributions descendantes sont présentées. Figures de droite : différences relatives en % entre le LSCE et LOA. (a) et (b) le* 20 *septembre, (c) et (d) le* 21 *septembre, (e) et (f) le* 22 *septembre.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2.4.4.3 Les fréquences de photolyse de l'acide nitreux

Comme nous l'avons signalé plus haut, il n'existe pas de radiomètres à filtres pour mesurer J_{HONO}, c'est pourquoi nos mesures spectrales présentent un grand intérêt.

Nous avons utilisé deux techniques différentes afin d'estimer J_{HONO} lors de la campagne :

- La première est le calcul que nous avons présenté précédemment, comme pour les J_{NO_2} et J_{O^1D}, à partir des mesures du spectroradiomètre et en utilisant les sections efficaces d'absorption de Bongartz et al. [1994]. Le rendement quantique de photodissociation pour la photolyse de *HONO* est égal à l'unité sur tout le domaine spectral où la photolyse est possible [Demore et al., 1997]. La figure 2.47 présente la distribution spectrale du taux de photolyse de HONO.

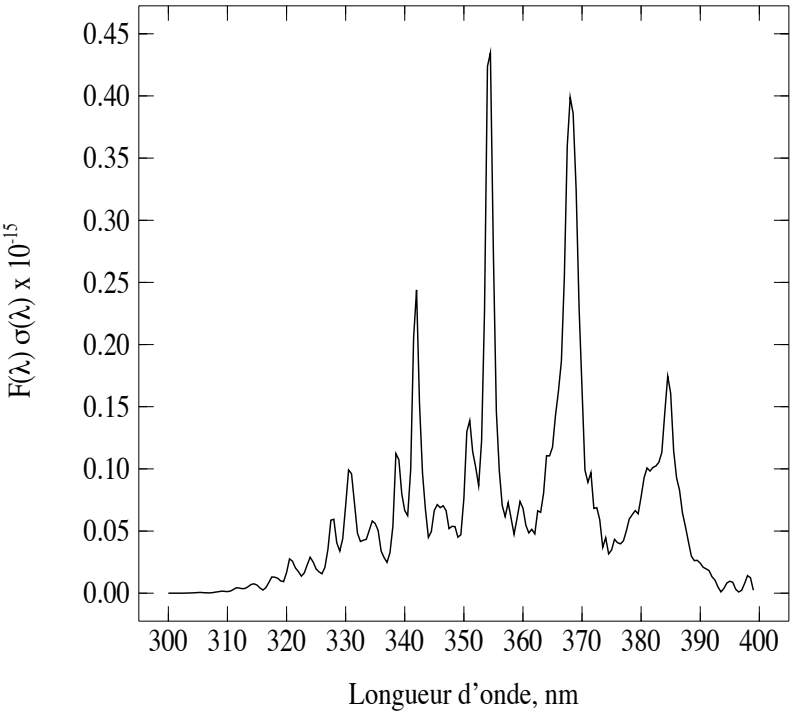

FIG. 2.47 – *Distribution spectrale des fréquences de photolyse $F(\lambda) \times \sigma(\lambda)$. Flux sphérique simulé $F(\lambda)$, section efficace d'absorption $\sigma(\lambda)$ de HONO d'après Bongartz et al. [1994].*

- L'autre technique est proposée par Holland et al. [2003]. Cette méthode consiste à utiliser les mesures de J_{NO_2} et J_{O^1D} pour déduire les valeurs de J_{HONO}. La relation liant les trois quantités a été déterminée lors de l'expérience BERLIOZ (Berliner Ozone) qui s'est déroulée à Berlin à partir de 6000 points de mesures réalisés sur

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

une période de 15 jours et pour différentes conditions météorologiques :

$$J_{HONO} = a_0 \times J_{NO_2} + b_0 \times J_{O^1D} + c_0 \times {J_{O^1D}}^2 \tag{2.31}$$

avec comme coefficients :

- $a_0 = 0.1492$
- $b_0 = 15.0$
- $c_0 = -2.4 \times 10^5\ s^{-1}$

Ces coefficients sont, selon les auteurs, à prendre avec précaution pour d'autres conditions expérimentales.

Nous avons dans un premier temps comparé les valeurs de J_{HONO} obtenues selon les deux méthodes décrites ci-dessus à partir des mesures du spectroradiomètre (figure 2.48).

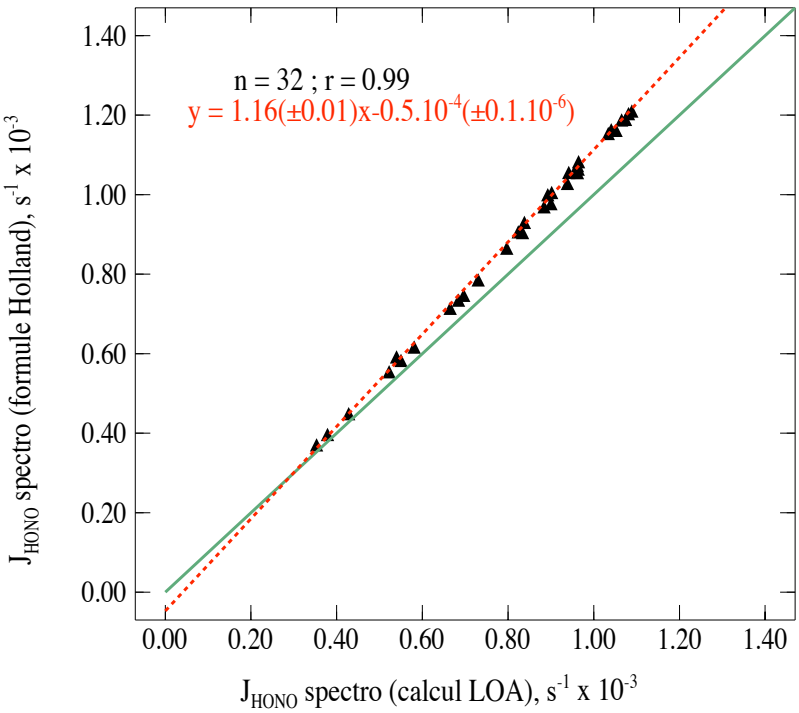

FIG. 2.48 – *Comparaison des J_{HONO} calculées à partir de la formule de Holland et al. [2003] et des estimations de J_{NO2} et J_{O^1D} du spectroradiomètre en fonction des J_{HONO} issues du calcul LOA. La courbe rouge est la droite de régression, en vert est représentée la première bissectrice.*

Nous observons une excellente corrélation (r=0.99) entre les J_{HONO} déduites de la formule de Holland et al. [2003] et celles issues du calcul LOA. Mais celles déterminées à partir des coefficients de Holland sont systématiquement supérieures à celles issues du calcul LOA, les coefficients ne sont peut être pas adaptés à nos mesures. Notons que le

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

nombre de points de comparaison est faible et ne concerne que les journées claires.

Nous avons ensuite cherché s'il existait une ou des corrélations entre les différentes fréquences de photolyse (J_{HONO}, J_{NO_2} et J_{O^1D}) calculées pour nos trois journées d'étude.

Dans un premier temps, nous avons regardé s'il existait une relation entre nos J_{NO_2} et nos J_{HONO} calculés comme cela avait été observé par Kraus et Hofzumahaus [1998].

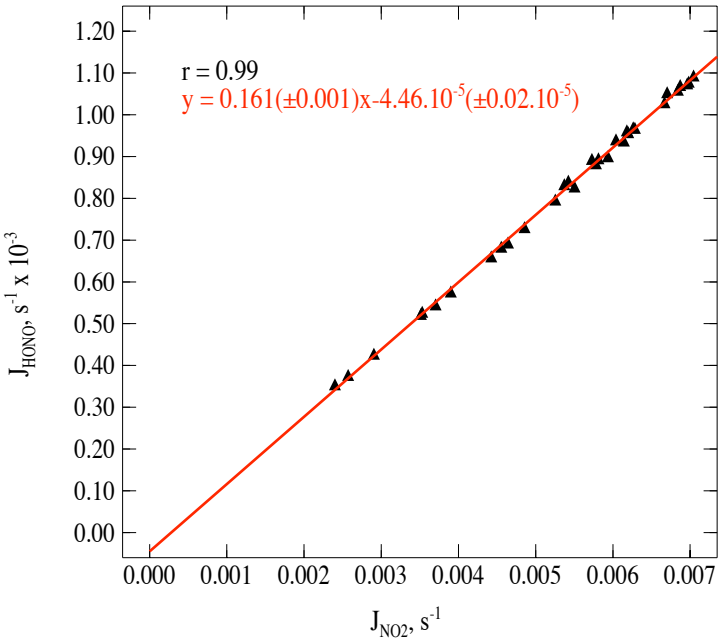

FIG. 2.49 – *Fréquences de photolyse de l'acide nitreux et du dioxyde d'azote obtenues à partir des mesures du spectroradiomètre avec un albédo de sol égal à* 0.05. *En rouge est représentée la droite de régression.*

Nous voyons sur la figure 2.49 qu'il existe une relation linéaire entre les J_{NO_2} et les J_{HONO} illustrée par un coefficient de corrélation élevé (r = 0.99). Nous obtenons une pente a′ = 0.161 ± 0.001 et une ordonnée à l'origine $b' = -4.46\ 10^{-5}\ s^{-1}$. Il semble donc que l'on puisse simplement déduire les J_{HONO} de la seule mesure de J_{NO_2}. Toutefois pour suivre Holland et al. [2003], nous avons tenté de déterminer les trois coefficients a, b et c intervenant dans l'équation 2.31 à partir de nos trois jours d'étude. Les valeurs ainsi obtenues sont :

- a = 0.145
- b = 6.51
- c = $-1.12 \times 10^5\ s^{-1}$

Ces coefficients sont du même ordre de grandeur que ceux présentés par Holland et al. [2003] mais ils sont bien sûr plus représentatifs de nos journées d'étude.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

La figure 2.50 présente une comparaison des J_{HONO} obtenus à partir des coefficients (a',b') et à partir des coefficients (a,b,c).

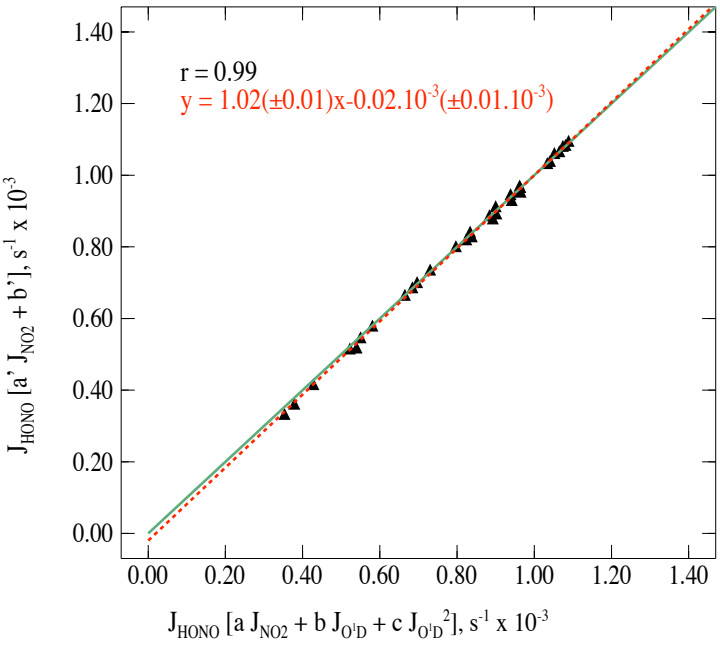

FIG. 2.50 – *Comparaison des J_{HONO} calculés à partir des estimations de J_{NO2} et J_{O^1D} du spectroradiomètre ; A partir des coefficients (a', b') sur l'axe des ordonnées et avec les coefficients (a, b, c) sur l'axe des abscisses. La courbe rouge est la droite de régression, en vert est représentée la première bissectrice.*

L'accord obtenu est très bon avec un coefficient de corrélation de 0.99, une pente proche de l'unité (1.02) et une ordonnée à l'origine faible. Suite à cette comparaison, nous pouvons conclure que la relation linéaire entre J_{HONO} et J_{NO_2} peut être utilisée pour estimer J_{HONO} par ciel clair lorsque les mesures de J_{O^1D} ne sont pas disponibles.

Nous avons finalement appliqué les coefficients de Holland et al. [2003] et nos coefficients (a, b, c) aux mesures de J_{NO2} et de J_{O^1D} du LSCE afin d'estimer des J_{HONO}. Pour les mesures de J_{NO2} et de J_{O^1D} du LSCE, nous avons bien entendu corrigé les valeurs mesurées des contributions montantes en utilisant les mesures du spectroradiomètre.

Les J_{HONO} du LSCE obtenus (en noir avec les coefficients de Holland ; en bleu avec nos coefficients) ont ensuite été comparées aux J_{HONO} du spectroradiomètre (calcul LOA en violet) (figure 2.51). De manière générale les écarts sont plus faibles entre le calcul LOA et le LSCE lorsque l'on applique nos coefficients, ceux-ci sont de l'ordre de 5% en milieu de journée à 15% en fin de journée. Ce résultat confirme que nos coefficients sont plus représentatifs de nos trois journées d'étude que ceux de Holland et al. [2003].

De plus, les écarts entre le calcul LOA et les J_{HONO} du LSCE (coefficients de Holland et al. [2003]) sont acceptables, ceux-ci sont de l'ordre de 15% à 20% et se situent dans le domaine d'incertitude des J_{HONO} estimé à environ 23%.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

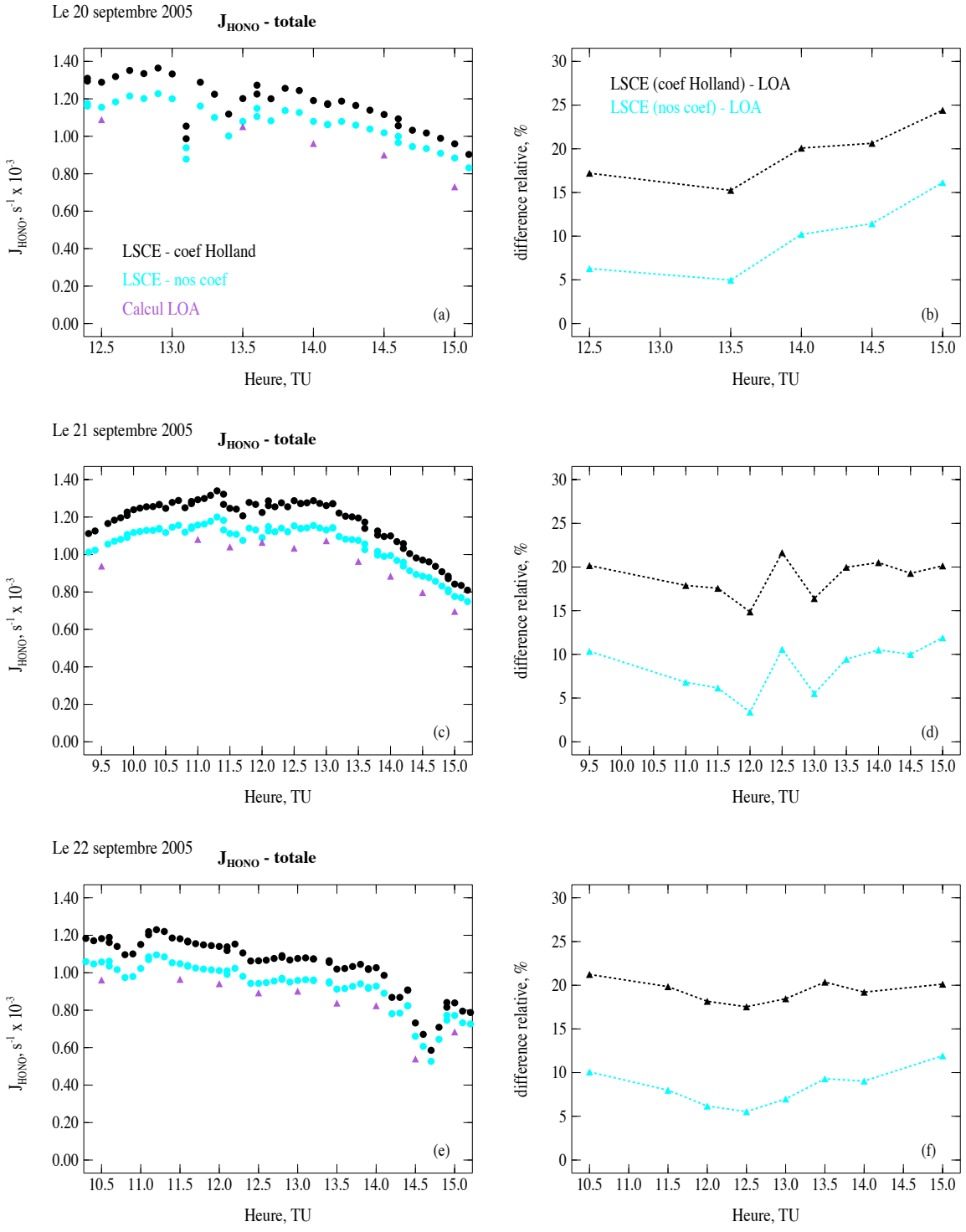

FIG. 2.51 – *Figures de gauche : fréquences de photolyse de HONO déduites des mesures du LSCE avec les coefficients de Holland et al. [2003] en noir, avec nos coefficients (a, b, c) en bleu et calculées à partir des mesures du spectroradiomètre avec un albédo de sol de 0.05 en violet. Figures de droite : différences relatives en % entre le LSCE (coefficients de Holland) et LOA en noir et entre le LSCE (nos coefficients) et LOA en bleu. (a) et (b) le 20 septembre, (c) et (d) le 21 septembre, (e) et (f) le 22 septembre.*

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

En conclusion, les mesures spectrales réalisées avec le spectroradiomètre, la modélisation et l'utilisation de données bibliographiques nous ont permis de déterminer les fréquences de photolyse de certains gaz. Les valeurs que nous avons obtenues ont été comparées avec celles mesurées par des radiomètres à filtre au cours d'une campagne de mesures dans la région parisienne. Durant les trois jours utilisés dans notre étude, une première analyse des J_{NO_2} a permis de mettre en évidence un problème lié à l'emplacement des radiomètres, entraînant une surestimation des mesures du radiomètre dirigé vers le bas. Les mesures du spectroradiomètre ont alors permis d'établir les corrections à apporter à ces mesures. Les comparaisons des J_{O^1D} ont montré des écarts satisfaisants en milieu de journée, augmentant en début et fin de journée. En effet, les fréquences de photolyse de l'ozone retrouvées à partir du spectroradiomètre sont plus difficiles à estimer que celles du dioxyde d'azote en raison des éclairements mesurés dans le domaine spectral de détermination des J_{O^1D} qui sont très faibles. Pour les fréquences de photolyse de l'acide nitreux, il n'existe pas de radiomètre à filtre dédié à ce gaz ; c'est pourquoi les mesures du spectroradiomètre se sont révélées d'un grand intérêt. Des comparaisons effectuées entre les J_{HONO} déterminées à partir des mesures du spectroradiomètre et celles déduites à partir des mesures de J_{NO_2} et J_{O^1D} sont apparues satisfaisantes avec des différences se situant dans le domaine d'incertitude des J_{HONO} obtenues à partir des mesures du spectroradiomètre. Les valeurs obtenues peuvent donc être fournies aux chimistes.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Chapitre 3

Analyse et validation des produits OMI

Comme nous l'avons vu au chapitre 1, OMI est un instrument qui a été lancé en juillet 2004 sur la plate-forme AURA, qui fait partie de la constellation des six satellites de l'A-TRAIN. Les travaux présentés dans la première partie de ce chapitre s'inscrivent dans le cadre d'un projet répondant à l'appel à proposition de l'Agence Spatiale Européenne (ESA) publié en 2004, projet intitulé " Validation of OMI products over Europe with ground-based UV instruments". Ce projet dont le "principal investigator" (PI) est P. Weihs (Institute of Meteorology, Autriche), implique également des équipes allemande, autrichienne, hollandaise, italienne et grecque. Notre contribution a été de valider les produits ozone et UV à VdA et à Briançon. Dans une première partie, les méthodes utilisées dans l'estimation des produits OMI ozone, UV et aérosols sont décrites. Puis, la validation de ces produits sur les sites français de mesures UV est présentée. Les résultats obtenus avec les produits ozone et UV de la collection 2 d'OMI ont fait l'objet d'une publication dans ACP [Buchard et al., 2008]. Dans une seconde partie, une étude sur les produits aérosols OMI a été étendue à des sites de mesures photométriques de l'Afrique de l'Ouest, qui sont caractérisés par des contenus en aérosols désertiques et en particules émises par les feux de biomasse très élevés.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.1 Description des algorithmes d'inversion et des produits OMI

3.1.1 La colonne totale d'ozone

Deux algorithmes développés par deux équipes différentes sont utilisés pour retrouver la colonne totale d'ozone.

L'un est l'algorithme de TOMS Version 8 [Bhartia et Wellemeyer, 2002] développé au GSFC (Goddard Space Flight Center). Nous l'appellerons OMI-TOMS dans la suite. Toutes les données fournies par TOMS depuis 1978 ont été recalculées avec cet algorithme.

Son principe consiste à utiliser uniquement deux longueurs d'onde, l'une où l'absorption par l'ozone est faible (331.2 nm) pour estimer la fraction de nuages et l'autre (317.5 nm) avec une forte absorption afin d'estimer la quantité d'ozone. Dans le cas où l'absorption par l'ozone devient significative à 331.2 nm pour des angles solaires zénithaux importants, c'est la longueur d'onde 360 nm qui est utilisée pour estimer la fraction de nuages couvrant la surface. L'incertitude relative sur le produit ozone obtenu à partir de cette méthode est d'environ 2% pour des angles solaires zénithaux inférieurs à 70° et peut atteindre 5% à 85° selon Bhartia et Wellemeyer [2002].

L'autre algorithme, développé au KNMI (Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut in the Netherlands) est basé sur la méthode DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy). Dans la suite, il sera désigné par OMI-DOAS. Dans cet algorithme, l'ozone est déterminé en 3 temps [Veefkind et al., 2006]. Dans un premier temps, un ajustement est effectué sur la luminance terrestre normalisée par l'éclairement solaire à l'aide d'un moindre carré non linéaire afin de déterminer les colonnes obliques d'ozone. Dans un deuxième temps, une inversion spatiale des colonnes obliques est réalisée au moyen de facteurs de masse d'air pour en déduire les profils verticaux de densité d'ozone. La troisième étape consiste en une correction nuageuse afin de tenir compte de l'ozone existant sous les nuages. Selon Veefkind et al. [2006], l'incertitude relative sur l'ozone retrouvée est de 2% par ciel clair et 3% par ciel nuageux.

Les quantités d'ozone déterminées à partir de ces deux algorithmes sont fournies à l'heure du passage d'OMI au-dessus des sites (c'est à dire à "l'overpass"). La figure 3.1 présente un exemple de distribution globale de la quantité d'ozone restituée par OMI-TOMS à gauche et par OMI-DOAS à droite. Il s'agit d'images moyennes mensuelles pour le mois de janvier 2006. Dans l'ensemble, les deux algorithmes sont en très bon accord à l'échelle globale. Néanmoins, on observe quelques différences à certaines latitudes, où l'algorithme OMI-TOMS sous-estime les quantités d'ozone d'environ 25 DU par rapport à OMI-DOAS. C'est le cas notamment au-dessus d'une partie de l'Europe de l'Ouest et de l'Afrique du Sud. Cette surveillance par l'instrument OMI sur l'ensemble du globe représente un avantage majeur par rapport aux mesures effectuées au sol, même si la précision des mesures n'est pas tout à fait équivalente.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

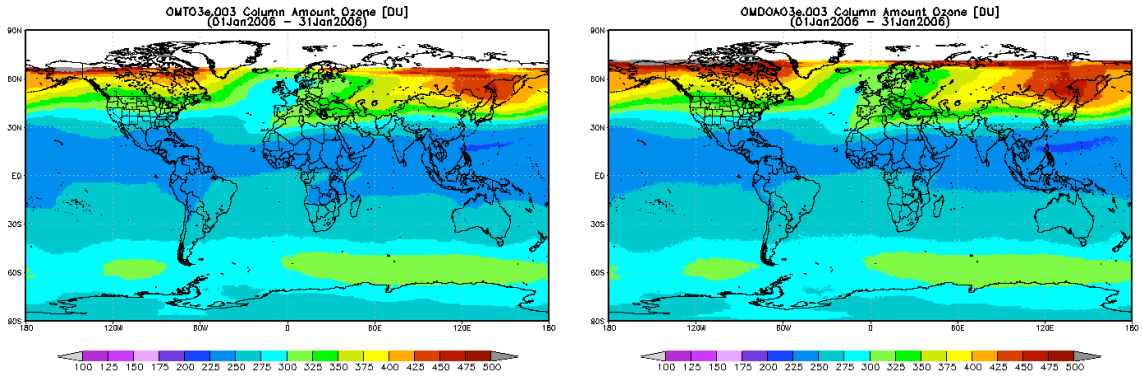

FIG. 3.1 – *Moyenne mensuelle pour janvier* 2006 *de la colonne totale d'ozone restituée à partir des algorithmes OMI-TOMS à gauche et OMI-DOAS à droite. Les produits sont projetés à une résolution horizontale de* $0.25^\circ \times 0.25^\circ$. *Les images sont disponibles sur le site : http ://giovanni.gsfc.nasa.gov/*

3.1.2 L'éclairement UV à la surface

L'algorithme OMI-UV permettant d'estimer l'éclairement UV à la surface est similaire à l'algorithme initialement développé pour TOMS [Herman et al., 1999; Krotkov et al., 1998; 2001; Tanskanen et al., 2006]. Celui-ci est développé au FMI (Finnish Meteorological Institute) en collaboration avec le GSFC.

Dans un premier temps, l'algorithme fait une estimation de l'éclairement UV à la surface par ciel clair en utilisant en entrée du code de transfert radiatif TOMRAD [Dave, 1964], une quantité d'ozone, l'albédo de surface, l'altitude du site étudié, l'angle solaire zénithal et un profil de température. La quantité d'ozone est fournie par OMI et l'albédo de surface est obtenu à partir d'une climatologie basée sur les mesures de TOMS (NIMBUS-7) [Tanskanen, 2004]. Ensuite, une correction est faite en tenant compte de l'atténuation de l'éclairement par les nuages et par les aérosols diffusants [Tanskanen et al., 2006]. Cette atténuation par les nuages est obtenue à partir d'un modèle de transfert radiatif utilisant l'approximation "plan - parallèle" avec des nuages homogènes. Il est prévu que l'algorithme prenne ensuite en compte l'effet des aérosols absorbants en utilisant l'indice aérosol (AI) d'OMI [Torres et al., 1998]. Cet indice, qui est un paramètre semi-quantitatif permettant de détecter les aérosols absorbants, sera défini plus en détail dans le paragraphe suivant portant sur les produits aérosols OMI. En effet, une correction est à apporter au rayonnement UV en présence d'aérosols absorbants car une sous-estimation de l'atténuation de l'éclairement UV pour des régions affectées par les aérosols de pollution est généralement observée [Arola et al., 2005; Tanskanen et al., 2007; Krotkov et al., 2005].

Les fichiers OMI-UV contiennent les éclairements spectraux à quatre longueurs d'onde 305.1, 310.1, 324.1 et 380.1 nm, qui sont calculés à partir d'une fonction fente triangulaire

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

de largeur à mi-hauteur 0.55 nm. Ils contiennent également une estimation des puissances érythémateuses à midi solaire et une estimation des doses érythémateuses journalières.

De même que pour l'ozone, la figure 3.2 présente des exemples de moyennes des doses érythémateuses journalières obtenues à partir de l'algorithme OMI-UV pour les mois de juillet 2005 et de janvier 2006, sur l'ensemble du globe. Sur ces deux cartes, nous pouvons remarquer les changements d'éclairement UV arrivant à la surface en fonction des saisons sur l'ensemble du globe.

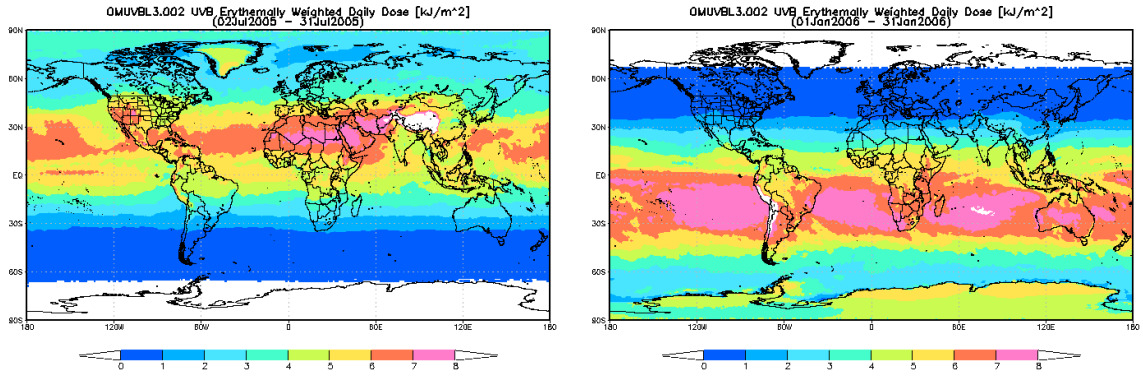

FIG. 3.2 – *Moyennes mensuelles des doses érythémateuses journalières obtenues à partir de l'algorithme OMI-UV pour juillet* 2005 *à gauche et janvier* 2006 *à droite. Images du site : http ://giovanni.gsfc.nasa.gov/*

3.1.3 Les produits aérosols OMI

La première approche pour retrouver les propriétés des aérosols dans l'UV est apparue à la fin des années 1990 avec l'indice aérosol (Aerosol Index en anglais ou AI) TOMS [Herman et al., 1997]. Par la suite, une méthode d'inversion permettant de retrouver des produits tels que l'épaisseur optique et l'albédo de diffusion simple des aérosols dans le domaine UV a été développée [Torres et al., 2002a]. Ces produits ont fait l'objet d'une validation avec les mesures des photomètres solaires du réseau AERONET/PHOTONS sur la période $1996 - 2000$ et pendant la campagne de mesures en Afrique du Sud, SAFARI 2000 (Southern AFricAn Regional Science Initiative). Dans la plupart des cas, pour les aérosols non absorbants, les épaisseurs optiques TOMS étaient en accord à $\pm 20\%$ avec celles d'AERONET/PHOTONS. Pour les aérosols absorbants, l'accord était à $\pm 30\%$ [Torres et al., 2002a]. Ces résultats se sont confirmés au cours de la campagne SAFARI 2000 [Torres et al., 2005] pour les aérosols carbonés issus des feux de biomasse. On s'attend donc à ce que la précision sur les produits aérosols OMI soit donc bien moins bonne que celle des produits ozone, le capteur étant au départ dédié à l'observation de l'ozone.

En ce qui concerne l'instrument OMI, l'algorithme "OMAERUV" de restitution des

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

propriétés des aérosols, utilisé dans cette étude, est basé sur les mêmes méthodes d'inversion que celles de TOMS à partir des mesures de luminance à 354 et 388 nm. Les produits aérosols fournis sont l'AI, l'épaisseur optique d'absorption (Absorbing Aerosol Optical Thickness ou AAOT) et d'extinction (AOT) des aérosols à 388 nm [Torres et al., 2007].

Dans le domaine de longueurs d'onde UV, l'albédo de sol est généralement très faible [Herman et Celarier, 1997], quel que soit le type de surface, même dans les régions arides. Les surfaces recouvertes de végétation ont un albédo ne dépassant pas 4% alors que les surfaces les plus réfléchissantes (à l'exclusion de la neige) sont les surfaces désertiques avec un albédo d'environ 8%. Pour les longueurs d'onde supérieures à 400 nm, l'albédo reste faible pour les surfaces océaniques et la plupart des surfaces recouvertes de végétation, mais augmente rapidement avec la longueur d'onde pour les surfaces arides.
Etant donné cette faible contribution de la surface dans le domaine UV, la mesure d'OMI est principalement influencée par la diffusion Rayleigh et par l'extinction par les aérosols. L'importance dans l'UV des diffusions multiples par les molécules renforce l'absorption par les aérosols et favorise leur détection, permettant ainsi une estimation de l'épaisseur optique d'absorption des aérosols à la fois sur terre (à l'exclusion de la neige) et sur mer.

3.1.3.1 L'indice en aérosol OMI

La notion de l'AI (appelé aussi résidu) a été développée initialement à partir des observations de TOMS [Herman et al., 1997; Torres et al., 1998]. C'est un paramètre semi-quantitatif, qui fournit une indication de la présence dans l'atmosphère de particules absorbant dans l'UV.
Il est défini comme suit [Torres et al., 2002b] :

$$AI = -100\left[\log\left(\frac{I^{mes}_{\lambda_1}}{I^{mes}_{\lambda_2}}\right) - \log\left(\frac{I^{calc}_{\lambda_1}(A_{LER_{\lambda_1}})}{I^{calc}_{\lambda_2}(A_{LER_{\lambda_2}})}\right)\right] \tag{3.1}$$

où :

- $(I_{\lambda_1})_{mes}$ et $(I_{\lambda_2})_{mes}$ sont les luminances mesurées au sommet de l'atmosphère à deux longueurs d'onde $(\lambda_2 > \lambda_1)$.

- $(I_{\lambda_1})_{calc}$ et $(I_{\lambda_2})_{calc}$ sont les luminances calculées au sommet d'une atmosphère purement moléculaire limitée par une surface lambertienne.

- $A_{LER_{\lambda_1}}$ et $A_{LER_{\lambda_2}}$ sont les réflectances[1] de cette surface (LER= "Lambert Equivalent

[1] réflectance R = $\frac{\pi \times \text{luminance au sommet de l'atmosphère}}{\text{éclairement solaire arrivant sur une surface horizontale au sommet de l'atmosphère}}$

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Reflectivity") supposée lambertienne. $A_{LER_{\lambda_2}}$ est telle que $I^{calc}_{\lambda_2}(A_{LER_{\lambda_2}}) = I^{mes}_{\lambda_2}$. $A_{LER_{\lambda_1}}$ est déduite de $A_{LER_{\lambda_2}}$ au moyen des variations spectrales de l'albédo de surface estimées à partir des mesures de réflectances de TOMS aux longueurs d'onde 331, 340, 360 et 380 nm [Torres, communication personnelle].

L'AI OMI dans l'UV est établi pour les longueurs d'onde (λ_1, λ_2) = (354 nm, 388 nm), les rélectances de surface à ces longueurs d'onde étant dérivées de la climatologie TOMS.

Il peut s'écrire plus simplement [Torres et al., 2007] :

$$AI = -100 \log \left(\frac{I^{mes}_{354}}{I^{calc}_{354}(A_{LER_{354}})} \right) \tag{3.2}$$

L'AI est une mesure de l'écart entre le contraste spectral observé par le capteur et celui calculé "théoriquement" pour une atmosphère purement moléculaire. Cet indice est donc lié aux effets spectraux des aérosols. Torres et al. [1998], Hsu et al. [1999] et De Graaf et al. [2005] ont montré que l'AI est sensible au contenu en aérosols (épaisseur optique), à l'albédo de diffusion simple (absorption) et aussi à l'altitude de la couche d'aérosols.

L'AI permet de séparer les aérosols de la façon suivante :

• AI > 0 pour les aérosols absorbants dans l'UV tels les aérosols de type désertique (poussières minérales) et les particules carbonées issues de brûlage de biomasse.

• AI < 0 pour les petits aérosols non - absorbants dans l'UV principalement les aérosols de type sulfate et sels marins ou bien les aérosols absorbants situés à trop basse altitude.

• AI $\sim$ 0 en présence de nuages ou en absence d'aérosols.

L'AI va donc permettre de différencier les aérosols carbonés et minéraux qui absorbent dans l'UV, des autres types d'aérosols (sulfate et sels marins) qui sont purement diffusants. De Graaf et al. [2005] ont montré que lorsque les aérosols sont situés près de la surface, l'AI est faible voire négatif ce qui rend difficile la séparation des aérosols absorbants de ceux non absorbants.

La figure 3.3 présente un exemple de distribution globale de l'AI-OMI pour la période du mois de janvier 2006. Nous pouvons remarquer un indice élevé supérieur à 2 sur quelques régions du globe, notamment en Afrique de l'Ouest où la présence d'aérosols absorbants est dominante, du fait des poussières minérales issues du Sahara et du Sahel et des particules carbonées issues des feux de biomasse. Nous reviendrons sur cette région dans la partie 3.3 de ce chapitre.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

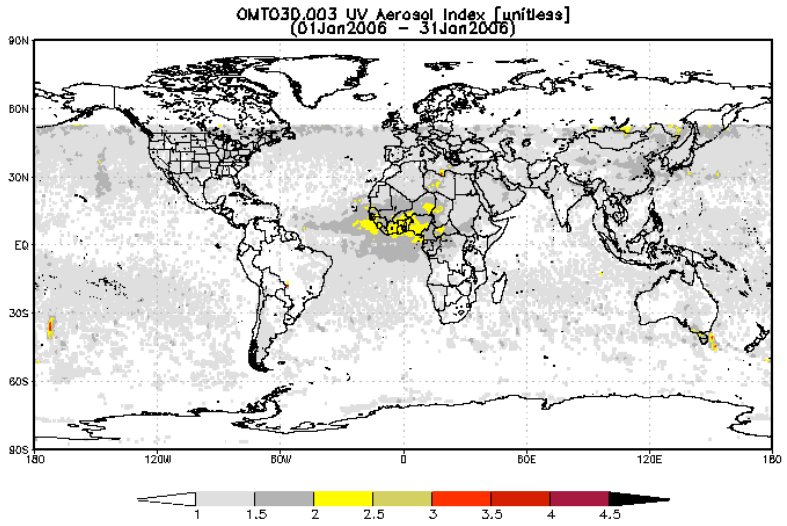

FIG. 3.3 – *Moyenne mensuelle pour janvier* 2006 *des AI restitués à partir de l'algorithme OMAERUV. Image du site : http ://giovanni.gsfc.nasa.gov/*

3.1.3.2 Restitution des épaisseurs optiques d'absorption et d'extinction des aérosols

L'algorithme "OMAERUV", développé au GSFC est décrit dans Torres et al. [1998]. Les épaisseurs optiques d'absorption (AAOT) et les AOT à 388 nm sont obtenues à partir d'un algorithme d'inversion qui utilise des réflectances au sommet de l'atmosphère, simulées à l'aide d'un code de transfert radiatif pour différents modèles d'aérosols, et stockées dans des LUT.

Parmi les modèles d'aérosols utilisés, trois grands types d'aérosols sont considérés : les particules minérales de type désertique, les aérosols carbonés associés aux feux de biomasse, et les aérosols de sulfates. Chaque type d'aérosol est ensuite représenté par 7 modèles différents, conduisant à un total de 21 modèles microphysiques. Chaque modèle est défini par sa distribution en taille et son indice de réfraction complexe, paramètres obtenus à partir des observations faites sur une grande période de temps par les photomètres AERONET/PHOTONS. La sélection du modèle d'aérosol utilisé est faite à la fois en utilisant des considérations géographiques (via la localisation des sources d'émission et du transport), et à partir de mesures spectrales (via l'AI et un effet d'assombrissement des scènes par les poussières [Torres et al., 2007]). Comme on l'a vu au 3.1.3.1, l'AI permet de différencier les aérosols absorbants dans l'UV (aérosols carbonés et poussières désertiques) de ceux faiblement ou non absorbant dans l'UV (sulfates et sels marins). L'effet d'assombrissement va permettre de distinguer les deux types d'aérosols absorbants. La distinction entre les aérosols carbonés et les poussières désertiques est possible car ils conduisent à des LER à 388 nm ($A_{LER_{\lambda_2}}$) différentes. On constate que l'écart entre ($A_{LER_{\lambda_2}}$) et la valeur climatologique est plus faible pour les poussières (effet d'assombrissement de

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

la scène) que pour les aérosols carbonés (effet d'éclaircissement de la scène). Une valeur seuil (= 0.08) de la différence (A_{LER} - climatologie) est utilisée pour permettre la distinction [Torres et al., 2007] [OMAERUV Readme File[2]].

Les AOT et AAOT retrouvées vont dépendre de l'altitude de la couche d'aérosols qui sera considérée dans l'algorithme OMAERUV. Le choix de l'altitude de la couche s'effectue en fonction du modèle d'aérosol choisi. La concentration des aérosols non absorbants comme les sulfates est maximale à la surface et diminue exponentiellement avec l'altitude. D'après Torres et al. [2007] pour ce type d'aérosol, la dépendance des produits aérosols OMI à l'altitude de la couche est négligeable. Les aérosols absorbants sont concentrés dans une couche qui a un profil de forme gaussienne. Ce type d'aérosol, comme les particules carbonées, est situé généralement à haute altitude. Pour les aérosols désertiques, l'altitude de la couche peut varier entre 1.5 km et 10 km, et son estimation se fait à l'aide d'une climatologie établie à partir de simulations faites avec le modèle global GOCART (Goddard Chemistry Aerosol Radiation and Transport) [Ginoux et al., 2001]. Pour les aérosols non absorbants, il est à noter que la contamination par les nuages du pixel OMI est une source d'incertitude importante dans l'algorithme, provoquant une surestimation de l'AOT [Torres et al., 2007].
Des épaisseurs optiques à 354 nm et 500 nm sont également calculées à partir des valeurs d'AOT obtenues à 388 nm. En raison de cette conversion basée sur le modèle d'aérosol choisi, ces AOT sont considérées moins fiables selon Torres et al. [2007].

Parallèllement à cet algorithme OMAERUV, il existe un autre algorithme aérosol-OMI, dénommé OMAERO développé au KNMI. Cet algorithme multi-longueurs d'onde, également décrit dans Torres et al. [2007], permet de retrouver les AOT à plusieurs longueurs d'onde dans le domaine $330 - 500$ nm. Une validation des produits aérosols issus de cet algorithme sur l'Europe a été effectuée par Curier et al. [2008]. Les comparaisons avec les AOT AERONET présentent des coefficients de corrélation assez faibles voir quasiment nuls pour certains sites. Pour d'autre sites comme Lille et Paris, les corrélations se situent aux environs de 0.6. Des comparaisons ont également été réalisées avec les produits MODIS. Des coefficients de corrélation de 0.66 sur terre et 0.79 sur mer ont été obtenus. Cependant une surestimation des AOT OMI a été observée par rapport aux AOT retrouvées à partir de l'instrument MODIS. Les principales sources d'incertitude sur l'estimation de l'AOT OMI, identifiées dans l'article, sont l'albédo de surface et la contamination du pixel OMI par les nuages. Les produits issus de cet algorithme ne sont pas utilisés dans cette thèse.

La figure 3.4 présente un exemple de distribution globale de l'AAOT-OMI à 388 nm

[2]disponible à l'adresse : http ://daac.gsfc.nasa.gov/Aura/OMI/omaeruv_v003.shtml

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

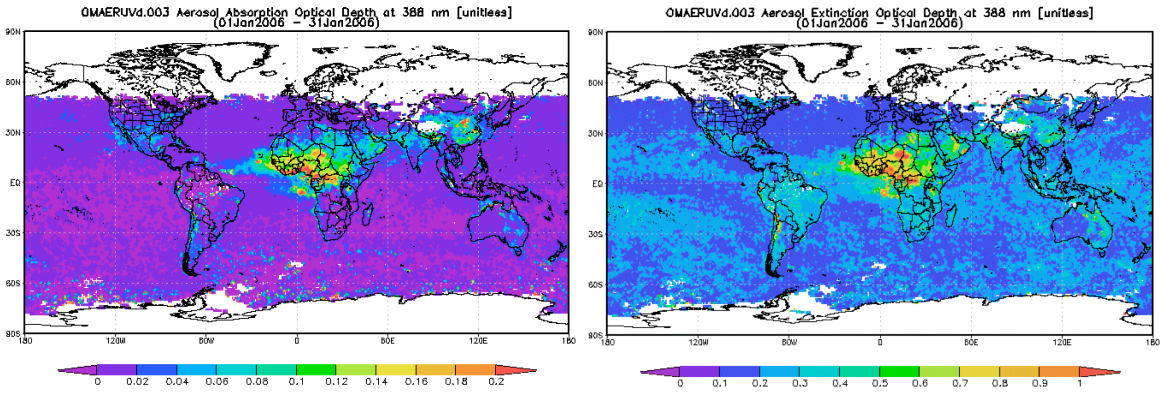

FIG. 3.4 – *Moyennes mensuelles pour janvier* 2006 *de l'AAOT à* 388 *nm (à gauche) et de l'AOT à* 388 *nm (à droite) restituées à partir de l'algorithme OMAERUV. Les produits sont projetés à une résolution horizontale de* $0.25^\circ \times 0.25^\circ$*, les images sont disponibles sur le site :http ://giovanni.gsfc.nasa.gov/*

(à gauche) et de l'AOT à 388 nm (à droite) obtenues à partir de l'algorithme OMAERUV pour la période du mois de janvier 2006. Nous pouvons remarquer sur ces deux cartes, une AAOT et une AOT élevées sur l'Afrique de l'Ouest. Au-dessus de cette région, nous avions également observé un AI assez important du fait des contenus élevés en poussières minérales et aérosols carbonés (figure 3.3). Nous reviendrons sur ces observations dans la partie 3.3 de ce chapitre.

3.2 Comparaison des produits OMI ozone, UV et aérosols avec les mesures sol en France

3.2.1 Validation de la colonne totale d'ozone

Cette étude est destinée à la validation des quantités d'ozone retrouvées à partir des deux algorithmes OMI décrits dans la section (3.1.1) en les comparant aux quantités retrouvées à partir des mesures des spectroradiomètres (méthode d'absorption différentielle décrite au chapitre 2) sur le site de VdA et sur le site de Briançon. Nous rappelons que la quantité d'ozone est obtenue à partir des spectroradiomètres avec une incertitude de 3% par ciel clair et, en présence de nuages, avec une incertitude pouvant atteindre 7% selon la couverture nuageuse [Brogniez et al., 2005]. Pour mener cette comparaison, nous avons effectué une moyenne journalière de la quantité d'ozone retrouvée par le spectroradiomètre pour les angles solaires zénithaux inférieurs à 75°. En ce qui concerne les produits OMI utilisés, nous disposons d'une ou deux valeurs par jour correspondant au passage d'OMI au dessus du site. Les résultats présentés concernent les produits de la collection 3 d'OMI.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.2.1.1 Site de Villeneuve d'Ascq

Les deux graphiques de la figure 3.5 présentent les comparaisons entre la colonne totale d'ozone (TOC) fournie par OMI à partir des deux méthodes en fonction de la valeur journalière de la quantité d'ozone du spectroradiomètre (SPUV01) à VdA. La période de comparaison est d'octobre 2005 à février 2007, soient environ 680 points.

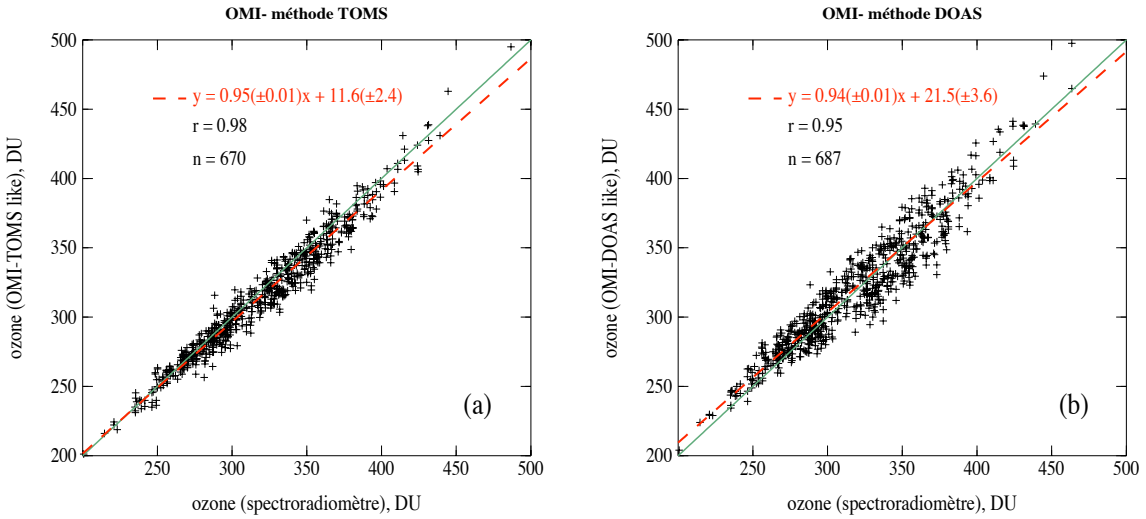

FIG. 3.5 – *Comparaison des TOC mesurées par le spectroradiomètre de VdA et restituées par OMI (méthode TOMS en (a), méthode DOAS en (b)) sur la période octobre* 2005 *à février* 2007. *La première bissectrice est représentée en vert, la droite de régression en rouge. Toutes les conditions météorologiques sont considérées.*

La figure en (a) concerne la TOC retrouvée par OMI avec l'algorithme "OMI-TOMS", celle en (b) l'ozone OMI retrouvé avec l'algorithme "OMI-DOAS". Ces comparaisons montrent qu'en général, les deux instruments s'accordent sur l'ozone retrouvé. Nous avons une corrélation significative entre les deux produits, légèrement meilleure avec la méthode TOMS, le coefficient de corrélation est égal à 0.98 alors que celui-ci vaut 0.95 pour la méthode DOAS. La pente de la droite de régression est égale à 0.94 pour OMI-DOAS avec une ordonnée à l'origine de 21.5 DU. Pour OMI-TOMS, la régression est légèrement meilleure avec une pente égale à 0.95 et une ordonnée à l'origine plus faible, 11.6 DU.

Les graphiques (a) et (b) de la figure 3.6 correspondent à la série temporelle des différences relatives $100 \times (OMI - spectro)/spectro$ pour OMI-TOMS en (a) et OMI-DOAS en (b). Sur les graphiques (c) et (d), les différences relatives sont tracées en fonction de l'angle solaire zénithal (SZA) OMI. Sur ces figures, nous avons distingué les jours nuageux (croix noires) et les jours clairs (points rouges).

Lorsque l'on examine les séries temporelles des différences relatives, nous remarquons à nouveau le bon accord entre les deux produits. Pour la majorité des points (toutes condi-

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

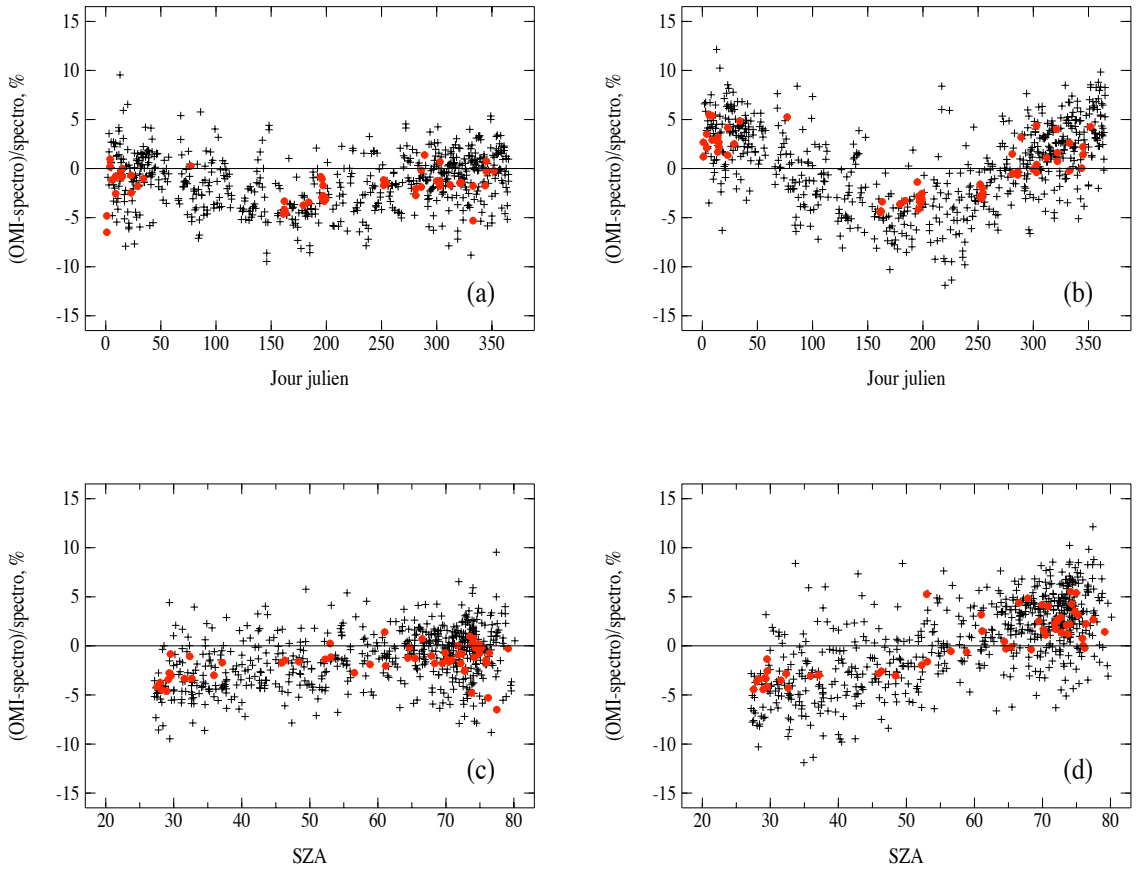

FIG. 3.6 – *Figures du haut : séries temporelles des différences relatives* $100 \times (OMI - spectro)/spectro$ *entre les mesures OMI (méthode TOMS en (a) et méthode DOAS en (b)) et les mesures du SPUV*01 *à VdA sur la période octobre* 2005 *à février* 2007. *Figures du bas : différences relatives entre les mesures OMI (méthode TOMS en (c) et méthode DOAS en (d)) et les mesures au sol en fonction de l'angle solaire zénithal. (Les croix noires montrent les jours nuageux, les points rouges les jours clairs).*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

tions météorologiques confondues) les différences excèdent rarement 7% pour les deux méthodes, ce qui est de l'ordre de grandeur des incertitudes de nos mesures. Si l'on considère uniquement les journées claires (points rouges), la comparaison est légèrement meilleure avec des différences généralement en dessous de 3% et 5% pour OMI-TOMS et OMI-DOAS respectivement.

Nous pouvons remarquer également une sous-estimation de la quantité d'ozone OMI-TOMS par rapport à celle du spectroradiomètre. Ce biais observé à VdA est propre à la collection 3 car il n'apparaissait pas dans les comparaisons avec les données OMI de la collection 2 [Buchard et al., 2008]. Le nombre de points (n), le coefficient de corrélation (r), le RMS et la moyenne des différences relatives sont indiqués dans le tableau 3.1.

TAB. 3.1 – *Statistiques concernant la comparaison de la TOC retrouvée par OMI (selon les 2 méthodes) et par le spectroradiomètre SPUV01, pour toutes conditions météorologiques confondues et aussi uniquement par ciel clair pour le site de VdA sur la période d'octobre 2005 à février 2007. (n = nombre de points, r = coefficient de corrélation,* $RMS=\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(OMI-spectro)^2}$, $\%RMS=\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(\frac{OMI-spectro}{spectro}\right)^2}\times 100$, *moyenne des différences relatives =* $\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(\frac{OMI-spectro}{spectro}\right)\times 100$.

OMI = f(spectro) - tout ciel	**n**	**r**	**RMS**	**Moy. des diff. relat.**
OMI - méthode TOMS : $y = 0.95x + 11.6$	670	0.98	9.9 DU (3%)	-1.3%
OMI - méthode DOAS : $y = 0.94x + 21.5$	687	0.95	13.5 DU (4.2%)	0.5%
OMI = f(spectro) - ciel clair				
OMI - méthode TOMS : $y = 0.95x + 9.5$	56	0.99	7.5 DU (2.4%)	-1.7%
OMI - méthode DOAS : $y = 0.95x + 15.1$	55	0.96	9.4 DU (2.9%)	0.4%

La moyenne des différences relatives nous indique un biais égal à -1.3% avec la méthode TOMS (col 3), celui-ci était égal à $+0.5\%$ avec la collection 2. Cette différence s'explique par la différence existant entre la collection 2 et la 3, liée principalement à un changement de l'étalonnage de l'instrument OMI [Dobber et al., 2008a]. A VdA, les produits de la collection 3 sont inférieurs d'environ 1.7% par rapport à ceux de la collection 2.

Sur la figure 3.6 nous pouvons de plus observer un effet saisonnier apparaissant à la fois pour les journées claires et nuageuses pour OMI-DOAS (figure 3.6b). Celui-ci apparaît également mais de façon moins prononcée pour OMI-TOMS (figure 3.6a). Cet effet, également signalé par Kroon et al. [2008], est dû à un effet de l'angle solaire zénithal comme on peut le vérifier sur les figures 3.6c et 3.6d. Il avait déjà été mis en évidence lors des études

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

menées avec les produits OMI-DOAS de la collection 2 à VdA [Buchard et al., 2008] et aussi sur d'autres sites à l'aide de spectroradiomètre de marque Brewer et Dobson [Balis et al., 2007]. Des nouvelles masses d'air dans le calcul des produits de la collection 3 ont atténué cet effet sur certains sites [Kroon et al., 2008]. Toutefois, sur le site de VdA, celui-ci n'est pas corrigé.

La figure 3.7 présente les histogrammes des différences relatives pour OMI-TOMS à gauche et OMI-DOAS à droite. Plus de 50% des differences sont comprises entre -2% et 2% pour OMI-TOMS, alors que pour OMI-DOAS, il n'y a que 31% des valeurs qui sont comprises dans cet intervalle. Le meilleur accord avec OMI-TOMS se traduit également par le RMS qui vaut 3% alors que celui-ci est égal à 4.2% avec OMI-DOAS (tab 3.1). La moyenne des différences relatives pour la méthode DOAS est proche de zéro (0.5% et 0.4% pour tout ciel et ciel clair respectivement) en raison de l'effet saisonnier observé.

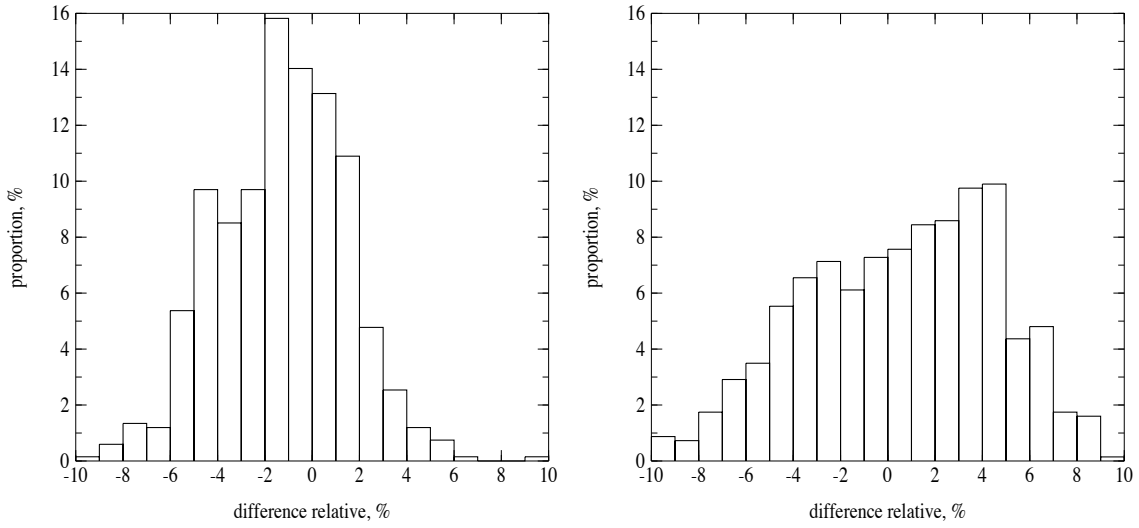

FIG. 3.7 – *Histogrammes des différences relatives* $100 \times (OMI - spectro)/spectro$ *pour OMI-TOMS à gauche et OMI-DOAS à droite à VdA pour la période octobre* 2005 *à février* 2007.

3.2.1.2 Site de Briançon

Nous avons réalisé des comparaisons analogues sur le site de Briançon pour une période allant d'octobre 2004 à septembre 2005. Cette période correspond au début des données fournies par OMI et à la fin des mesures du spectroradiomètre SPUV02 à Briançon. Ces résultats présentés sur la figure 3.8 montrent qu'en général la quantité d'ozone retrouvée par OMI, quelle que soit la méthode utilisée, est en accord avec celle retrouvée avec le spectroradiomètre. Les corrélations existant entre les deux produits sont très bonnes, légèrement meilleures pour la méthode TOMS, (r=0.99), que pour la méthode DOAS, (r=0.97).

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

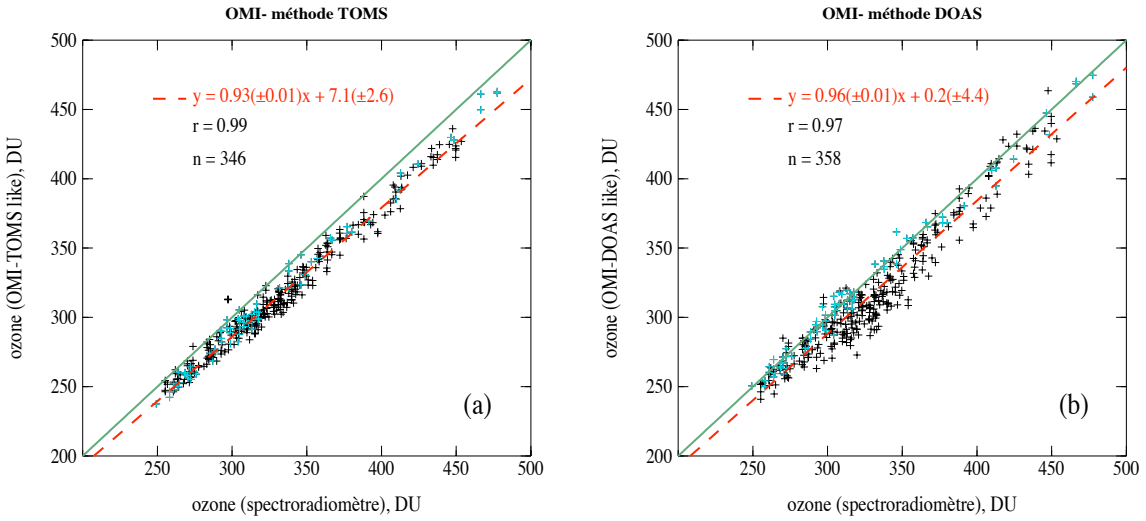

FIG. 3.8 – *Même légende que la figure 3.5 mais pour Briançon pour la période d'octobre* 2004 *à septembre* 2005 *(les croix noires représentent les jours nuageux, les croix bleues les jours avec de la neige au sol).*

Si on examine les différences relatives (figure 3.9), dans un premier temps, nous pouvons à nouveau remarquer une sous-estimation des valeurs d'ozone pour OMI-TOMS par rapport à celles du spectroradiomètre. Les valeurs d'ozone OMI-DOAS sont aussi généralement inférieures à celles du spectroradiomètre.

Le RMS et la moyenne des différences relatives sont indiqués dans le tableau 3.2.

TAB. 3.2 – *Même légende que le tableau 3.1 mais pour le site de Briançon et pour la période allant d'octobre* 2004 *à septembre* 2005.

OMI = f(spectro) - tout ciel	**n**	**r**	**RMS**	**Moy. des diff. relat.**
OMI - méthode TOMS : $y = 0.93x + 7.1$	346	0.99	17 DU (5%)	−4.5%
OMI - méthode DOAS : $y = 0.96x + 0.2$	358	0.97	17.2 DU (5.1%)	−3.6%
OMI = f(spectro) - ciel clair				
OMI - méthode TOMS : $y = 0.96x - 3.1$	78	0.99	16.2 DU (5%)	−4.7%
OMI - méthode DOAS : $y = 0.99x - 9.5$	77	0.97	14 DU (4.4%)	−3.1%

La moyenne des différences relatives nous indique un biais d'environ −4.5% pour la méthode TOMS et d'environ −3.6% pour la méthode DOAS pour toutes les conditions météorologiques. Ce biais existait également dans les comparaisons avec les produits OMI-TOMS de la collection 2 mais était légèrement inférieur [Buchard et al., 2008] égal à −3.1%. (La comparaison avec la méthode DOAS n'avait pu être faite, les données de la collection 2 étant non disponibles pour la période étudiée). Comme observé précédem-

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

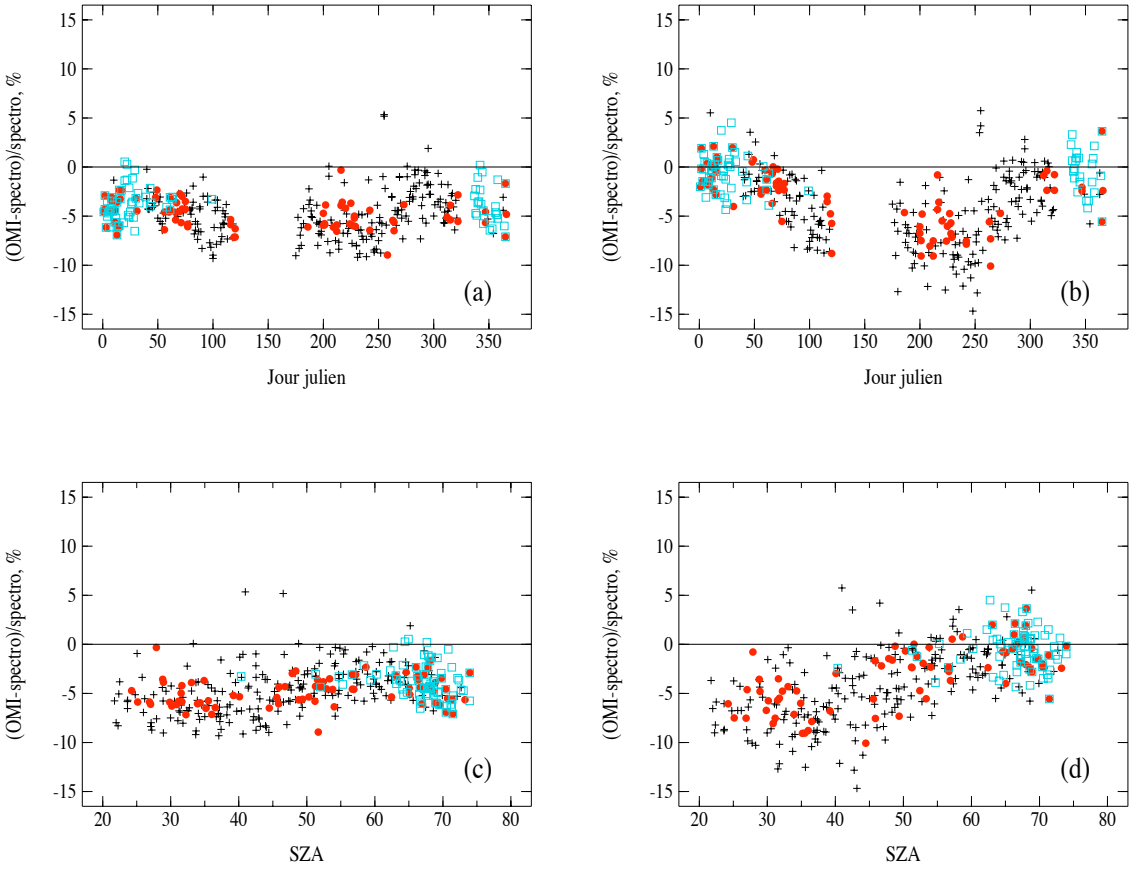

FIG. 3.9 – *Même légende que la figure 3.6 mais pour Briançon et pour la période d'octobre* 2004 *à septembre* 2005 *(les croix noires représentent les jours nuageux, les carrés bleus les jours avec de la neige au sol et les points rouges les jours clairs).*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

ment sur le site de VdA, les données de la collection 3 sont inférieures d'environ 1.7% en moyenne par rapport à la collection 2 sur le site de Briançon.

L'effet saisonnier observé à VdA pour la méthode DOAS apparaît également sur le site de Briançon que ce soit pour les journées claires (points rouges) ou nuageuses (croix noires) (figure 3.9b). Cet effet est aussi visible mais de manière moins prononcée pour la méthode TOMS (figure 3.9a). Il semble dans les deux cas être dû également à un effet de SZA comme le montrent les figures 3.9c et 3.9d. Mais contrairement à VdA et aux observations de Kroon et al. [2008], les différences relatives sont plus importantes aux angles solaires les plus faibles.

Malgré la présence de neige au sol certains jours (carrés bleus), les différences entre les deux instruments ne sont pas plus importantes pour ces journées. De même on n'observe pas de différences significatives entre les jours clairs et les jours nuageux.
De manière générale, concernant OMI-TOMS les différences relatives sont les plus importantes en été avec une valeur maximale d'environ 7%. Le RMS vaut 5%. Pour la méthode DOAS, les différences relatives sont les plus faibles en hiver, avec des valeurs inférieures à 5% et peuvent atteindre 10 à 12% en été. Ces différences de comportement entre l'hiver et l'été induisent un RMS moyen de 5.1% pour toute l'année à Briançon.

Nous avons vu l'existence d'un biais entre les valeurs d'ozone restituées par OMI et celles du spectroradiomètre SPUV02 avec des différences plus importantes aux faibles SZA. Ne pouvant pas expliquer ce biais, nous avons effectué des comparaisons similaires avec le deuxième instrument présent sur le site de Briançon, le spectroradiomètre de marque Bentham de l'IRSA effectuant le même type de mesures que le SPUV02. Les séries temporelles des différences relatives entre les valeurs OMI (TOMS en (a), DOAS en (b)) et celles du Bentham sont présentées sur la figure 3.10. Les statistiques concernant cette étude sont résumées dans le tableau 3.3.

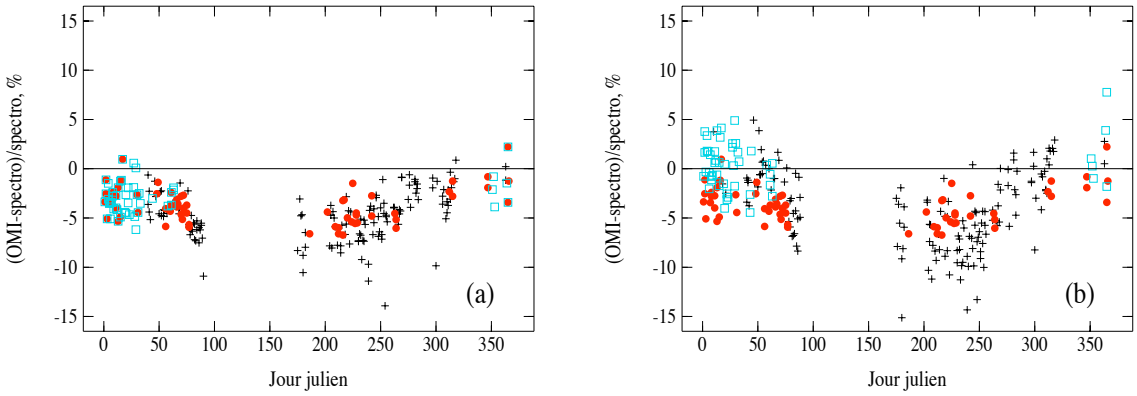

FIG. 3.10 – *Même légende que la figure 3.9(a) et (b) mais pour le spectroradiomètre BENTHAM à Briançon.*

Le biais observé avec le SPUV02 apparaît de nouveau avec le Bentham mais celui-ci

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 3.3 – *Même légende que le tableau 3.2 mais pour le spectroradiomètre BENTHAM.*

OMI = f(spectro) - tout ciel	**n**	**r**	**RMS**	**Moy. des diff. relat.**
OMI - méthode TOMS : $y = 0.95x + 3.9$	234	0.98	16 DU (4.7%)	-4.1%
OMI - méthode DOAS : $y = 0.99x - 9.4$	241	0.96	16.3DU (4.7%)	-2.9%
OMI = f(spectro) - ciel clair				
OMI - méthode TOMS : $y = 0.95x + 4.4$	64	0.99	13.2 DU (4.1%)	-3.6%
OMI - mét hode DOAS : $y = 0.95x + 5.2$	63	0.99	13.3DU (4.1%)	-3.6%

est légèrement moins important, la moyenne des différences relatives est égale à -4.1% et -2.9% respectivement pour OMI-TOMS et OMI-DOAS alors que précédemment nous avions -4.5% et -3.6%. Les écarts moyens sont également un peu plus faibles, les RMS valent 4.7% pour les deux méthodes alors que ceux-ci étaient égaux à 5% pour OMI-TOMS et 5.1% pour OMI-DOAS.

Aucune explication précise n'a été trouvée sur l'origine de ce biais à Briançon ; plusieurs hypothèses peuvent être émises, comme un problème d'étalonnage des mesures du spectroradiomètre, ou encore un problème lié à l'orographie, la ville étant localisée en région alpine.

En conclusion, les mesures spectrales journalières à Vda et à Briançon ont permis de comparer la quantité d'ozone retrouvée à partir des mesures d'OMI. Sur les deux sites, les comparaisons avec OMI-TOMS et OMI-DOAS sont satisfaisantes avec des coefficients de corrélations supérieurs à 0.95 et des différences relatives généralement inférieures aux incertitudes existantes déduites des mesures du spectroradiomètre (3% par ciel clair et 7% par ciel nuageux). Les comparaisons avec OMI-TOMS se sont révélées meilleures avec toutefois un biais qui est apparu avec les données de la collection 3. Concernant la méthode DOAS, un effet saisonnier apparaît sur les deux sites, cet effet a été identifié comme étant dû à un effet de l'angle solaire zénithal. Enfin sur le site de Briançon, les valeurs de la quantité d'ozone OMI retrouvées à partir des deux méthodes sont systématiquement inférieures aux valeurs retrouvées par les deux spectroradiomètres. L'origine de ce biais n'a pas été identifiée, seules deux hypothèses ont pu être avancées.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.2.2 Validation de l'éclairement UV spectral

Les éclairements UV mesurés par OMI et le spectroradiomètre au sol ne sont pas directement comparables. L'algorithme OMI fournit l'éclairement UV spectral à 305.1, 310.1, 324.1 et 380.1 nm calculé à partir d'une fonction fente triangulaire dont la FWHM vaut 0.55 nm, alors que le spectroradiomètre SPUV01 possède une fonction fente de largeur à mi-hauteur de 0.75 nm. Afin d'effectuer la comparaison de l'éclairement UV spectral entre les deux instruments de la meilleure manière possible, il est nécessaire dans un premier temps de ramener les mesures à la même résolution. Pour cela, nous avons d'abord déconvolué notre spectre de la fonction fente de l'instrument, puis nous l'avons reconvolué avec une fonction fente triangulaire de largeur à mi-hauteur 0.55nm. Pour effectuer cette étape, nous avons utilisé l'algorithme SHICrivm [Slaper et al., 1995].

Les produits OMI UV officiels sont calculés à midi-solaire, ce qui ne correspond pas à l'heure de mesure du satellite (à "l'overpass"). Dans le calcul de ces produits, les changements des conditions météorologiques entre l'heure du passage d'OMI et midi-solaire ne sont pas pris en compte. Des comparaisons avec les mesures du spectroradiomètre à VdA ont dans un premier temps été effectuées avec ces données mais les résultats obtenus présentaient des désaccords importants (non présentés). Pour cette raison, des produits UV (éclairement spectral et puissance érythémateuse) de la collection 2 correspondant à l'heure du passage d'OMI au-dessus de VdA nous ont été spécialement fournis par A. Tanskanen, responsable de l'algorithme OMI-UV. Il ne les a pas fournis pour Briançon, la validation de ces produits ne s'effectuera donc que sur le site de VdA.

Nous ne validerons que les éclairements aux longueurs d'onde 324.1 et 380.1 nm car pour les deux autres 305.1 et 310.1 nm, le signal est très faible et la mesure du spectroradiomètre présente de grandes incertitudes.

Les deux graphiques de la figure 3.11 présentent le résultat de la comparaison des éclairements UV spectraux à 324.1 en (a) et 380.1 nm en (b) des deux intruments. Sur chacun d'entre eux, l'éclairement UV - OMI correspondant à l'heure du passage sur VdA, est reporté en ordonnée, l'éclairement UV du spectroradiomètre est reporté en abscisse. Cette comparaison n'est effectuée que pour des conditions de ciels clairs sur la période allant d'octobre 2005 à février 2007, ce qui explique le faible nombre de points observés (n = 49). Pour les deux longueurs d'onde, les points sont très bien corrélés (r = 0.99). Cependant, à 324.1 nm (figure 3.11 a), nous pouvons remarquer qu'il existe un biais avec une surestimation des éclairements OMI par rapport aux mesures du spectroradiomètre d'environ 6.5% en moyenne (tableau 3.4). En ce qui concerne 380.1 nm (figure 3.11 b), un biais positif apparaît également mais uniquement pour les faibles valeurs d'éclairements.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

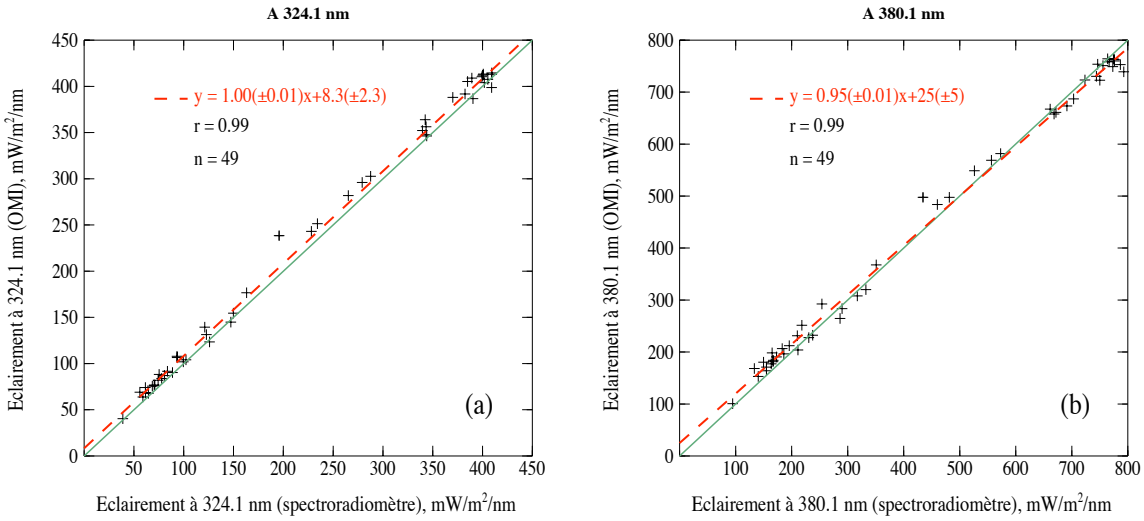

FIG. 3.11 – *Comparaison des éclairements UV spectraux à 324.1 nm en (a) et 380.1 nm en (b) obtenus à partir des mesures du spectroradiomètre sur l'axe des abscisses et d'OMI sur l'axe des ordonnées pour la période octobre* 2005 *à février* 2007.

Le tableau 3.4 résume les statistiques calculées sur l'écart entre les éclairements UV d'OMI et du spectroradiomètre pour chacune des longueurs d'onde 324.1 et 380.1 nm.

TAB. 3.4 – *Même légende que le tableau 3.1 mais pour les éclairements UV spectraux à* 324.1 *nm et* 380.1 *nm.*

OMI = f(spectro) - ciel clair	**n**	**r**	**RMS**	**Moy. des diff. relat.**
324.1 nm : $y = 1.0x + 8.3$	49	0.99	12.5 $mW/m^2/nm$ (8.8%)	6.4 %
380.1 nm : $y = 0.95x + 25$	49	0.99	21.5 $mW/m^2/nm$ (8.4%)	3.7 %

La figure 3.12 qui reporte les différences relatives $100 \times (OMI - spectro)/spectro$ en fonction des éclairements à 324.1 nm en (a) et à 380.1 nm en (b) confirme l'existence de ces biais positifs. Nous remarquons que pour les deux longueurs d'onde, les écarts les plus importants, allant jusque 25%, apparaissent pour les plus faibles éclairements. Ces éclairements correspondent aux angles solaires zénithaux les plus élevés comme on peut le voir sur la figure 3.12 où les SZA supérieurs à 65° sont représentés par des + rouges. L'existence de ce biais peut s'expliquer par le fait qu'aux grands angles, les éclairements sont mesurés par le spectroradiomètre avec une plus grande incertitude.

De plus les aérosols, plus particulièrement les aérosols absorbants, atténuent le rayonnement UV arrivant à la surface. Les aérosols urbains peuvent ainsi engendrer des réductions significatives du rayonnement UV. L'algorithme OMI - UV actuel ne prend pas en compte les aérosols absorbants présents dans la couche limite, nous avons par conséquent cherché si les différences observées pouvaient s'expliquer par la présence d'aérosols

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

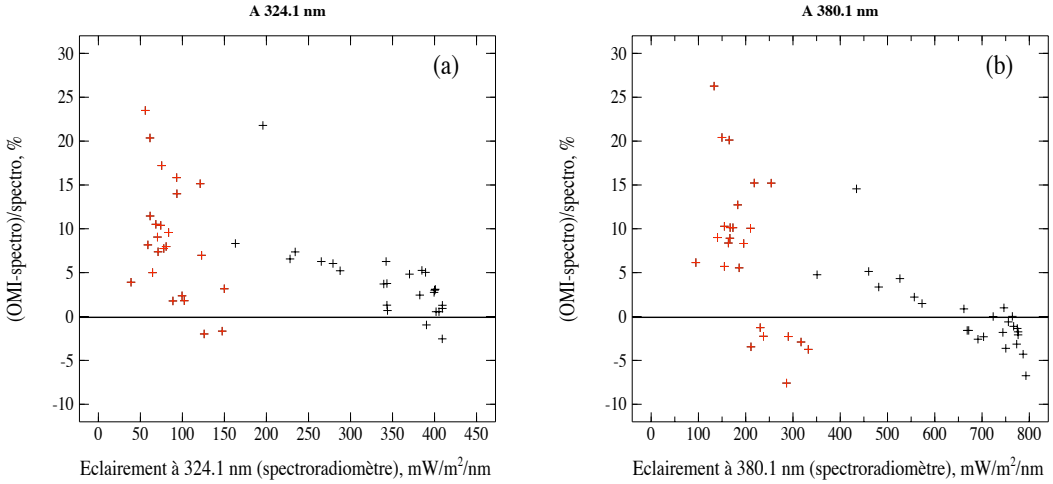

FIG. 3.12 – *Différences relatives des éclairements UV (OMI - spectro)/ spectro en pourcent en fonction des éclairements UV du spectroradiomètre à* 324.1 *en (a) et à* 380.1 *nm en (b). Les croix rouges correspondent aux SZA* > 65°.

absorbants dans l'atmosphère. Pour cela, nous avons estimé une épaisseur optique d'absorption à 330 nm et à 380 nm à partir de l'albédo de diffusion simple et de l'épaisseur optique des aérosols que nous déduisons des mesures du spectroradiomètre par ciel clair (chapitre 2). Nous avons choisi les AAOT à 330 nm en raison des incertitudes élevées existant sur les AOT et donc sur le ω_0 en dessous de cette longueur d'onde comme nous l'avons déjà évoqué dans le chapitre précédent. Sur la figure 3.13, nous avons tracé les différences relatives à 324.1 nm et 380.1 nm en fonction de l'AAOT à 330 et 380 nm.

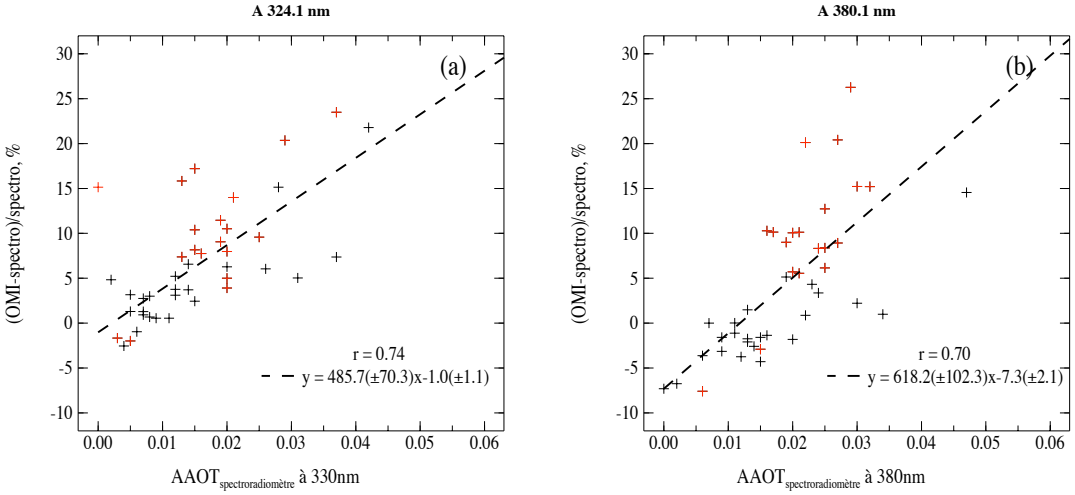

FIG. 3.13 – *Différences relatives des éclairements UV en pourcent en fonction des AAOT restituées à partir du spectroradiomètre à* 330 *nm pour la longueur d'onde* 324.1 *nm en (a) et à* 380 *nm pour la longueur d'onde* 380.1 *nm en (b). Les croix rouges correspondants aux SZA* > 65°. *La droite de régression est représentée en pointillés noirs.*

Des corrélations de 0.74 et de 0.70 sont observées à 324.1 nm et 380.1 nm respective-

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

ment, montrant qu'il existe un lien entre les différences relatives entre les éclairements UV d'OMI et du spectroradiomètre et l'épaisseur optique d'absorption des aérosols. Ce que l'on observe justifie les désaccords observés. Nos résultats sont donc en accord avec ceux de Arola et al. [2005] qui ont montré que le biais observé entre les mesures au sol et satellitaires (de l'instrument TOMS) s'expliquait par la présence d'aérosols absorbants. Ces études montrent la nécessité de tenir compte des aérosols absorbants dans l'algorithme OMI-UV.

3.2.3 Validation des puissances érythémateuses et des doses érythémateuses journalières

3.2.3.1 Validation des puissances érythémateuses

De même que pour les éclairements UV spectraux, les puissances érythémateuses OMI sont des produits spécifiques, ils ont été fournis par A. Tanskanen à l'heure du passage d'OMI au-dessus de VdA. La figure 3.14(a) présente les comparaisons avec le spectroradiomètre, la figure 3.14(b) présente celles avec le radiomètre YES pour toutes les conditions météorologiques.

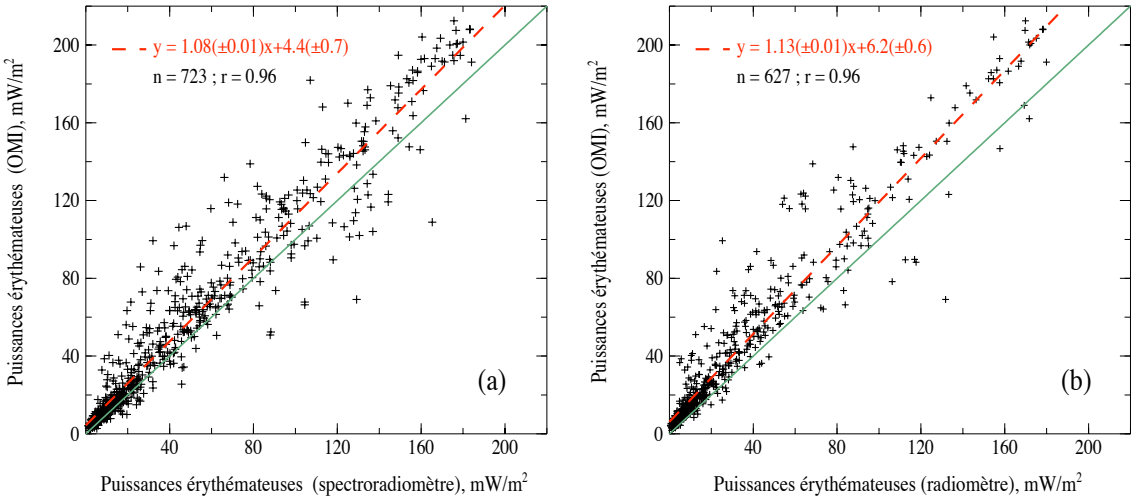

FIG. 3.14 – *Comparaison des puissances érythémateuses OMI sur l'axe des ordonnées en fonction des puissances érythémateuses sur l'axe des abscisses du spectroradiomètre en (a) et du radiomètre en (b) à VdA pour la période octobre* 2005 *à février* 2007.

La période de comparaison est la même que précédemment pour les deux figures, néanmoins les points de comparaison avec OMI des deux instruments au sol ne correspondent pas forcément aux mêmes journées car les deux instruments n'ont pas tout le temps fonctionné au même moment. Dans cette étude, un biais positif est observé sur chacune des figures indiquant que l'algorithme OMI-UV surestime les puissances érythémateuses par rapport aux mesures sol. D'après le tableau 3.5 qui résume les statis-

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

tiques issues de cette analyse, cette surestimation est d'environ 33% en moyenne pour le spectroradiomètre et d'environ 69% en moyenne pour le radiomètre.

Sur la figure 3.14, nous pouvons remarquer le nombre important de puissances érythémateuses faibles, inférieures à 20 mW/m^2. Pour le spectroradiomètre cela représente 47% des points et pour le radiomètre, 60% des points environ. Les valeurs de RMS et de biais assez élevées semblent s'expliquer par des différences relatives élevées pour ces faibles puissances. En effet, nous avons effectué les mêmes comparaisons en supprimant les plus petites puissances érythémateuses, inférieures à 20 mW/m^2 (choix effectué de manière arbitraire après un examen de la figure), nous obtenons alors des biais beaucoup plus faibles, de 22% et 34% respectivement.

TAB. 3.5 – *Même légende que le tableau 3.1 mais pour les puissances érythémateuses à l'heure du passage d'OMI et les deux instruments sol SPUV01 et YES pour tout ciel à VdA.*

Puissances érythémateuses	**n**	**r**	**RMS**	**Moy. des diff. relat.**
OMI = f (spectro) - tout ciel : $y = 1.08x + 4.4$	723	0.96	16.5 mW/m^2 (58%)	32.5%
OMI = f(radiomètre) - tout ciel : $y = 1.13x + 6.2$	627	0.96	17.1 mW/m^2 (110%)	69.3%
Puissances érythémateuses > 20 mW/m^2				
OMI = f (spectro) - tout ciel : $y = 1.03x + 10.2$	383	0.93	21.9 mW/m^2 (42%)	22.3%
OMI = f(radiomètre) - tout ciel $y = 1.05x + 13.8$	260	0.93	24.7 mW/m^2 (52.8%)	34.6%

Afin de comprendre ce biais positif, nous avons examiné les différences relatives en fonction de l'épaisseur optique nuage à 360 nm fournie par l'algorithme OMI-UV et aussi en fonction de la distance séparant le centre du pixel-OMI et le site de VdA (figure 3.15). Dans le fichier OMI - UV, les distances séparant le pixel du site sont indiquées. Pour chaque comparaison le pixel le plus proche est choisi, mais selon les journées les distances entre le pixel OMI et le site de mesures de VdA sont différentes.

Sur la figure de gauche, on observe que la différence relative entre OMI et le spectroradiomètre est plus importante pour les épaisseurs optiques nuage les plus élevées. En revanche sur la figure de droite, les différences relatives en fonction de la distance entre le centre du pixel OMI et le site de VdA ne présentent aucun effet systématique.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

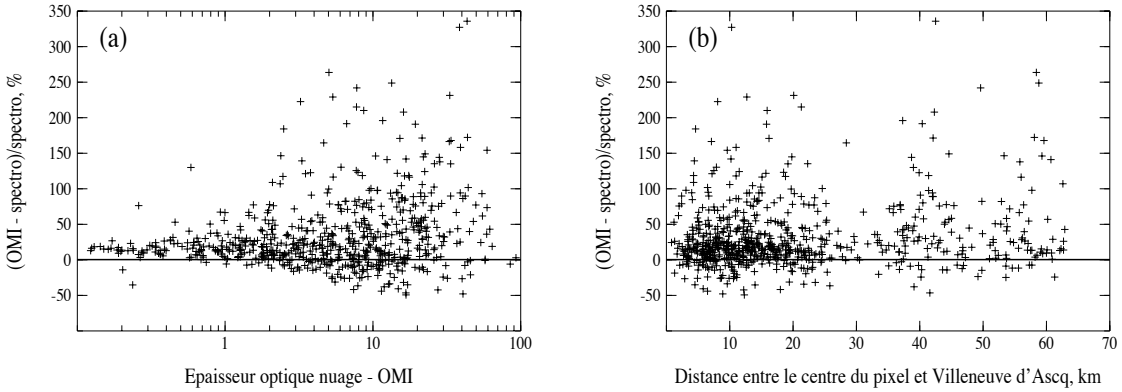

FIG. 3.15 – *En (a) : différences relatives en fonction de l'épaisseur optique nuage issue des mesures OMI à 360 nm. En (b) : différences relatives en fonction de la distance en km séparant le centre du pixel au site de VdA.*

Lorsque l'on sélectionne uniquement les conditions de ciels clairs autour de l'overpass (figure 3.16), nous avons une meilleure corrélation entre les puissances érythémateuses d'OMI et celles mesurées par les deux instruments spectroradiomètre et YES (coefficient de corrélation passant de 0.96 à 0.99) et il y a beaucoup moins de dispersion autour des droites de régression. Le RMS a diminué d'environ un facteur 2.5 à 3 selon l'instrument : Nous avons par ciel clair un RMS de 20% pour le spectroradiomètre et 45% pour le radiomètre alors que nous avions 58% et 110% respectivement. La moyenne des différences relatives a également diminué (d'un facteur 2 environ) mais les biais restent présents, ils valent désormais 17% et 39% respectivement pour le spectroradiomètre et le radiomètre (tableau 3.6).

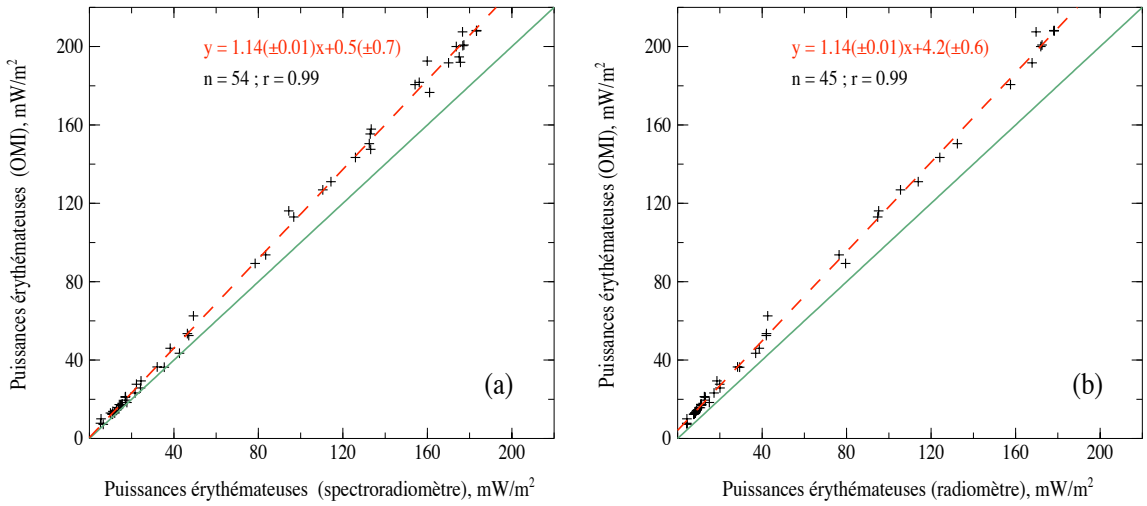

FIG. 3.16 – *Même légende que la figure 3.14 mais uniquement par ciel clair.*

Comme pour les éclairements UV spectraux, nous avons regardé l'impact de l'absorption des aérosols sur ce biais par ciels clairs. La figure 3.17 représente les différences

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 3.6 – *Même légende que le tableau 3.5 mais par ciel clair.*

Puissances érythémateuses	n	r	RMS	Moy. des diff. relat.
OMI = f (spectro) - ciel clair	54	0.99	14.7 mW/m^2 (20%)	16.8%
OMI = f(radiomètre) - ciel clair	45	0.99	15.1 mW/m^2 (45%)	38.9%

relatives en fonction de l'AAOT à 330nm. La corrélation observée (r=0.60) est plus faible que celle obtenue précédemment pour les éclairements UV spectraux à 324.1 nm (figure 3.17). Toutefois cette valeur confirme tout de même la nécessité de prendre en compte les aérosols absorbants dans l'algorithme OMI-UV.

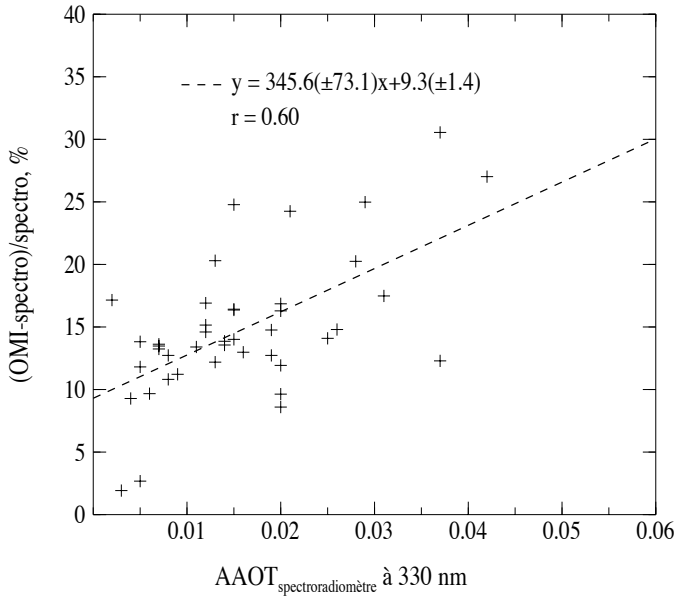

FIG. 3.17 – *Même légende que figure 3.13 mais pour les puissances erythémateuses.*

3.2.3.2 Validation des doses érythémateuses journalières

Cette étude concerne la comparaison des puissances érythémateuses intégrées sur la journée. Nous utilisons cette fois les produits officiels OMI. Par conséquent, les résultats sont présentés à la fois sur les sites de Briançon et VdA. Les doses journalières OMI sont obtenues en intégrant les puissances érythémateuses calculées à chaque heure de la journée en ne considérant que la quantité d'ozone et l'épaisseur optique nuage de la mesure OMI obtenue à "l'overpass". Les variations diurnes de la couverture nuageuse ne sont donc pas prises en compte, entraînant une grande incertitude de l'ordre de 20% sur les doses journalières OMI [Tanskanen et al., 2007; Martin et al., 2000]. Le graphique (a) de la figure 3.18 présente les doses journalières fournies par OMI en fonction de celles du spectrora-

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

diomètre SPUV02 à Briançon pour toutes les conditions météorologiques pour la période d'octobre 2004 à septembre 2005. Le graphique en (b) est la série temporelle des différences relatives. Sur cette figure, on a distingué les jours nuageux (croix noires), les jours neigeux (carrés bleus) et les ciels clairs (ronds rouges).

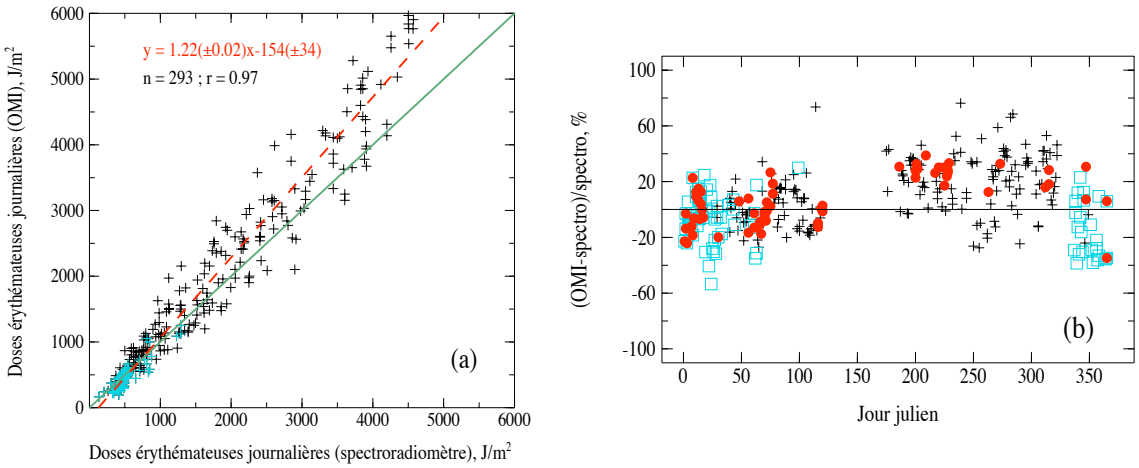

FIG. 3.18 – *En (a) : comparaison des doses érythémateuses journalières OMI sur l'axe des ordonnées en fonction des doses érythémateuses journalières du spectroradiomètre de Briançon sur l'axe des abscisses. La première bissectrice est représentée en vert, la droite de régression en rouge. En (b) : série temporelle des différences relatives entre les valeurs OMI et celles du spectroradiomètre. Toutes les conditions météorologiques sont concernées. (Les croix noires représentent les jours nuageux, les carrés bleus sont pour les jours avec la présence de neige au sol, les points rouges pour les ciels clairs, les points rouges dans un carré bleu pour les ciels clairs avec de la neige au sol). La période est octobre* 2004 *à septembre* 2005.

Sur la figure en (a), nous pouvons observer un biais positif, les doses journalières d'OMI surestiment celles du spectroradiomètre tout au moins pour les valeurs supérieures à environ 800 J/m^2 ; la pente de la droite de régression est supérieure à 1 (1.22). Si on s'intéresse à la figure (b), ce biais apparait essentiellement en été. En revanche, quand le sol est couvert de neige (carrés bleus), le contraire se produit, les doses journalières d'OMI sont généralement inférieures à celles du spectroradiomètre. Une explication peut être avancée : l'albédo de surface utilisé par l'algorithme OMI - UV est issu d'une climatologie et pour certaines journées, l'albédo de surface utilisé serait inférieur à la valeur de l'albédo de surface réel au moment de la mesure. Cette sous-estimation de l'albédo a déjà été évoquée dans des articles dont les études concernaient les données TOMS comme ceux de Kalliskota et al. [2000] et Krotkov et al. [2002]. Des études complémentaires sont nécessaires pour la confirmer.

Si nous considérons toutes les journées, la moyenne des différences relatives est de 8% (tableau 3.7), ce qui peut paraître raisonnable, toutefois dans le calcul de cette valeur, les journées où de la neige recouvre la surface créent un effet contraire à celui des autres

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

journées, et donc ont tendance à diminuer la valeur du biais. Lorsque nous les retirons du calcul, le biais augmente et la moyenne des différences relatives atteint alors 14%.

TAB. 3.7 – *Même légende que le tableau 3.1 mais pour les doses érythémateuses journalières à Briançon.*

Doses érythémateuses journalières	n	r	RMS	Moy. des diff. relat.
OMI = f (spectro) - tout ciel : $y = 1.22x - 154$	293	0.97	514 J/m^2 (24%)	7.9%
OMI = f (spectro) - sans neige au sol : $y = 1.21x - 99$	176	0.96	546 J/m^2 (25%)	14%
OMI = f(spectro) - ciel clair : $y = 1.26x - 224$	64	0.98	613 J/m^2 (19%)	7.3%

Des comparaisons analogues ont été effectuées à VdA et sont présentées sur les graphiques de la figure 3.19 pour la période d'octobre 2005 à juillet 2006.

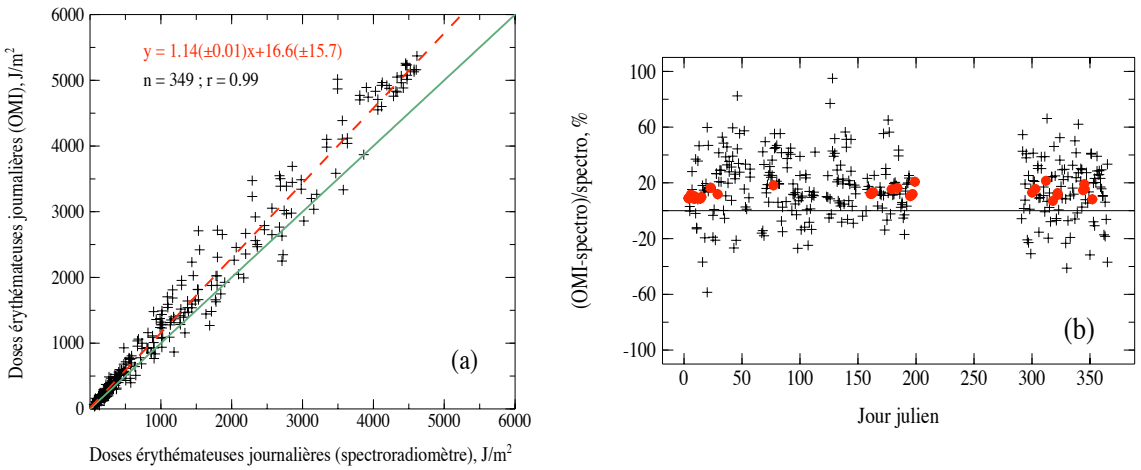

FIG. 3.19 – *Même légende que la figure 3.18 mais pour VdA.*

TAB. 3.8 – *Même légende que le tableau 3.7 mais pour VdA*

Doses érythémateuses journalières	n	r	RMS	Moy. des diff. relat.
OMI = f (spectro) - tout ciel : $y = 1.14x + 16.6$	349	0.99	340 J/m^2 (27.5%)	17.1%
OMI = f(spectro) - ciel clair : $y = 1.13x + 2.3$	33	0.99	340 J/m^2 (13.5%)	13%

Un biais positif (OMI > spectro) similaire à celui de Briançon (lorsque les jours avec de la neige au sol ne sont pas pris en compte) apparaît également sur le site de VdA. La pente de la droite de régression est égale à 1.14 (figure 3.19a). La moyenne des différences relatives vaut environ 17% pour toutes les journées confondues (tableau 3.8). Lorsque les journées sont claires (points rouges de la figure 3.19b), la comparaison est meilleure, les

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

écarts n'excèdent pas 22%, mais le bais positif existe toujours avec une moyenne des différences relatives égale à 13%. Une explication à ce biais est probablement la présence d'aérosols absorbants sur le site, non prise en compte dans le calcul des puissances érythémateuses d'OMI.

Une étude similaire a également été menée sur d'autres sites à travers le globe [Tanskanen et al., 2007] avec les données issues du même algorithme OMI-UV et a conduit aux conclusions suivantes : lorsque le site est peu influencé par des aérosols absorbants, les doses journalières OMI présentent une surestimation moyenne par rapport aux mesures sol comprise entre 0 et 10%. Pour les sites où la présence d'aérosols absorbants est importante, le biais peut atteindre 50%. En revanche sur les sites où l'albédo de surface est élevé (sol recouvert de neige), les doses journalières OMI sont nettement inférieures aux doses retrouvées au sol à cause des valeurs climatologiques d'albédo de sol utilisées, inférieures aux valeurs d'albédo de surface réelles. Cette sous-estimation de l'albédo de sol conduit à mal interpréter la luminosité de la scène observée par OMI et à considérer alors la présence de nuages dans l'atmosphère [Tanskanen, 2004].

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.2.4 Validation des AOT à Villeneuve d'Ascq

Un dernier produit pouvant être validé à VdA est l'AOT à 388 nm fournie par l'algorithme "OMAERUV" de la manière décrite dans la section 3.1.3.2. Nous avons d'abord comparé ce produit (de la collection 3) avec les AOT retrouvées à partir des mesures du spectroradiomètre[3] (figure 3.20) et ensuite avec les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 388 nm (figure 3.21). L'$AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 388 nm est obtenue à partir de celle à 440 nm et du coefficient d'Angström $\alpha_{440/670nm}$. Au cours d'une journée, nous avons un ou deux passages du satellite OMI au-dessus de VdA, autrement dit nous avons une ou deux valeurs d'AOT entre 12h00 et 13h30 TU. Etant donné que nous disposons d'une estimation de l'AOT avec le spectroradiomètre toutes les trente minutes, nous choisissons la valeur correspondant à la meilleure coïncidence avec le passage d'OMI. En ce qui concerne les photomètres, nous effectuons une moyenne des AOT dans une fenêtre de 15 minutes autour du passage d'OMI. Les données contenues dans le fichier OMI - OMAERUV sont classées selon un critère de qualité. Ce critère permet de sélectionner les données considérées comme les plus fiables c'est à dire où la contamination nuageuse d'un pixel est la plus faible. En effet, comme nous l'avons déjà vu au paragraphe 3.1.3.2, d'après Torres et al. [2007] la contamination d'un pixel OMI par les nuages est une source d'incertitude importante sur les AOT retrouvées. Pour cette raison, les comparaisons présentées sur les figures 3.20 et 3.21 ne concernent que les données OMI auxquelles la condition "contamination minimale du pixel par les nuages", a été attribuée. C'est pourquoi le nombre de mesures est faible.

La figure 3.20 montre un désaccord très important entre les AOT OMI et celles du spectroradiomètre avec un coefficient de corrélation très faible (r = 0.25) pour une période allant d'octobre 2005 à décembre 2006. De manière générale, les AOT dérivées d'OMI sont inférieures aux valeurs mesurées par le spectroradiomètre, la moyenne des différences étant égale à -0.11. Le RMS calculé sur cet ensemble de données est égal à 0.16, représentant une valeur très élevée si nous la comparons à la valeur moyenne des AOT à VdA égale à 0.22.

La section 2.3.1.2 a montré que les AOT déduites des mesures du spectroradiomètre sont en bon accord avec les AOT AERONET/PHOTONS ce qui nous permet de conclure que les mesures du spectroradiomètre ne sont pas à mettre en doute. Toutefois, nous avons voulu confirmer nos résultats en poursuivant notre analyse avec les AOT mesurées par les photomètres AERONET/PHOTONS présents sur le site de VdA (figure 3.21). Cette étude permet d'évaluer l'AOT OMI sur une plus grande période (de septembre 2004 à décembre 2006) avec un nombre de points plus élevé (n = 79).

Le coefficient de corrélation obtenu est égal à 0.45. Comme nous pouvons le remarquer sur la figure 3.21, les AOT OMI restent dans l'ensemble inférieures aux AOT mesurées

[3] AOT lissée (fonction triangle de FWHM=4 nm)

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

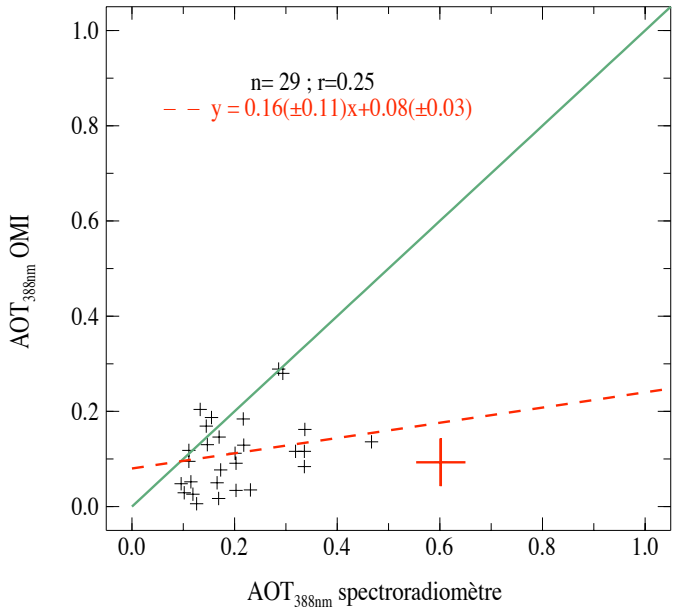

FIG. 3.20 – *Comparaison des AOT_{388nm}OMI en fonction des AOT_{388nm} du spectroradiomètre à VdA pour la période allant d'octobre* 2005 *à décembre* 2006. *La première bissectrice est tracée en vert et la droite de régression en rouge. Les incertitudes sur les AOT OMI [Torres, communication personnelle] et les incertitudes sur les AOT du spectroradiomètre (chapitre* 2*) estimées toutes les deux égales à* 0.05 *sont représentées en rouge sur un point de mesure.*

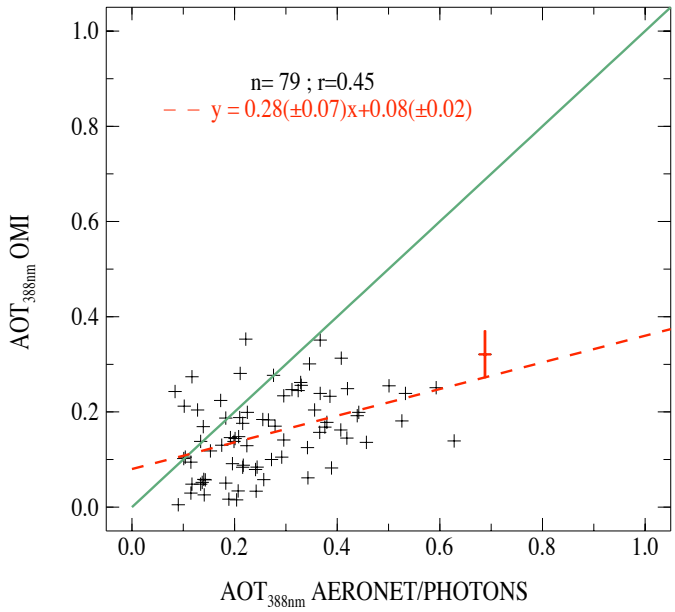

FIG. 3.21 – *Même légende que figure 3.20 mais en fonction des AOT_{388nm} AERONET/PHOTONS pour la période allant de septembre* 2004 *à décembre* 2006. *L'incertitude sur les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ est estimée à* 0.012 *(chapitre 2).*

© 2010 Tous droits réservés.

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

par les photomètres. La moyenne des différences, égale à -0.12, confirme l'existence d'un biais. Le RMS est pour cette étude égal à 0.17, montrant la différence importante existant entre les AOT OMI et celles mesurées au sol.

Cette comparaison avec AERONET/PHOTONS a permis de confirmer les résultats obtenus avec le spectroradiomètre et de conclure que les AOT dérivées d'OMI sont mal restituées sur le site de VdA. En effet, les AOT OMI sont, pour la majorité des journées d'étude, inférieures à celles restituées à partir de mesures au sol.

Ces analyses soulignent la difficulté à restituer une AOT à partir des mesures OMI lorsque celle-ci est faible, et lorsque l'absorption des aérosols est modérée (ω_0 moyen = 0.94 à VdA). La grande taille du pixel OMI est également une difficulté supplémentaire. En effet, si la répartition des aérosols n'est pas homogène dans le pixel OMI, l'AOT d'OMI peut être inférieure aux mesures ponctuelles au sol (Torres, communication personnelle), ce qui est le cas ici.

Cette grande taille de pixel peut également engendrer des problèmes liés à la contamination du pixel par les nuages. Toutefois, cette contamination nuageuse n'apparaît pas dans les comparaisons avec les produits OMI de la collection 3, contrairement à celles faites avec les produits de la collection 2. En effet, lors des comparaisons effectuées avec les produits de la collection 2 à VdA, les AOT OMI étaient, pour de nombreuses journées, supérieures aux AOT déduites des mesures au sol du spectroradiomètre et des photomètres.

Dans l'article de Torres et al. [2007], il est mentionné que près des sources des poussières minérales et aérosols de feux de biomasse, les conditions de ciel clair en général prédominent et donc la contamination des pixels par les nuages est minimale. Les AOT OMI sont alors considérées les plus fiables. C'est pourquoi dans la suite nous nous sommes intéressés aux aérosols désertiques et carbonés en Afrique de l'Ouest. Nous nous sommes concentrés sur l'année 2006 de la période AMMA "Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine".

Concernant les AAOT, nous ne présentons pas les résultats sur le site de VdA car ils sont très décevants ce qui, étant donné l'analyse précédente pourrait être attribué à une absorption modérée des aérosols.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.3 Validation régionale pour l'étude des aérosols en Afrique de l'Ouest

3.3.1 Présentation de la campagne AMMA et des sites de mesures utilisés

En raison des désaccords importants observés sur le site de VdA concernant les AOT, nous avons choisi de continuer notre étude dans une région où l'abondance des aérosols est importante. Nous nous sommes intéressés plus particulièrement aux sites de mesures de l'Afrique de l'Ouest. Depuis quelques années, le projet international AMMA a été mis en place dans le but d'étudier la mousson africaine afin de mieux connaître son mécanisme et ainsi essayer de prévoir ses variations et ses répercussions sur les populations locales mais aussi sur le climat global [Redelsperger et al., 2006]. En effet le climat de l'Afrique de l'Ouest s'est dégradé depuis les trente dernières années, puisqu'une diminution des précipitations a été enregistrée (en particulier dans les années 1970 et 1980). De plus, des retards dans la mousson ont été observés et restent inexpliqués. Les conséquences, telles que famines et épidémies de méningites en Afrique de l'Ouest sont dramatiques. Essayer de comprendre l'effet des aérosols sur la mousson constitue l'un des objectifs de la campagne AMMA. Pour cela, plusieurs vagues d'observations sur l'Afrique de l'Ouest ont été mises en place, dont une phase de mesures intensives sur toute l'année 2006 (SOP, ou Special Observation Period) pour laquelle il y a eu un renforcement du dispositif de mesures [Derimian et al., 2008].

Les sites Africains du réseau AERONET/PHOTONS choisis pour notre étude de validation des produits aérosols OMI sont Agoufou (Mali), Banizoumbou (Niger), Cinzana (Mali), M'Bour (Sénégal), Djougou (Bénin) et Maine-Soroa (Niger). La figure 3.22 présente la localisation des différentes stations de mesures d'AOT$_{AERONET/PHOTONS}$ en Afrique utilisées dans ce travail.

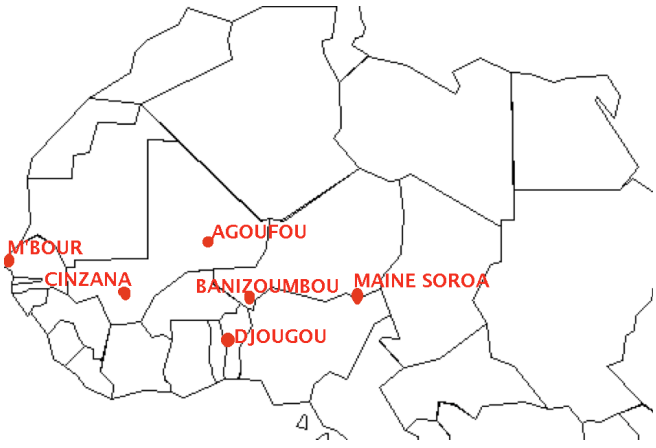

Fig. 3.22 – *Emplacement des sites Africains AERONET/PHOTONS utilisés dans notre étude.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Ces sites sont sous l'influence de différentes sources d'aérosols absorbants (minéraux et carbonés) en Afrique. Trois de ces sites sont des "super-sites" aérosols : M'Bour (station du LOA), Banizoumbou (station du LISA : Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques) et Djougou (station du LA : Laboratoire d'Aérologie).

La région de l'Afrique de l'Ouest est sous l'influence des poussières minérales dont la principale source est le désert du Sahara, ainsi que des particules de feux de biomasse provenant de la région du Sahel. Alors que les poussières minérales d'origine saharienne sont émises durant presque toute l'année [Kaufman et al., 2005], les émissions des aérosols de feux de biomasse se produisent principalement durant les mois de décembre à février [Haywood et al., 2008]. La figure 3.23 présente une carte des feux détectés par l'instrument MODIS au cours des mois de janvier, avril, juillet et octobre 2006 au-dessus de l'Afrique. Cette figure montre une nette influence des feux de biomasse sur l'Afrique de l'Ouest durant le mois de janvier 2006, en comparaison aux autres mois de l'année [Haywood et al., 2008]. Durant les mois de décembre à février, l'Afrique de l'Ouest est donc sous la double influence des aérosols de feux de biomasse et des aérosols désertiques.

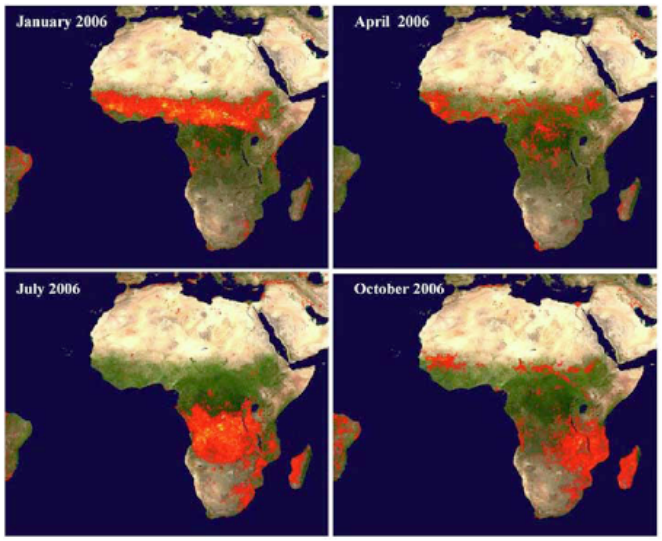

FIG. 3.23 – *Images de feux détectés par l'instrument MODIS montrant le caractère saisonnier des feux de biomasse au-dessus du continent africain pendant* 2006 *[Haywood et al.,* 2008*]. La couleur s'étend du rouge pour un nombre faible de feux, au jaune, pour un nombre élevé de feux.*

3.3.2 Qualification de l'AI-OMI avec les mesures sol

Différentes études ont montré qu'il existait une relation linéaire entre les AOT et l'AI-TOMS, qui varie selon le type d'aérosol (en fonction de la saison et des zones géographiques étudiées), et par conséquent qu'il était possible dans certaines conditions d'utiliser l'AI afin d'estimer une AOT [Hsu et al., 1999; Chiapello et Moulin, 2002; Chiapello et al., 2000]. Nous allons dans la suite étudier la relation liant l'AI fourni par OMI et l'AOT

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

mesurée par AERONET/PHOTONS. Cette étude s'effectue tout d'abord sur les six sites présentés ci-dessus, puis une étude plus approfondie est réalisée sur le site de M'Bour durant l'année 2006. Nous avons choisi l'année 2006 car, comme nous l'avons précisé précedemment, c'est une année d'observations intensives de la campagne AMMA.

3.3.2.1 Relation entre l'AI et l'AOT pour l'ensemble des sites

La figure 3.24 présente la relation obtenue entre l'AI-OMI et les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm pour l'ensemble des six sites au cours de l'année 2006. Toutes les mesures des $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ comprises dans une fenêtre de 15 minutes autour du passage d'OMI ont été moyennées. Nous avons sélectionné les AI-OMI strictement positifs car ils représentent les aérosols absorbants tels que les aérosols désertiques et de feux de biomasse (cf 3.1.3.1).

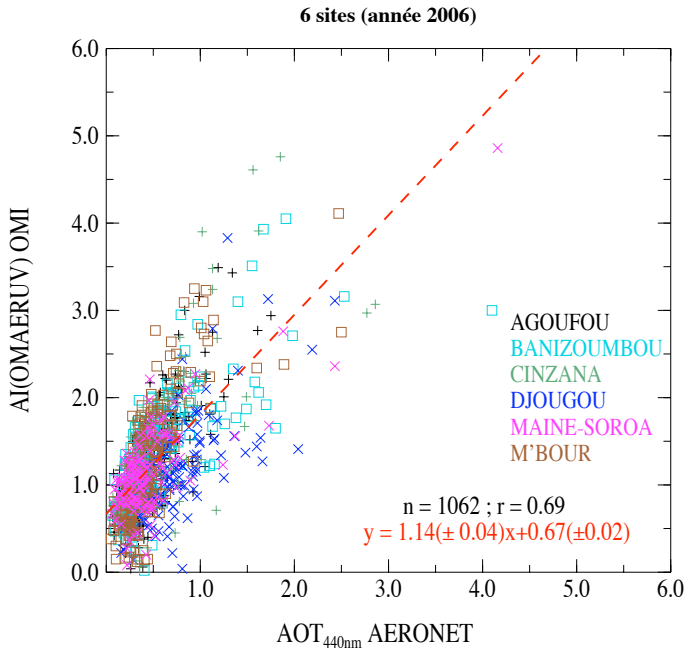

FIG. 3.24 – *Corrélation entre AI-OMI et* $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ *à* 440 *nm (moyennées autour de l'heure du passage d'OMI) sur les six sites AMMA d'Afrique de l'Ouest pour l'année* 2006. *La droite de régression est représentée en rouge. Les points associés à chaque site sont représentés par des couleurs différentes.*

La figure 3.24 met en évidence une relation linéaire entre les AI-OMI et les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm avec une corrélation significative r=0.69 pour un total de 1062 points. Ce coefficient de corrélation est de l'ordre de grandeur de ceux observés lors d'études précédentes avec l'AI-TOMS [Hsu et al., 1999; Chiapello et Moulin, 2002]. Cependant une forte dispersion est observée autour de la droite de régression. Nous avons également analysé la relation AI-OMI / AOT en ne considérant que les AI qui sont supérieurs à

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

0.7, correspondant à une absorption significative d'après Torres [OMAERUV readme file, 2007]. La corrélation obtenue est la même que précédemment (r=0.69) pour 885 points. En revanche la relation liant l'AI à l'AOT s'écrit maintenant : AI-OMI =$0.99 \times AOT_{440} + 0.84$; la pente est donc légèrement plus faible qu'avec l'ensemble des points. La suppression de 15% des points a entraîné une modification de la relation liant l'AI-OMI à l'AOT, mais la dispersion notée précédemment n'est pas significativement diminuée.

D'après Hsu et al. [1999] la dépendance de la relation AI-TOMS / AOT avec l'altitude de la couche aérosol et le type d'aérosol, en particulier son absorption peut être une explication à cette dispersion.

Sur la figure précédente, nous avons considéré les mesures effectuées sur les six sites confondus. Afin d'étudier les effets de l'altitude de la couche d'aérosol et du type d'aérosol sur la relation liant l'AI-OMI à l'AOT, nous nous sommes intéressés plus particulièrement aux mesures effectuées sur le site de M'Bour. En effet, en janvier 2006, dans le cadre des observations AMMA, le LOA a équipé la station de M'Bour d'un lidar (CIMEL 532 nm), complétant ainsi les mesures optiques réalisées par le photomètre solaire présent sur le site depuis plusieurs années.

3.3.2.2 Analyse détaillée sur le site de M'Bour

La corrélation existant entre les AI-OMI et les $AOT_{AERONET}$ à 440 nm à M'Bour est présentée sur la figure 3.25 pour l'ensemble de l'année 2006.

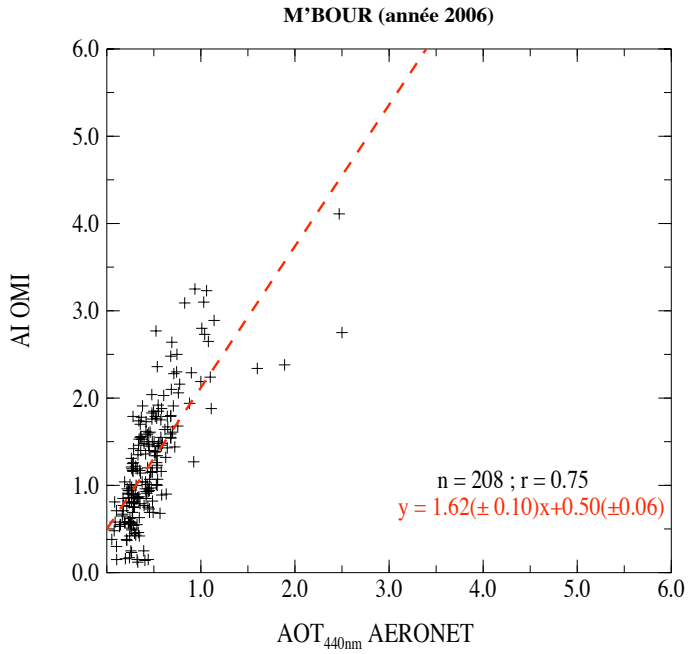

FIG. 3.25 – *Même légende que la figure 3.24 mais pour le site de M'Bour (Sénégal).*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Le coefficient de corrélation obtenu sur l'ensemble des 208 points de mesures à M'Bour est significatif (r=0.75), supérieur à celui obtenu précédemment (r=0.69) pour l'ensemble des six sites d'Afrique de l'Ouest. Toutefois, une dispersion autour de la droite de régression est de nouveau observable. Les mesures de profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols par le lidar vont nous permettre d'examiner l'impact éventuel de l'altitude de la couche des aérosols sur cette relation entre l'AI-OMI et l'AOT.

a) Impact de l'altitude

La figure 3.26 présente les profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols, obtenus à partir des mesures du lidar de M'Bour, moyennés pour chaque saison de l'année 2006.

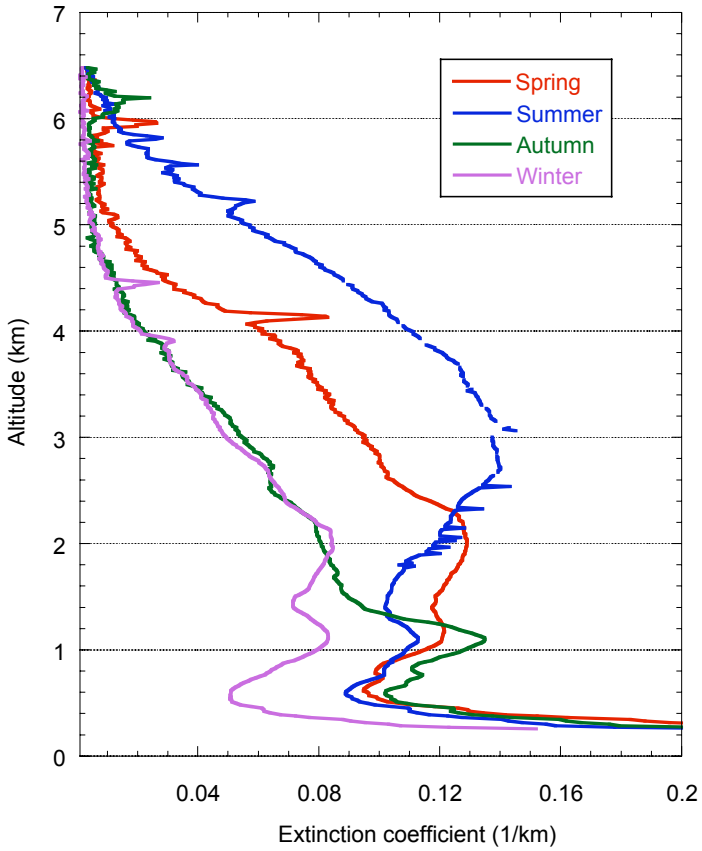

FIG. 3.26 – *Profils verticaux saisonniers des coefficients d'extinction des aérosols à* 532 *nm déduits des mesures du lidar à M'Bour au cours de l'année* 2006. *Le profil de l'hiver en rose (décembre, janvier et février) est obtenu à partir de la moyenne de* 25 *profils journaliers ; celui du printemps en rouge (mars, avril et mai) à partir de* 66 *profils journaliers ; celui de l'été (juin, juillet, août) à partir de* 46 *profils journaliers et celui de l'automne (septembre, octobre et novembre) à partir de* 25 *profils journaliers [Léon et al.,* 2009*].*

Cette figure montre les différences d'altitude de la couche des aérosols en fonction des saisons. En été, l'altitude moyenne de la couche d'aérosols est plus élevée (située aux environs de 3 km) qu'en automne et en hiver (altitude inférieure à 2 km). Au printemps,

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

nous sommes dans une situation un peu intermédiaire avec une couche d'aérosols située à une altitude comprise entre 2 et 2.5 km, et une seconde couche située vers 1 km. Cette couche correspond à une moyenne des profils lidar mesurés au cours du mois de mars 2006, juste avant et après un important événement de poussières qui a été mesuré du 7 au 13 mars 2006 sur toute la zone de l'Afrique de l'Ouest [Slingo et al., 2006; Tulet et al., 2008]. Durant cet événement particulièrement intense (AOT $\sim$ 2), le lidar a fonctionné mais avec quelques interruptions dues à un contenu en poussières trop élevé (dépôt sur la lentille).

Nous remarquons également sur la figure que le profil vertical moyen en hiver montre la présence d'une couche d'aérosols aux environs de 2 km d'altitude et une seconde couche à plus basse altitude (vers 1 km). L'étude réalisée par Derimian et al. [2008] a permis de conclure à la présence d'un mélange de particules de feux et de poussières minérales au cours des mois de janvier et février 2006. Ces résultats ont également été confirmés par Johnson et al. [2008] à l'aide de mesures aéroportées durant la campagne DABEX (Dust and Biomass EXperiment), démontrant le transport de particules de feux de biomasse à haute altitude et le transport à basse altitude de poussières minérales durant la saison sèche d'AMMA.

Suite à l'observation de ces changements d'altitude de la couche des aérosols en fonction de la saison et connaissant la sensibilité de l'AI à l'altitude de la couche des aérosols, nous avons évalué l'évolution des relations OMI AI - AOT en fonction de ces quatre saisons, présentées sur la figure 3.27.

Nous remarquons dans un premier temps que les coefficients de corrélation sont significatifs pour trois saisons avec des valeurs égales à 0.85 en hiver, 0.76 au printemps et 0.83 en été. En revanche le coefficient de corrélation en automne est faible (r=0.48). Si nous nous intéressons aux pentes des droites de régression, nous constatons que la plus élevée apparaît en été (3.01). En s'appuyant sur notre analyse des profils lidar, nous pouvons supposer que cette valeur est probablement due à l'altitude élevée du transport des aérosols en été. Cette hypothèse est également soutenue par les travaux de Carlson et Prospero [1972] ; selon eux le transport des aérosols désertiques au-dessus de l'Atlantique nord tropical s'effectue à des altitudes élevées en été.

En revanche, selon Chiapello et al. [1995], le transport des aérosols désertiques s'effectue à basse altitude en hiver. Cela peut expliquer la valeur de la pente de la droite de régression en hiver (1.97), qui est moins élevée qu'en été. Toutefois cette valeur est plus élevée qu'en automne (1.20), probablement à cause de la présence des deux couches distinctes d'aérosols minéraux et de feux de biomasse.

Au printemps, la valeur de la pente (1.23) est influencée par des points correspondant à des AOT élevées, supérieures à 1. Ces points ont été identifiés et correspondent à des

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

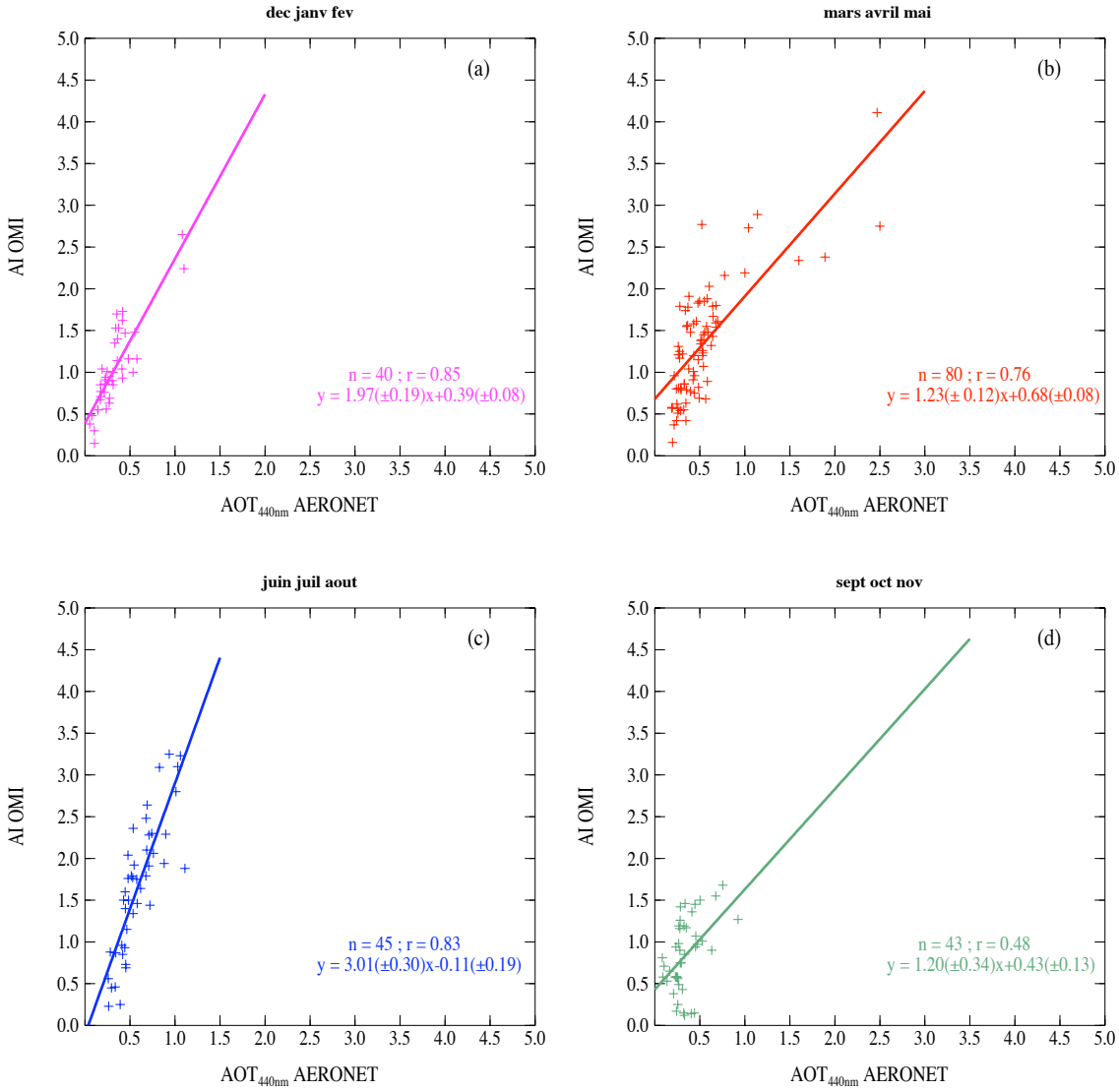

FIG. 3.27 – *Corrélation entre AI-OMI et* $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ *à* 440 *nm (moyennées autour de l'heure du passage d'OMI) à M'Bour pour les* 4 *saisons de l'année* 2006. *(a) hiver ; (b) printemps ; (c) été ; (d) automne.*

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

mesures effectuées durant l'événement de poussières particulièrement intense du mois de mars 2006 [Slingo et al., 2006; Tulet et al., 2008].

Pendant cette période, si nous ne considérons pas les points du mois de mars, nous avons une relation liant l'AI-OMI et l'AOT qui est caractérisée par un coefficient de corrélation assez élevé de 0.83 et qui s'écrit : AI-OMI=2.38 $\times$ $AOT_{440nm} + 0.03$. Dans ce cas, la pente d'une valeur de 2.38 est une valeur intermédiaire entre la pente observée en hiver et en été. Cette valeur intermédiaire peut s'expliquer par une couche d'aérosols située à une altitude comprise entre celle observée en hiver et celle observée en été. En effet, cette altitude intermédiaire a été observée sur le profil lidar moyen du printemps mesuré à M'Bour (figure 3.26).

Si l'on considère maintenant uniquement les 27 points du mois de mars, nous obtenons un coefficient de corrélation qui est égal à 0.82 et la relation suivante : AI-OMI=0.88 $\times$ $AOT_{440nm} + 1.17$. Au cours du mois de mars 2006, le transport des aérosols à basse altitude (aux environs de 1 km) justifie la pente de la droite de régression très faible (0.88).

Les différences de pente de la relation AI-OMI / AOT au cours des saisons semblent donc s'expliquer au moins en partie, par des changements d'altitude de la couche des aérosols. Nous allons maintenant examiner l'influence possible du type d'aérosol sur la corrélation entre l'AI-OMI et l'$AOT_{AERONET/PHOTONS}$.

b) Influence du type d'aérosols

Pour réaliser cette étude, nous allons considérer la taille des aérosols renseignée par le coefficient d'Angstrom ($\alpha_{440/670}$), et leur capacité à absorber le rayonnement au travers de l'albédo de diffusion simple (ω_{0-440}), ces deux paramètres étant restitués à partir des mesures photométriques [Dubovik et King, 2000; Dubovik et al., 2000]. Les aérosols de feux sont caractérisés par une plus forte absorption (ω_0 faible) et un $\alpha_{440/670}$ plus élevé (fines particules) que les poussières minérales. La valeur moyenne de ω_0 observée pour ce dernier type d'aérosol est supérieure à 0.90 [Dubovik et al., 2002]. Selon les auteurs, pour les aérosols désertiques et de feux de biomasse, le ω_0 est retrouvé avec une précision de 0.03 lorsque l'AOT est supérieure ou égale à 0.50. En revanche, lorsque l'AOT est plus faible, le ω_0 est retrouvé avec une précision de 0.05.

Le tableau 3.9 présente les moyennes mensuelles de chaque paramètre optique, AOT_{440}, $\alpha_{440/670}$ et ω_0 à 440 nm au cours de l'année 2006, toujours sur le site de M'Bour. Nous pouvons d'abord remarquer que le cycle saisonnier des AOT présente deux maxima en juin-juillet et en mars et des minima en février et novembre.

L'analyse de ce tableau nous indique que les mois compris entre mars et octobre sont dominés par des poussières minérales avec un ω_0 à 440 nm supérieur ou égal à 0.89 et un $\alpha_{440/670}$ inférieur ou égal à 0.40. Les mois de novembre, décembre, janvier et février sont caractérisés par un ω_0 inférieur ou égal à 0.87 et un $\alpha_{440/670}$ supérieur à 0.60. Ces valeurs

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 3.9 – *Moyennes mensuelles des produits AERONET/PHOTONS obtenus à M'Bour au cours de l'année 2006 (n_{obs} et n'_{obs} correspondent au nombre d'observations prises en compte dans la moyenne).*

	janv.	févr.	mars	avril	mai	juin	juillet	août	sept.	oct.	nov.	déc.
n_{obs}	722	938	1710	1491	1244	977	786	589	657	1004	1086	1086
AOT_{440}	**0.37**	**0.23**	**0.67**	**0.51**	**0.45**	**0.71**	**0.70**	**0.46**	**0.34**	**0.47**	**0.29**	**0.32**
$\alpha_{440/670}$	**0.68**	**0.60**	**0.28**	**0.30**	**0.40**	**0.16**	**0.26**	**0.38**	**0.39**	**0.33**	**0.62**	**0.62**
n'_{obs}	16	5	84	132	60	70	36	11	6	19	10	9
ω_{0-440}	**0.84**	**0.84**	**0.89**	**0.91**	**0.90**	**0.92**	**0.93**	**0.94**	**0.93**	**0.92**	**0.87**	**0.82**

confirment la présence de particules de feux de biomasse sur le site de M'Bour durant la fin de l'automne et les trois mois d'hiver.

Comme nous l'avons évoqué précédemment, le mois de mars 2006 a été caractérisé par un épisode de poussières très intense. Les valeurs de $\alpha_{440/670}$ (0.28), caractéristique des grosses particules et de ω_0 (0.89) confirment la domination de poussières minérales.

Suite à cette étude, nous avons analysé de nouveau la corrélation entre l'AI-OMI et l'$AOT_{AERONET/PHOTONS}$ en considérant deux périodes : les mois de novembre à février qui sont influencés par les aérosols de feux de biomasse (associés éventuellement à des poussières minérales), et les mois de mars à octobre qui eux sont principalement sous l'influence des poussières minérales. Les résultats sont présentés sur la figure 3.28. Sur cette figure, nous avons distingué les points du mois de mars.

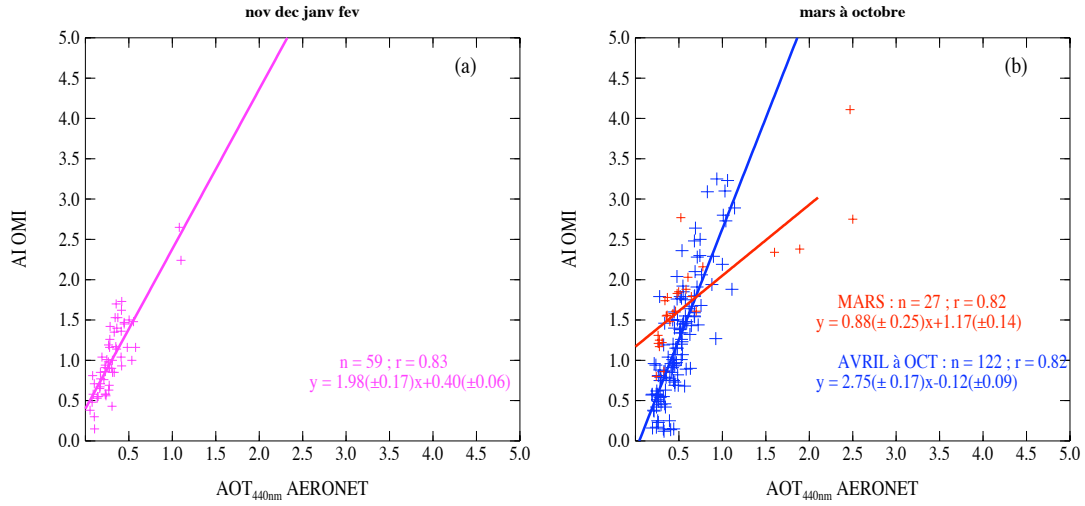

FIG. 3.28 – *Corrélation entre AI-OMI et $AOT_{AERONET}$ à 440 nm à M'Bour pour 2 périodes de l'année 2006. (a) quatre mois, de novembre, décembre, janvier et février ; (b) huit mois, de mars à octobre ; en rouge sont indiqués les points du mois de mars.*

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

La corrélation observée au cours des mois de novembre à février est élevée avec un coefficient r=0.83 pour un total de 59 points. La pente de la droite de régression est égale à 1.98. Pour les mois d'avril à octobre la corrélation est également significative (r=0.82) pour un ensemble de 122 points. La pente de la droite de régression est égale à 2.75. Ces différences de pente confirment que la relation AI-OMI / AOT est dépendante à la fois de l'altitude et du changement de composition des aérosols.

Notre étude a donc dans un premier temps montré que la corrélation entre l'AI-OMI et l'$AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm dépendait de la saison. Les mesures du lidar à M'Bour nous permettent de conclure que les différences de pente observées au cours des saisons sont probablement dues à un changement de l'altitude de la couche des aérosols. De plus, les analyses réalisées à partir des mesures photométriques, notamment le coefficient d'Angström et l'albédo de diffusion simple, nous permettent également de mettre en évidence l'impact de la composition de l'aérosol, sur les différences de corrélations entre l'AI-OMI et l'AOT. Toutefois ces deux effets sont difficiles à séparer à cause de l'absence de cas d'aérosols de feux "purs". En résumé, au cours des mois de novembre à février le site de M'Bour est sous l'influence des aérosols de feux et des poussières désertiques. La pente de la relation AI-OMI/AOT est assez élevée ($\sim$ 2) mais plus faible que celle observée en été. Au cours du mois de mars, la présence de poussières minérales à basse altitude explique la valeur très faible de la pente de la relation AI-OMI / AOT, qui est inférieure à 1. Pour les mois compris entre avril et octobre, le site de M'Bour est sous l'influence de poussières minérales qui sont présentes à haute altitude, ce qui explique une pente de la relation AI-OMI / AOT qui est très élevée ($\sim$ 2.75).

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

3.3.3 Validation des épaisseurs optiques et albédo de diffusion simple des aérosols OMI.

3.3.3.1 Epaisseurs optiques des aérosols - OMI

Comme nous l'avons réalisé sur le site de VdA, nous avons comparé les AOT OMI à 388 nm avec les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ de niveau 2 restituées à la même longueur d'onde autour du passage d'OMI. La comparaison présentée sur la figure 3.29 ne concerne que les données OMI auxquelles la condition "contamination minimale par les nuages du pixel" a été attribuée.

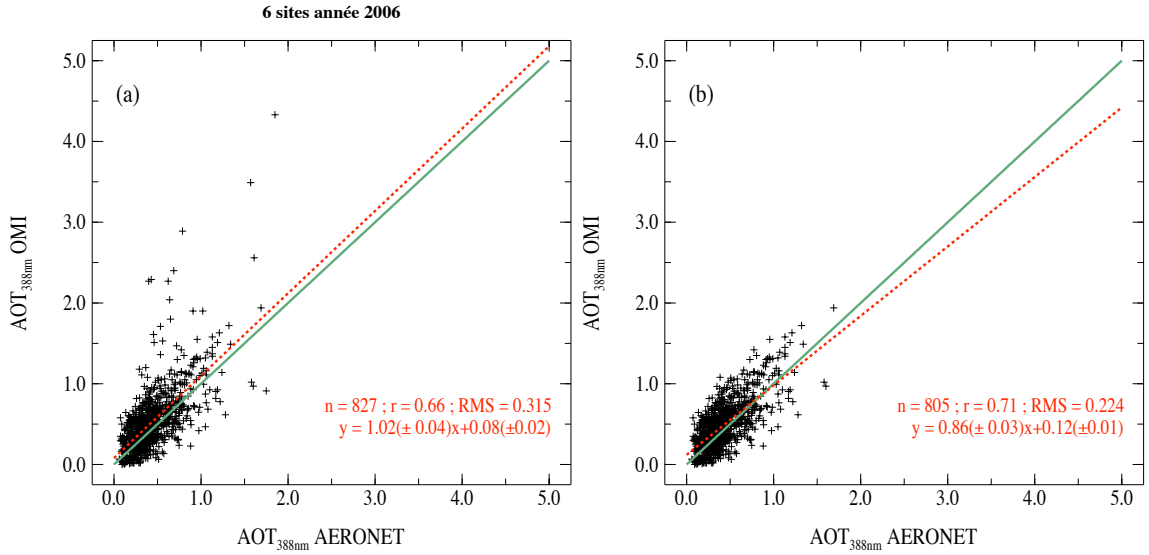

FIG. 3.29 – *Comparaison des AOT_{388nm}OMI en fonction des AOT_{388nm} AERONET au cours de l'année* 2006 *pour les six sites Africains d'Agoufou, Banizoumbou, Cinzana, Djougou, M'Bour et Maine-Soroa. La courbe verte est la première bissectrice, la droite en pointillés rouge est la droite de régression calculée sur l'ensemble des points soit au total* 827 *points en (a) et sur* 805 *points (après élimination de* 22 *jours nuageux par une régression robuste) en (b).*

Si nous considérons l'ensemble des points, soient 827 points au total, nous obtenons un accord correct entre les *AOT* déduites des mesures OMI et celles mesurées par les photomètres. La corrélation n'est pas élevée (r = 0.66) mais la pente de la droite de régression est proche de l'unité (1.02) et l'ordonnée à l'origine est assez faible (0.08). Toutefois le RMS est élevé (0.32) et la moyenne des différences *(OMI - AERONET/PHOTONS)* égale à 0.10 signifie qu'en moyenne, l'inversion OMI indique une AOT plus élevée que celle d'AERONET/PHOTONS. Cette surestimation peut s'expliquer par une possible contamination du pixel OMI par les nuages. Rappelons que la taille du pixel OMI est importante, même au nadir avec une valeur de 13×24 km^2. Sa surface peut atteindre une taille de 13×128 km^2 aux extrémités de la fauchée. Une mesure AERONET est quant à elle ponctuelle, ce qui peut expliquer les différences observées entre les deux produits. Toutefois une étude des

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

différences *(OMI - AERONET)* en fonction de la position du pixel dans la fauchée n'a pas montré que les différences sont plus élevées au niveau des pixels situés aux extrémités de la fauchée.

Sur cet ensemble de points, nous avons alors appliqué une régression robuste (voir en annexe) afin d'identifier les points considérés "aberrants". Nous avons ensuite analysé le nombre de mesures photométriques au cours de ces journées afin de déceler une interruption des mesures que l'on peut supposer causée par la présence de nuages. Au final 22 points ont été supprimés.

Pour la régression linéaire appliquée sur les 805 points restants, on observe une corrélation supérieure à celle obtenue précédemment (0.71). Ce nouvel ensemble de points est représenté par une pente de régression égale à 0.86 et une ordonnée à l'origine de 0.12. Le RMS est plus faible et vaut 0.22 mais reste cependant élevé. La moyenne des différences est égale à 0.06, ce qui est proche des incertitudes existant sur la restitution des AOT à partir des mesures des photomètres et d'OMI.

Si nous comparons cette étude faite en Afrique de l'Ouest à celle réalisée sur le site de VdA, nous remarquons que les AOT OMI en Afrique ne présentent pas de biais particulier avec les AOT AERONET alors que les AOT OMI à VdA sont généralement inférieures aux AOT AERONET. Ces deux régions sont caractérisées par des aérosols de type différents, ce qui nous amène à supposer que les panaches d'aérosols désertiques sont plus homogènes que ceux des aérosols urbains.

3.3.3.2 Albédo de diffusion simple - OMI

Les produits aérosols OMI sont l'AOT et l'AAOT à 388 nm, et à partir de ceux-ci nous avons calculé un ω_0 à 388 nm que nous avons comparé à la moyenne journalière des ω_0 AERONET/PHOTONS à 440 nm (niveau 2), 440 nm étant la plus petite longueur d'onde pour laquelle est calculé un ω_0. Nous avons effectué une moyenne journalière des produits AERONET/PHOTONS car, en raison de la condition de SZA élevé généralement utilisée dans l'inversion de ces produits, la plupart des ω_0 sont disponibles le matin et l'après-midi. L'observation d'une coïncidence temporelle avec le passage d'OMI aux environs de 13h30 TU n'est donc pas toujours possible. Cette valeur moyenne peut affecter la comparaison, de même que la différence de longueur d'onde entre les deux ω_0. En effet, durant SAFARI 2000, Torres et al. [2005] a estimé à partir d'un code de Mie que le ω_0 obtenu à partir des mesures de TOMS à 380 nm pour des aérosols carbonés, nécessitait une réduction de 0.01 pour le convertir à la longueur d'onde 440 nm.

La figure 3.30 (a) présente la comparaison des albédos de diffusion simple déduits des produits OMI à 388 nm et déduits des mesures photométriques AERONET/PHOTONS à

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

440 nm pour les six sites d'Afrique de l'Ouest au cours de l'année 2006. Nous avons un total de 432 points, ce nombre étant plus faible que celui des comparaisons des AOT, à cause des conditions d'inversion de ω_0 à partir des mesures photométriques. Sur la figure 3.30 (b), nous avons recommencé la comparaison en appliquant le critère de précision recommandé par Dubovik et al. [2000]. Nous avons sélectionné les données présentant des $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm supérieures ou égales à 0.5. Les lignes en pointillés tracées à ± 0.03 et à ± 0.05 indiquent la précision avec laquelle les produits AERONET/PHOTONS sont inversés [Dubovik et al., 2000] lorsque les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm sont supérieures et inférieures à 0.5. Les points associés à chaque site sont représentés par des couleurs différentes.

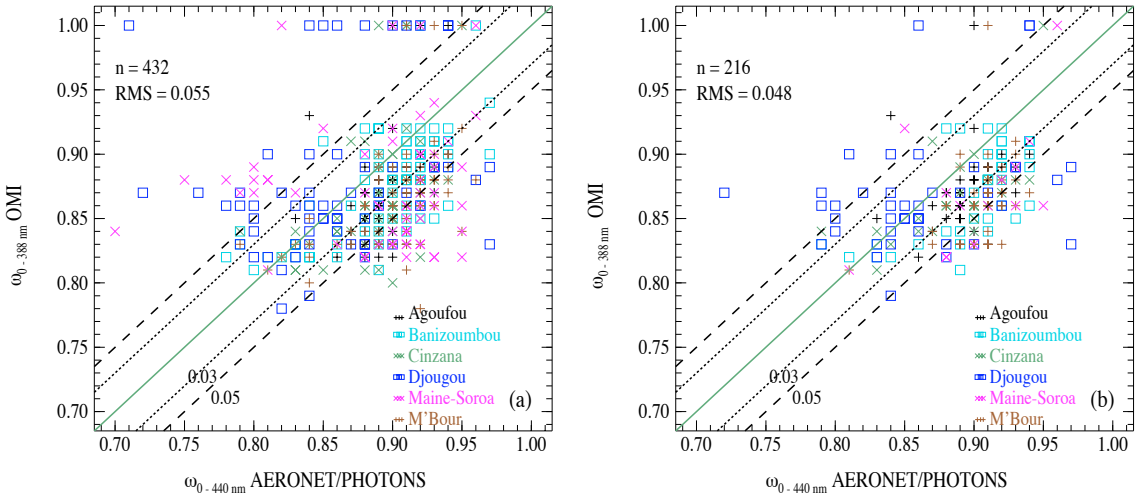

FIG. 3.30 – *Comparaison des albédos de diffusion simple retrouvés à partir des mesures OMI à* 388 *nm et à partir des mesures AERONET/PHOTONS à* 440 *nm au cours de l'année* 2006 *pour les six sites AMMA d'Afrique de l'Ouest. La courbe verte est la première bissectrice, celles en pointillés noirs sont situées à* +/- 0.03 *de la première bissectrice, celles en tirets noirs à* +/- 0.05. *Les points associés à chaque site sont représentés par des couleurs différentes.*

Nous remarquons sur la figure 3.30(a) que l'écart entre les deux paramètres est en général inférieur à 0.05. Le RMS calculé sur l'ensemble des points est égal à 0.055. Nous remarquons également sur cette figure que des désaccords apparaissent principalement lorsque les $\omega_{0-440nm}$ AERONET/PHOTONS sont les plus faibles, notamment pour les sites de Maine-Soroa et Djougou. Suite à la sélection sur les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm qui sont supérieures à 0.5 (figure 3.30 (b)), le nombre de points a diminué de moitié mais l'amélioration reste limitée. Le RMS moyen calculé sur l'ensemble des sites a légèrement diminué (0.048 au lieu de 0.055). Nous remarquons toutefois sur la figure que certains des points caractérisés par une forte absorption qui présentaient un désaccord précédemment ont disparu.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

TAB. 3.10 – *Tableau récapitulatif des comparaisons entre ω_{0-OMI} à 388 nm et $\omega_{0-AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm sur chacun des six sites Africains en 2006. A gauche : comparaisons sur l'ensemble des points ; à droite : après une sélection sur les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm qui sont supérieures à 0.5. (n = nombre de journées coincidentes)*

Site	n	RMS	Moy. diff.	n	RMS	Moy. diff.
Agoufou	79	0.047	−0.027	45	0.043	−0.027
Banizoumbou	85	0.037	−0.028	39	0.040	−0.028
Cinzana	61	0.047	−0.024	31	0.038	−0.024
Djougou	66	0.074	0.021	45	0.060	0.010
Maine-Soroa	63	0.072	−0.016	14	0.050	−0.030
M'Bour	78	0.053	−0.035	42	0.050	−0.040

Si l'on considère les comparaisons sur chaque site et l'ensemble des points, le tableau 3.10 nous indique que le RMS est inférieur ou proche de la valeur 0.05 pour les sites d'Agoufou, Banizoumbou, Cinzana et M'Bour. En revanche les sites de Djougou et Maine-Soroa sont caractérisés par des RMS élevés (0.074 et 0.072 respectivement).

Si l'on examine maintenant les colonnes de droite du tableau 3.10, c'est à dire lorsque les $AOT_{AERONET/PHOTONS}$ à 440 nm supérieures à 0.5 ont été sélectionnées, les RMS calculés pour chaque site ont dans l'ensemble diminué mais très peu. En effet, les RMS à Agoufou, Cinzana et M'Bour ont diminué d'environ 0.003 - 0.005. A Banizoumbou, le RMS a augmenté de 0.003 mais reste inférieur à ceux déterminés pour la plupart des autres sites. Les changements les plus importants apparaissent pour les sites de Maine-Soroa et Djougou. A Maine Soroa le nombre de points a considérablement diminué, alors que celui-ci était de 63, il est maintenant égal à 14. Le RMS est alors passé de 0.072 à 0.050. Sur ce site qui pose problème, on peut donc penser que le nombre de jours élevé avec une AOT inférieure à 0.5 induit une incertitude importante sur la détermination de ω_0. A Djougou le RMS a également diminué (de 0.014) mais sa valeur 0.060 reste supérieure aux valeurs déterminées sur les autres sites. Djougou est sous l'influence des aérosols de feux de biomasse qui sont les plus absorbants, une mauvaise altitude de la couche des aérosols introduite dans l'algorithme de restitution des produits OMI (OMAERUV) peut expliquer ce RMS élevé. En effet, Torres et al. [2005] a montré à partir des mesures TOMS que la sensibilité du ω_0 à l'altitude de la couche des aérosols augmentait avec l'augmentation de l'absorption des aérosols. Les valeurs des moyennes des différences nous indiquent qu'il n'existe pas de biais entre les deux ω_0, les valeurs se situant dans le domaine d'incertitudes de $\omega_{0-440nm}$ AERONET/PHOTONS.

Nous avons ensuite étudié les variations saisonnières du ω_0 déterminé à partir des

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

deux instruments au sol et satellitaire sur trois des six sites en particulier : Banizoumbou, Djougou et M'Bour. Ces sites sont des "super-sites" aérosols de la campagne AMMA. Pour cette étude, nous avons repris tous les points.

Le site de Banizoumbou est dominé par les poussières minérales tout au long de l'année. Dans le tableau 3.11, les moyennes saisonnières des ω_0 déterminés à partir des mesures OMI et d'AERONET/PHOTONS sont voisines (en moyenne l'écart maximum $\sim$ 0.04). Les valeurs de RMS obtenues pour chaque saison confirment l'accord entre les deux instruments. La valeur la plus élevée apparaît au printemps mais elle est inférieure à 0.05.

TAB. 3.11 – *Moyenne saisonnière des $\omega_{0-440nm}$ AERONET/PHOTONS et des $\omega_{0-388nm}$ OMI sur le site de Banizoumbou.*

Saison	n	$\omega_{0-440nm}$ AERONET/PHOTONS	$\omega_{0-388nm}$ OMI	RMS	Moy. diff.
déc-janv-fév	25	0.876	0.870	0.028	-0.006
mars-avr-mai	26	0.906	0.871	0.048	-0.038
juin-juil-aout	20	0.918	0.899	0.034	-0.018
sept-oct-nov	14	0.913	0.892	0.034	-0.012

La même étude réalisée à Djougou (tab. 3.12), site influencé principalement par les aérosols de feux de biomasse, nous indique que les deux instruments retrouvent une variation similaire du ω_0 en fonction de la saison. En effet, en hiver le ω_0 obtenu à partir des deux instruments est plus faible qu'au printemps. En moyenne, les valeurs saisonnières sont très voisines (écart < 0.04). En revanche, les RMS calculés pour ces deux saisons sont très élevés ($\sim$ 0.07) indiquant des écarts importants entre les deux instruments. Les valeurs des moyennes des différences nous indiquent qu'il n'existe pas de biais entre les deux ω_0.

TAB. 3.12 – *Même légende que le tableau 3.11 mais pour le site de Djougou.*

Saison	n	$\omega_{0-440nm}$ AERONET/PHOTONS	$\omega_{0-388nm}$ OMI	RMS	Moy. diff.
déc-janv-fév	41	0.834	0.861	0.072	0.028
mars-avr-mai	13	0.893	0.926	0.066	0.023

Sur le site de M'Bour, site influencé à la fois par les aérosols de feux de biomasse et les poussières désertiques selon la saison, les variations saisonnières de ω_0 obtenues à partir des deux instruments vont dans le même sens. Le ω_0 obtenu en hiver est inférieur à celui des autres saisons indiquant la présence d'aérosols de feux de biomasse. Toutefois, les va-

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

leurs fournies par OMI sont en moyenne plus faibles que celles d'AERONET/PHOTONS. Les valeurs élevées de RMS indiquent également une différence entre les valeurs de ω_0 déterminées à partir des deux instruments. En automne, le RMS est le plus élevé mais le nombre de points utilisé dans le calcul est trop faible pour être fiable.

TAB. 3.13 – *Même légende que le tableau 3.11 mais pour le site de M'Bour.*

Saison	n	$\omega_{0-440nm}$ AERONET/PHOTONS	$\omega_{0-388nm}$ OMI	RMS	Moy diff
déc-janv-fév	9	0.829	0.823	0.022	−0.004
mars-avr-mai	37	0.898	0.854	0.054	−0.040
juin-juil-aout	25	0.925	0.889	0.053	−0.041
sept-oct-nov	7	0.920	0.873	0.074	−0.020

Suite à cette étude sur les sites de l'Afrique de l'Ouest, nous pouvons conclure que les AOT retrouvées à partir d'OMI sont plus proches des AOT déduites des mesures des photomètres que celles restituées à VdA. Les différences essentielles entre les deux régions sont l'abondance des aérosols et aussi la capacité d'absorption de ces aérosols. La résolution spatiale d'OMI est meilleure que celle de TOMS mais nos travaux ont montré que la restitution des AOT à partir des mesures OMI ne semble pas meilleure que celle obtenue lors d'études précédentes avec TOMS (voir partie 3.1.3). Toutefois, rappelons que ce capteur est initialement destiné à retrouver la colonne totale d'ozone. En ce qui concerne l'albédo de diffusion simple des aérosols, les accords entre OMI et AERONET/PHOTONS donnent des RMS de l'ordre de 0.05. Ces résultats se situent dans le domaine d'incertitude des produits AERONET/PHOTONS ce qui est plutôt satisfaisant.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Conclusion générale

Les changements dans l'intensité du rayonnement UV-B solaire causés par l'appauvrissement de l'ozone stratosphérique produisent des effets sur tous les organismes de la planète. En particulier, l'augmentation du rayonnement UV peut s'avérer nocive pour la santé humaine, avec par exemple une influence possible en terme d'augmentation des cancers de la peau. Malgré tout, le rayonnement UV a également des effets bénéfiques sur la santé humaine, en jouant un rôle important dans la production de la vitamine D et en ayant des effets positifs sur le psychisme. On s'attend à ce que les effets du rayonnement UV sur les organismes diminuent au fur et à mesure du rétablissement de la couche d'ozone au cours du XXIè siècle. Cependant, il existe d'autres facteurs ayant des impacts sur la variation de l'intensité du rayonnement UV à la surface comme l'albédo de sol, les nuages et les aérosols. Une des questions qui se pose alors est : quelle est l'évolution du rayonnement UV à la surface due aux variations de ces paramètres, dont certains sont directement affectés par les activités anthropiques ?

Pour répondre à cette question, la poursuite de l'analyse des mesures de télédétection spatiale et depuis le sol du rayonnement UV est nécessaire.

Ce travail de thèse s'inscrit dans ce contexte scientifique et l'essentiel du travail effectué concerne l'analyse et l'utilisation des mesures d'éclairement UV spectral réalisées à VdA et à Briançon.

La détermination de la colonne totale d'ozone à partir des mesures spectrales se fait maintenant depuis plusieurs années à VdA à partir de l'algorithme développé au laboratoire. Cette restitution nous a permis de disposer d'une série temporelle couvrant huit années, avec quelques interruptions, de la quantité d'ozone à VdA. Nous disposons en parallèle des doses érythémateuses mesurées à VdA sur la même période. Les données disponibles depuis septembre 2004 nous ont permis de participer à un projet européen de l'ESA concernant la validation des mesures de l'instrument OMI. Dans le cadre de ce projet, nous avons validé la colonne totale d'ozone, les éclairements spectral et érythémateux restitués à partir des mesures de l'instrument OMI. Il ressort de ce travail que la colonne d'ozone est très bien restituée par ce capteur à partir des deux méthodes OMI-TOMS et OMI-DOAS et ce, quelles que soient les conditions météorologiques sur le site de mesures. Concernant l'estimation de l'éclairement UV à la surface, les comparaisons sont moins concluantes. En effet, à VdA, les comparaisons de l'éclairement UV spectral

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

et des doses érythémateuses ont montré que les valeurs d'OMI sont généralement supérieures à celles du spectroradiomètre. L'examen des différences relatives entre OMI et le spectroradiomètre en fonction des épaisseurs optiques d'absorption des aérosols permet de conclure que le biais observé est probablement dû à la non prise en compte de l'absorption des aérosols dans l'algorithme OMI-UV. De plus l'étude que nous avons menée sur le site de Briançon a montré que lorsque le sol est recouvert de neige, les doses érythémateuses d'OMI sont généralement inférieures à celles du spectroradiomètre. Ces résultats suggèrent que l'albédo de sol utilisé dans l'algorithme d'OMI, qui est issu d'une climatologie, sous-estime l'albédo de sol « réel » ou encore que le masque nuage n'est pas correct. L'équipe en charge de l'algorithme OMI-UV retraite actuellement les données, une nouvelle validation sera alors nécessaire.

Une autre partie de cette thèse a consisté à caractériser les aérosols dans les domaines de l'UV et du visible à partir des mesures spectrales du spectroradiomètre installé à VdA.

Cette caractérisation a concerné deux paramètres qui sont l'épaisseur optique des aérosols et l'albédo de diffusion simple. La détermination de ces deux paramètres présente un intérêt dans l'évaluation de l'impact des aérosols dans le changement climatique. L'albédo de diffusion simple, caractérisant l'absorption des aérosols, est une grandeur particulièrement importante pour quantifier leur impact radiatif et pour la détermination de l'éclairement UV à la surface à partir des mesures satellitaires.

Les épaisseurs optiques des aérosols ont été déterminées à partir des spectres d'éclairements directs déduits des mesures des éclairements global et diffus du spectroradiomètre. Les comparaisons des épaisseurs optiques ainsi retrouvées à 340, 380 et 440 nm avec celles dérivées des mesures photométriques du réseau AERONET/PHOTONS sont très satisfaisantes. En revanche les comparaisons faites avec le coefficient d'Angström calculé sur l'intervalle 340-440 nm se sont révélées moins concluantes, probablement à cause des épaisseurs optiques des aérosols qui sont généralement peu élevées à VdA (inférieures à 0.2 en moyenne). Ce travail nécessitera toutefois des analyses supplémentaires portant sur une plus grande période.

L'albédo de diffusion simple des aérosols a été estimé à partir de nos mesures spectrales et de la modélisation. Nos travaux ont montré que les valeurs retrouvées sont sensibles aux valeurs des épaisseurs optiques des aérosols qui dépendent du spectre hors atmosphère utilisé dans la détermination de ces épaisseurs optiques. Les comparaisons des valeurs d'albédo de diffusion simple que nous avons ainsi restitué à 440 nm, avec celles déduites des mesures des photomètres solaires, se sont toutefois révélées encourageantes, même si ce paramètre n'est pas facile à obtenir en raison des incertitudes existant sur les mesures d'éclairement. A court terme, l'application de la procédure d'inversion aux nouvelles mesures effectuées à VdA avec le spectroradiomètre Bentham permettra d'obtenir des résultats plus précis grâce à sa résolution meilleure que celle du SPUV01.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Les comparaisons des épaisseurs optiques des aérosols obtenues à partir des mesures d'OMI avec les valeurs déduites des mesures du spectroradiomètre et avec les mesures des photomètres du réseau AERONET/PHOTONS se sont avérées très décevantes. Parmi les explications possibles, les faibles valeurs d'épaisseurs optiques des aérosols observées sur le site de VdA, leur absorption modérée, ainsi que la grande taille du pixel OMI peuvent être avancées.

En Afrique de l'Ouest, où le contenu en aérosol absorbant est plus élevé, les produits aérosols OMI (AI, AOT et ω_0) sont en meilleur accord avec les paramètres AERONET/PHOTONS. L'utilisation des mesures lidar de M'Bour (site AMMA du Sénégal) a permis de confirmer que les relations entre l'AI-OMI et les épaisseurs optiques déduites des mesures photométriques étaient dépendantes de l'altitude de la couche des aérosols. Concernant l'albédo de diffusion simple, les comparaisons que nous avons menées sur les sites AMMA de l'Afrique de l'Ouest montrent que les différences entre les valeurs OMI et celles d'AERONET/PHOTONS sont de l'ordre de grandeur de l'incertitude sur le produit AERONET/PHOTONS (de 0.03 à 0.05). Ces comparaisons sont donc encourageantes car comme nous l'avons déjà signalé, ce paramètre reste difficile à estimer de façon précise. Des études réalisées sur une plus grande période compléteront ces résultats.

Actuellement l'un des objectifs des études portant sur l'UV est d'évaluer la part des changements dans le rayonnement UV à la surface dus aux variations, liées au changement climatique, des paramètres atmosphériques (nuages, ozone et aérosols) et environnementaux (albédo de sol, topographie). Pour mener à bien ces études, les mesures satellitaires sont indispensables en raison de leur couverture globale, mais elles nécessitent d'être validées. Cette validation ne peut être réalisée qu'à l'aide de produits géophysiques obtenus à partir d'instruments au sol performants. Ce travail de thèse a permis d'établir que les produits satellitaires OMI sont de qualité variable : la colonne totale d'ozone est très bien retrouvée, en revanche les doses érythémateuses, les épaisseurs optiques et albédo de diffusion simple des aérosols sont à utiliser avec précaution. Il a également confirmé l'importance de l'absorption des aérosols et de l'albédo de surface dans la restitution de l'éclairement UV à la surface à partir de mesures satellitaires. A moyen terme, l'utilisation conjointe des mesures au sol et satellitaires devrait permettre d'avancer sur la question de l'évolution du rayonnement UV au sol et de son impact sur les hommes. Dans ce contexte des travaux ont déjà commencé, tel le projet RISC-UV, piloté par l'Institut Pierre Simon Laplace soutenu par le GIS Climat-Environnement-Société et auquel nous participons. Une campagne de mesures a eu lieu en région parisienne en automne 2008 afin de relier quantitativement les produits UV obtenus à différentes échelles spatiales et par différents capteurs (satellite, mesure sol et dosimètre individuel). D'autres campagnes sont envisagées notamment en mai/juin 2009 pour définir les paramètres pertinents dans

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

l'évaluation du risque UV sur la population : conditions environnementales locales et facteurs humains (habitat, mode de vie).

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Appendices

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

A Quelques définitions de grandeurs statistiques utiles à notre étude

La validation d'un instrument par comparaison à un autre, nécessite l'utilisation d'outils statistiques. Nous allons définir quelques paramètres statistiques qui nous ont été utiles pour effectuer la comparaison entre les mesures du spectroradiomètre et les mesures d'OMI :

Pour estimer le degré de concordance entre les mesures OMI et les mesures du spectroradiomètre, nous avons utilisé le coefficient de corrélation (PEARSON) [Taylor, 2000] :

$$r = \frac{n\sum x_i y_i - \sum x_i \sum y_i}{\sqrt{n\sum {x_i}^2 - (\sum x_i)^2}\sqrt{n\sum {y_i}^2 - (\sum y_i)^2}}. \quad (3)$$

où x_i et y_i sont les mesures du spectroradiomètre et d'OMI, n est le nombre de points.

S'il existe une relation linéaire entre les deux quantités x_i et y_i, c'est à dire r proche de l'unité, la droite de régression représentative de cet ensemble de points est :

$$y_{i(\text{calculé})} = a * x_i + b. \quad (4)$$

où a est la pente de la droite de régression avec σ_a son incertitude et b est l'ordonnée à l'origine avec σ_b son incertitude.
Il existe différents types de régression linéaire, nous avons utilisé la régression simple et la régression robuste.

Ensuite pour estimer les différences existant entre nos deux quantités, nous avons utilisé le RMS (Root Mean Square) qui représente une moyenne de la somme des écarts entre nos deux quantités x_i et y_i au carré :
En absolu :

$$RMS = \sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(y_i - x_i)^2}. \quad (5)$$

En relatif :

$$RMS = \sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(\frac{y_i - x_i}{x_i}\right)^2}.100 \quad en\,\%. \quad (6)$$

Enfin, deux autres paramètres nous permettant de comparer x_i et y_i sont la moyenne des différences et la moyenne des différences relatives qui nous permettront dans certain cas de repérer si il existe un biais entre nos deux quantités :

$$moydiff = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(y_i - x_i\right). \quad (7)$$

$$moydiffrelat = \frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(\frac{y_i - x_i}{x_i}\right).100. \quad (8)$$

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Le calcul de l'estimateur du type moindres carrés linéaire consiste à trouver la valeur des paramètres minimisant la somme des erreurs au carré entre les valeurs mesurées et calculées.

Une façon de rendre l'estimateur plus robuste (le rendre moins sensible aux données aberrantes) est de ne garder qu'un certain sous-ensemble des données. Il s'agit de garder le meilleur sous-ensemble, celui conduisant à une somme minimale des résidus.

A.1 La régression simple (ou ajustement par moindres carrés) :

On utilise pour estimer l'incertitude sur les mesures en y et la qualité du fit (mesure de la dispersion autour de la droite de régression), la déviation standard (std) σ :

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum {r_i}^2}{n-2}}. \tag{9}$$

où r_i est le résidu définit comme suit :

$$r_i = y_{i(\text{exp})} - y_{i(\text{calc})}. \tag{10}$$

ce paramètre représente l'écart entre la valeur mesurée $y_{i(\text{exp})}$ et la valeur estimée $y_{i(\text{calc})}$.

A.2 La regression robuste :

Si les mesures ne suivent pas la loi normale (tracer f(Y) en fonction de Y devrait donner une gaussienne), il est utile d'utiliser la régression robuste. On va pondérer nos mesures en estimant une série de poids à partir des résidus.
On effectue d'abord une régression simple, on obtient des résidus r_i (définis précedemment (Eq 10)). On va utiliser ces résidus pour calculer une série de poids w_i, pour cela on applique la méthode de Huber et la méthode de Tukey (méthode des bipoids) [Hamilton, 1992]. Afin d'estimer la dispersion autour de la droite de regression, on utilise en général la déviation standard (lors d'une régression simple). Lors d'une régression robuste, on va se servir de la médiane des déviations absolues (notée MAD), qui détermine essentiellement l'imprécision sur les mesures puis la qualité du fit, pour définir une nouvelle estimation de l'erreur. La MAD est définie comme suit :

$$MAD = mediane|r_i - mediane(r_i)|. \tag{11}$$

L'estimation de l'erreur en régression robuste devient alors [Hamilton, 1992] :

$$s = \frac{MAD}{0.6745}. \tag{12}$$

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

L'avantage de ce nouveau coefficient "s" est qu'il est moins sensible aux erreurs (contrairement à la déviation standard), ce coefficient est donc utile quand on travaille avec des erreurs ne suivant pas la loi normale.
A partir de cette nouvelle estimation de l'erreur, on définit un nouveau résidu u_i (qui est le résidu défini précédemment (Eq 10) divisé par ce nouveau coefficient 's' (Eq 12)) :

$$u_i = \frac{r_i}{s}. \tag{13}$$

Méthode de Huber :

$$w_i = 1 \qquad \text{si } |u_i| \leq c \tag{14}$$

$$w_i = \frac{c}{|u_i|} \qquad \text{si } |u_i| > c \tag{15}$$

L'estimation de Huber a une probabilité de confiance de 95% avec une constante c=1.345 (déterminé statistiquement) [Hamilton, 1992].

Méthode de Tukey : la méthode des bipoids

$$w_i = \left[1 - (\frac{u_i}{c})^2\right]^2 \qquad \text{si } |u_i| \leq c \tag{16}$$

$$w_i = 0 \qquad \text{si } |u_i| > c \tag{17}$$

L'estimation de Tukey a une probabilité de confiance de 95% avec une constante c=4.685(déterminé statistiquement) Hamilton [1992].

En utilisant les différentes méthodes décrites ci-dessus on obtient : La méthode de calcul par IRLS (Iteratively Reweighted Least Squares) :

Cette methode consiste tout d'abord à effectuer une régression linéaire simple qui va nous donner des résidus r_0 ainsi qu'une valeur initiale de la MAD et de s_0 (Eq 11 et 12). On utilise ensuite la méthode de Huber avec c=1.345 pour déterminer une première série de poids (w_1) ainsi qu'une nouvelle estimation de la MAD et de s_1 :

$$w_1 = 1 \qquad \text{si } \frac{|r_0|}{s_0} \leq 1.345 \tag{18}$$

$$w_1 = \frac{1.345}{\frac{|r_0|}{s_0}} \qquad \text{si } \frac{|r_0|}{s_0} > 1.345 \tag{19}$$

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

On effectue ensuite plusieurs itérations utilisant la méthode de Huber pour déterminer une nouvelle série de poids (w_i) :

$$w_i = 1 \qquad \text{si } \frac{|r_{(i-1)}|}{s_{(i-1)}} \leq 1.345 \tag{20}$$

$$w_i = \frac{1.345}{\frac{|r_{(i-1)}|}{s_{(i-1)}}} \qquad \text{si } \frac{|r_{(i-1)}|}{s_{(i-1)}} > 1.345 \tag{21}$$

jusqu'à ce que la différence des poids d'une itération à l'autre soit inférieure à 0.05.

On poursuit ensuite avec la méthode des bipoids, la méthode de Tukey :

par exemple :

$$w_3 = [1 - (\frac{(\frac{r_2}{s_2})}{4.685})^2]^2 \qquad \text{si } \frac{|r_2|}{s_2} \leq 4.685 \tag{22}$$

$$w_3 = 0 \qquad \text{si } \frac{|r_2|}{s_2} > 4.685 \tag{23}$$

On effectue également plusieurs itérations utilisant la méthode de Tukey pour déterminer une nouvelle série de poids (w_i) :

$$w_i = [1 - (\frac{(\frac{r_{(i-1)}}{s_{(i-1)}})}{4.685})^2]^2 \qquad \text{si } \frac{|r_{(i-1)}|}{s_{(i-1)}} \leq 4.685 \tag{24}$$

$$w_i = 0 \qquad \text{si } \frac{|r_{(i-1)}|}{s_{(i-1)}} > 4.685 \tag{25}$$

jusqu'à ce que la différence des poids d'une itération à l'autre soit inférieure à 0.01.

Les estimations de la pente "a" et de l'ordonnée à l'origine "b" , dépendant des poids w_i déterminés précédemment sont :

$$a = \frac{\sum w \sum wxy - \sum wx \sum wy}{\delta} \tag{26}$$

$$b = \frac{\sum wx^2 \sum wy - \sum wx \sum wxy}{\delta}. \tag{27}$$

où :

$$\delta = \sum w \sum wx^2 - (\sum wx)^2 \cdot \tag{28}$$

Les incertitudes sur le calcul de a et b sont en première estimation :

$${\sigma_a}^2 = s^2 * \frac{n}{\delta} \tag{29}$$

$${\sigma_b}^2 = s^2 * \frac{\sum (x_i z_i)^2}{\delta}. \tag{30}$$

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

où :

$$s^2 = \frac{\sum (r_i z_i)^2}{n-2} \qquad \text{avec } z_i = \sqrt{w_i} * \sqrt{\frac{n}{\sum w_i}} \tag{31}$$

$$\delta = n \sum x_i {z_i}^2 - (\sum x_i {z_i}^2)^2 \tag{32}$$

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

B Fiche pratique sur les instruments

B.1 Le spectroradiomètre Jobin-Yvon

Fig. 31 – *Le spectroradiomètre Jobin-Yvon.*

Cet instrument effectue des mesures d'éclairement spectral sur une surface horizontale.

Tab. 14 – *Le spectroradiomètre Jobin-Yvon.*

Résolution	: 0.75 nm
Intervalle spectral	: 280 - 450 nm
Pas de la mesure	: 0.5 nm
Durée de mesure d'un spectre	: 6 min
Heure pleine et demi-heure (H)	: éclairement global
H-15 et H+15	: éclairement diffus
Incertitudes	: $\sim$ 5% vers 400 nm - $\sim$ 8% vers 300 nm

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

B.2 Le radiomètre UVB

FIG. 32 – *Le radiomètre UVB.*

Cet instrument effectue des mesures de quantités intégrées sur une bande spectrale allant de 270 à 352 nm : puissances érythémateuses.

TAB. 15 – *Le radiomètre UVB.*

Sensibilité	: forte dans les UVB et décroît dans les UVA
Fréquence de mesure	: 1 à 3 min
Incertitude sur le flux UV érythémateux	: $\sim$ 10%

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

C Articles liés à cette thèse

Le premier article concerne la restitution des épaisseurs optiques des aérosols à partir des mesures spectrales à Villeneuve d'Ascq : [Brogniez et al., 2008].

Le second article concerne la validation des produits ozone et UV d'OMI à Villeneuve d'Ascq et à Briançon : [Buchard et al., 2008].

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Atmos. Chem. Phys., 8, 4655–4663, 2008
www.atmos-chem-phys.net/8/4655/2008/
© Author(s) 2008. This work is distributed under
the Creative Commons Attribution 3.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics

Validation of UV-visible aerosol optical thickness retrieved from spectroradiometer measurements

C. Brogniez, V. Buchard, and F. Auriol

LOA/CNRS, Université des Sciences et Technologies de Lille, France

Received: 18 January 2008 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 26 February 2008
Revised: 2 July 2008 – Accepted: 7 July 2008 – Published: 12 August 2008

Abstract. Global and diffuse UV-visible solar irradiances are routinely measured since 2003 with a spectroradiometer operated by the Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) located in Villeneuve d'Ascq, France. The analysis of the direct irradiance derived by cloudless conditions enables retrieving the aerosol optical thickness (AOT) spectrum in the 330–450 nm range. The site hosts also sunphotometers from the AERONET/PHOTONS network performing routinely measurements of the AOT at several wavelengths. On one hand, comparisons between the spectroradiometer and the sunphotometer AOT at 440 nm as well as, when available, at 340 and 380 nm, show good agreement: in 2003–2005 at 440 nm the correlation coefficient, the slope and the intercept of the regression line are [0.97, 0.95, 0.025], and in 2006 at 440, 380 and 340 nm they are [0.97, 1.00, −0.013], [0.97, 0.98, −0.007], and [0.98, 0.98, −0.002] respectively. On the other hand, the AOT's spectral variations have been compared using the Angström exponents derived from AOT data at 340 and 440 nm for both instruments. The comparisons show that this parameter is difficult to retrieve accurately due to the small wavelength range and due to the weak AOT values. Thus, AOT derived at wavelengths outside the spectroradiometer range by means of an extrapolation using the Angström parameter would have large uncertainties, whereas spectroradiometer's spectral AOT could be used for direct validation of other AOT, such as those provided by satellite instruments.

Correspondence to: C. Brogniez
(colette.brogniez@univ-lille1.fr)

1 Introduction

The determination of spectral aerosol optical properties, such as aerosol optical thickness (AOT) and absorption, is important for climate studies (Forster et al., 2007) and has led to the development of networks such as AERONET/PHOTONS (Holben et al., 1998). In the UV range this characterization is difficult to achieve accurately while it is required to allow for example UV index forecast and surface UV-B irradiance retrieval from satellite instruments such as Total Ozone Mapping Spectrometer and Ozone Monitoring Instrument (OMI) (Wenny et al., 2001; Arola and Koskela, 2004). The AERONET/PHOTONS network operates sun-sky radiometers allowing retrieving the aerosol size distribution, the AOT and the single scattering albedo (SSA) at several wavelengths usually in the 340–1020 nm range (Dubovik et al., 2002). The shortest wavelength at which the SSA is provided is 440 nm (i.e. in the visible). To determine the wavelength dependence of the AOT and of the SSA in the UV range, it is worthwhile to get them with a spectral step as small as possible. Spectroradiometers that are used for monitoring spectral UV global irradiance at ground level on a horizontal plane can also be employed to obtain spectral direct irradiance from which spectral AOT is inferred. Combining global, diffuse and/or direct irradiance measurements allows also retrieving the SSA (Petters et al., 2003; Bais et al., 2005; Krotkov et al., 2005). The way to determine the direct irradiance is either by using a collimator toward the sun (Gröbner and Meleti, 2004; Kazadzis et al., 2005, 2007; Cheymol et al., 2006), either by measuring the global irradiance and the diffuse irradiance using a shadow disc to hide the sun, the direct irradiance being derived as the difference global minus diffuse irradiances (de la Casinière et al., 2005). In the first technique the field of view of the instrument pointing to the sun is larger than the sun apparent diameter while in the

Published by Copernicus Publications on behalf of the European Geosciences Union.

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

second method the shadow disc hides an area larger than the solar disc. Therefore, both techniques introduce a bias in the direct irradiance and thus in the derived AOT. In both cases the bias has to be estimated and to be corrected. The latter technique is used in Villeneuve d'Ascq since 2003 and this work concerns the validation of the AOT retrieval, the SSA retrievals will be the subject of further work.

In Sect. 2 of this paper we describe the spectroradiometer used to perform spectral global and diffuse irradiance measurements and the way the spectral direct irradiance is derived. The methodology for inferring the AOT from this direct irradiance is presented along with a detailed uncertainty budget. Comparisons between the previous products and the AOT provided at the same wavelengths by the sunphotometers of AERONET/PHOTONS network located close to the spectroradiometer are shown in Sect. 3 for several years. Section 4 reports the conclusions.

2 Instrument and methodology

The spectroradiometer is located in Villeneuve d'Ascq on the roof of the LOA building (50.61 N, 3.14 E, 70 m a.s.l.), in a flat region in the north of France. It is a Jobin-Yvon HD10 thermally regulated, scanning in the wavelength range 290–450 nm, with 0.5 nm sampling step. Its resolution is about 0.7 nm. Correction of the wavelength misalignment is achieved via a software tool developed at LOA (Houët, 2003), which has been satisfactorily compared to the SHICrivm software (Slaper et al., 1995). Calibration is regularly performed with two standard lamps traceable to NIST (National Institute of Standards and Technology) and NPL (National Physical Laboratory). On average the expanded uncertainty (coverage factor k=2) on the measured irradiance is estimated to be about 5% at around 400 nm and 7% at around 320 nm for a high irradiance level (for example for a solar zenith angle (SZA)=40°) and about 7% and 9% at 400 and 320 nm respectively for a low irradiance level (for example for SZA=70°) (Bernhard and Seckmeyer, 1999; Houët, 2003). The instrument has been checked within the QASUME (Quality Assurance of Spectral Ultraviolet Measurements in Europe) project in September 2004 (Gröbner et al., 2006). Since 2003 the instrument performs alternately scans of the global and of the diffuse irradiance every 15 min, from sunrise to sunset. The shadow disc is large enough to cover the solar disc during the scan duration, therefore the measured diffuse irradiance is slightly smaller than the true value and, as stated in the introduction, a correction is needed. Radiances are computed using the radiative transfer code STREAMER (Key, 1999) enabling to estimate the diffuse irradiance that is hidden by the shadower. The input parameters are the temperature and pressure vertical profiles, the AOT, the SSA, and the SZA. Three aerosol models representative of Villeneuve d'Ascq conditions have been studied and a mean correction is made in the data processing to account for the bias (Houët, 2003). The direct irradiance at the time T, corresponding to the global measurement, is obtained by removing from this global irradiance the average of the two diffuse irradiances measured at $T-15$ min and $T+15$ min. Such a technique requires, of course, stable atmospheric conditions during the period covering the registration of the three spectra. The error introduced by this approximation depends on the aerosol content and on the variation of the SZA during the registration of the spectra. According to Houët (2003), provided the solar zenith angle is smaller than about 60° the additional maximum error on the direct irradiance is less than 1% at 340 nm, less than 0.5% at 380 nm and less than 0.2% at 440 nm. In summer, for SZA=70° we obtain 2%, 1.5% and 1% respectively, and for SZA=75° we have 5%, 4% and 3% respectively. In winter for SZA=70° the additional error is smaller than 0.2% at the three wavelengths and for SZA=75° it is smaller than 0.5%. This error can be estimated, and is corrected in the processing. Finally, the shadower adds a negligible uncertainty on the direct irradiance data for SZA<60° and a maximum uncertainty of 1% at larger SZA.

On clear sky conditions, the total optical thickness at wavelength λ is derived from the measurement as follows:

$$\delta_\lambda^{\mathrm{tot}} = -\cos(\mathrm{SZA}) \times \ell n \left(\frac{E_\lambda^{\mathrm{dir}}}{E_\lambda^0 \times \cos(\mathrm{SZA})} \right) \quad (1)$$

Where E_λ^{dir} is the ground-based direct irradiance, E_λ^0 is the extraterrestrial flux. Clear sky conditions are selected by means of cloud screening performed using a YES UVB-1 radiometer, close to the spectroradiometer, delivering routine measurements with a 3-min period, enabling to detect any fast variability of the irradiance related to cloud presence. Moreover analyses performed on almucantar measurements in the AERONET/PHOTONS processing are also used to determine if clouds are present or not.

In this work E_λ^0 is taken from Thuillier et al. (2003) and is convoluted with the instrument slit function. The retrieved total optical thickness value depends on this reference spectrum and justification of this choice is given below. The aerosol optical thickness is then obtained by removing the contributions of molecules, of ozone and of nitrogen dioxide from the total optical thickness.

The molecular optical thickness is determined following Bodhaine et al. (1999),

$$\delta_\lambda^{\mathrm{Rayl}} = \sigma_\lambda^{\mathrm{Rayl}} \times P_0 \times \frac{A}{m_a g}, \quad (2)$$

where $\sigma_\lambda^{\mathrm{Rayl}}$ is the molecular scattering cross-section, P_0 is the pressure at the surface, A is Avogadro's number, m_a is the mean molecular weight of dry air and g is the acceleration of gravity. Since 2006 P_0 is measured routinely on the site, while before we use the standard midlatitude atmosphere value (1013 hPa in summer and 1018 hPa in winter).

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

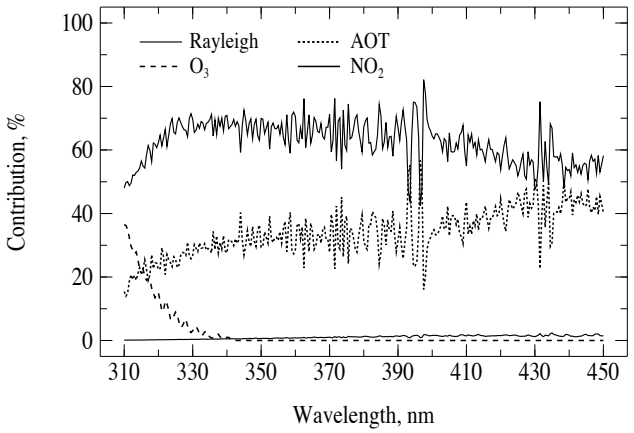

Fig. 1. Contributions of the optical thickness of each species to the total optical thickness measured by the spectroradiometer on 18 July 2006 at 12:30 UTC.

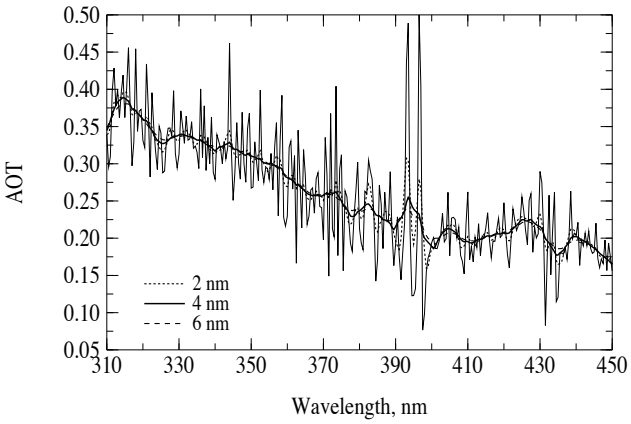

Fig. 2. Spectrum (full thin line) of AOT obtained on 18 July 2006 at 12:30 UTC. Spectra corresponding to triangular smoothing over 2, 4 and 6 nm are also reported.

The ozone optical thickness is obtained from

$$\delta_\lambda^{O_3} = \frac{A \times \sigma_\lambda^{O_3}}{V_m} \frac{\mathrm{TOC}}{10^3}, \quad (3)$$

where V_m is the molecular volume, TOC is the total ozone column in DU derived from the measured spectrum (Houët and Brogniez, 2004) and $\sigma_\lambda^{O_3}$ is the ozone absorption cross-section (taken from Paur and Bass, 1985) convoluted with the instrument slit function. For $\lambda > 340$ nm $\sigma_\lambda^{O_3}=0$, thus $\delta_\lambda^{O_3}=0$. To estimate the contribution of NO_2 we need its total column, as for O_3 in Eq. (3). For measurements performed before OMI launch we use climatological values from Scanning Imaging Absorption Spectrometer for Atmospheric Chartography (SCIAMACHY) available at http://aeronet.gsfc.nasa.gov/cgi-bin/webtool_opera_v2_new. For measurements performed after September 2004 we take values available in the OMI-NO_2 data files (http://disc.gsfc.nasa.gov/data/datapool/OMI). The optical thickness $\delta_\lambda^{NO_2}$ is then computed using spectroscopic data from Burrows et al. (1998) convoluted with the instrument slit function.

The contribution of each species to the total optical thickness is shown in Fig. 1 for 18 July 2006, 12:30 UTC. It appears clearly that the ozone contribution becomes significant below 330 nm, and that the NO_2 contribution is very small in the whole wavelength range.

Figure 2 shows a spectrum (full line) of AOT obtained on the same day. Important high frequency variations appear in the AOT spectrum, especially in the region of Fraunhofer lines at around 393—397 and 431 nm, indicating that the wavelength shift is not completely corrected in our processing. This phenomenon occurs quite often in our AOT spectra, therefore one has performed a triangular smoothing. Spectra corresponding to smoothing over 2, 4 and 6 nm (Full Width at Half Maximum, FWHM) are reported on the figure. The smoothing over 4 nm sounds sufficient to remove rapid oscillations, so in the following this smoothing is retained though large oscillations remain. These oscillations are smaller when using the reference spectrum provided in the SHICrivm software (Slaper et al., 1995) but above about 400 nm this reconstructed spectrum is quite different from Thuillier et al. (2003) spectrum and we have observed that it gives AOT at 440 nm in lesser agreement with AERONET/PHOTONS. Therefore, we have chosen Thuillier et al. (2003) as reference spectrum.

The AOT uncertainty results from uncertainties on δ_λ^{tot}, on δ_λ^{Rayl}, on $\delta_\lambda^{O_3}$ and on $\delta_\lambda^{NO_2}$. In the following all uncertainties are considered uncorrelated. It comes from Eq. (1) that

$$\Delta\delta_\lambda^{tot} = \cos(\mathrm{SZA}) \times \left[\left(\frac{\Delta E_\lambda^{dir}}{E_\lambda^{dir}} \right)^2 + \left(\frac{\Delta E_\lambda^{0}}{E_\lambda^{0}} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (4)$$

with the relative uncertainty on E_λ^{dir} derived from the uncertainties on the measured global and diffuse irradiances (as given above) and the relative uncertainty on E_λ^0 about 1.5% according to Thuillier et al. (2003). From Eq. (2) it appears that the uncertainty $\Delta\delta_\lambda^{Rayl}$ is due to the uncertainty on the Rayleigh scattering cross-section and on the uncertainty on the pressure value at the surface. According to Bodhaine et al. (1999), the relative uncertainty on σ_λ^{Rayl} is less than 1%. The relative uncertainty on the surface pressure is estimated to 1.5% when using the standard midlatitude atmosphere (estimated in 2006 by comparing these values and the measured pressure), as before 2006, and 0.2% when a measured surface pressure is available, as in 2006. Following Eq. (3) the uncertainty $\Delta\delta_\lambda^{O_3}$ is due to the uncertainty on the ozone absorption cross-section, about 2% (Orphal and Chance, 2003), and to the uncertainty on the ozone content, about 3% on clear sky days according to Houët and Brogniez (2004). Similarly, the uncertainty $\Delta\delta_\lambda^{NO_2}$ is due to about 2% uncertainty on the NO_2 absorption cross-section (Orphal

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Table 1. Uncertainty budget for the spectroradiometer and the sunphotometer at two solar zenith angles and at four wavelengths.

	λ, nm	440		380		340		320	
Spectro		SZA=40°	SZA=70°	SZA=40°	SZA=70°	SZA=40°	SZA=70°	SZA=40°	SZA=70°
$\Delta\delta_\lambda^{tot}$		0.040	0.028	0.047	0.031	0.051	0.033	0.055	0.035
$\Delta\delta_\lambda^{Rayl}$	Before 2006	0.0043		0.0080		0.0128		0.0166	
	2006	0.0024		0.0044		0.0071		0.0092	
$\Delta\delta_\lambda^{O_3}$		0.		0.		0.		0.007* 0.012**	
Δ(AOT) spectro	Before 2006	0.040	0.028	0.048	0.032	0.053	0.034	0.058* 0.059**	0.039* 0.041**
	2006	0.040	0.028	0.047	0.031	0.052	0.033	0.056* 0.057**	0.037* 0.038**
Δ(AOT) Sunphotometer		0.008	0.004	0.012	0.005	0.015	0.007		

* For TOC=250 DU, ** for TOC=450 DU

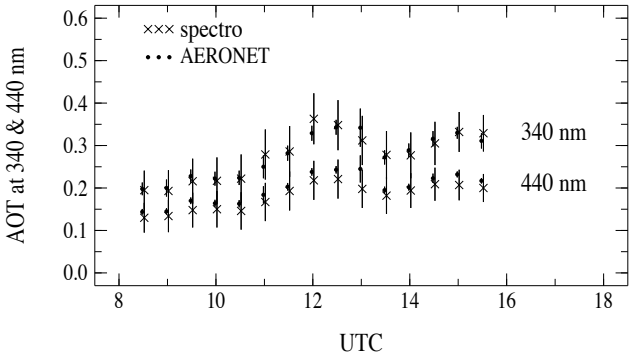

Fig. 3. Daily variations of AOT from the spectroradiometer and from AERONET/PHOTONS at 340 and 440 nm on 3 July 2006. Vertical bars correspond to AOT uncertainties. (Note that the uncertainties on AOT from AERONET/PHOTONS are sometimes very small).

and Chance, 2003) and to the uncertainty on the NO_2 content. This last value is estimated to be about 50% for OMI data according to a NO_2 data quality document (available at http://disc.gsfc.nasa.gov/Aura/OMI/), but since the NO_2 contribution is small the exact value uncertainty has a weak importance.

The various uncertainties at three wavelengths are reported in Table 1. The main contribution comes from the spectroradiometer calibration and from the extraterrestrial flux, whatever the wavelength. The resulting AOT uncertainty varies from 0.025 to 0.055, depending on the wavelength and on the solar elevation.

The shortest wavelength measured by the sunphotometer instruments from AERONET/PHOTONS network operating in Villeneuve d'Ascq before 2006 is 440 nm, while it is 340 nm since 2006. AOT from these instruments are thus available at visible wavelengths before 2006, and also at 380 and 340 nm since 2006. The sunphotometer filters at 340 (FWHM=2 nm), 380 (4) and 440 (10) nm are therefore applied to the spectroradiometer AOT smoothed spectrum to obtain AOT at these three wavelengths for comparison with AOT from AERONET/PHOTONS. Compared to other spectroradiometers such as Brewers, whose largest measurement wavelength is 320 or 365 nm, the advantage of our spectroradiometer is that its spectral range is large enough to avoid extrapolation for comparison with AERONET/PHOTONS AOT at one or several wavelengths in the UV-visible.

Note that the AERONET/PHOTONS processing uses the same molecular scattering cross-sections and for P_0 NCEP (National Center for Environmental Prediction) 6-h averages or monthly climatology from NCEP/NCAR (National Center for Atmospheric Research) reanalysis. For O_3 and NO_2 it uses the same absorption cross-sections as we use and for O_3 and NO_2 total columns it takes monthly climatologies from TOMS and SCIAMACHY respectively. Uncertainties on AOT from AERONET/PHOTONS are estimated equal to $C \times \cos$ (SZA), with C about 0.01 at 440 nm, 0.015 at 380 nm and 0.02 at 340 nm (Eck et al., 1999; Hamonou et al., 1999), they are also reported in Table 1 where it appears that they are significantly smaller than spectroradiometer's uncertainties. The data available for this work are of level 2.0 up to end of January 2006 and of level 1.5 after.

3 Results

Direct irradiance measurements from the spectroradiometer obtained on cloudless conditions are available since 2003, though not continuously. In the following we have considered separately the year 2006 because

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

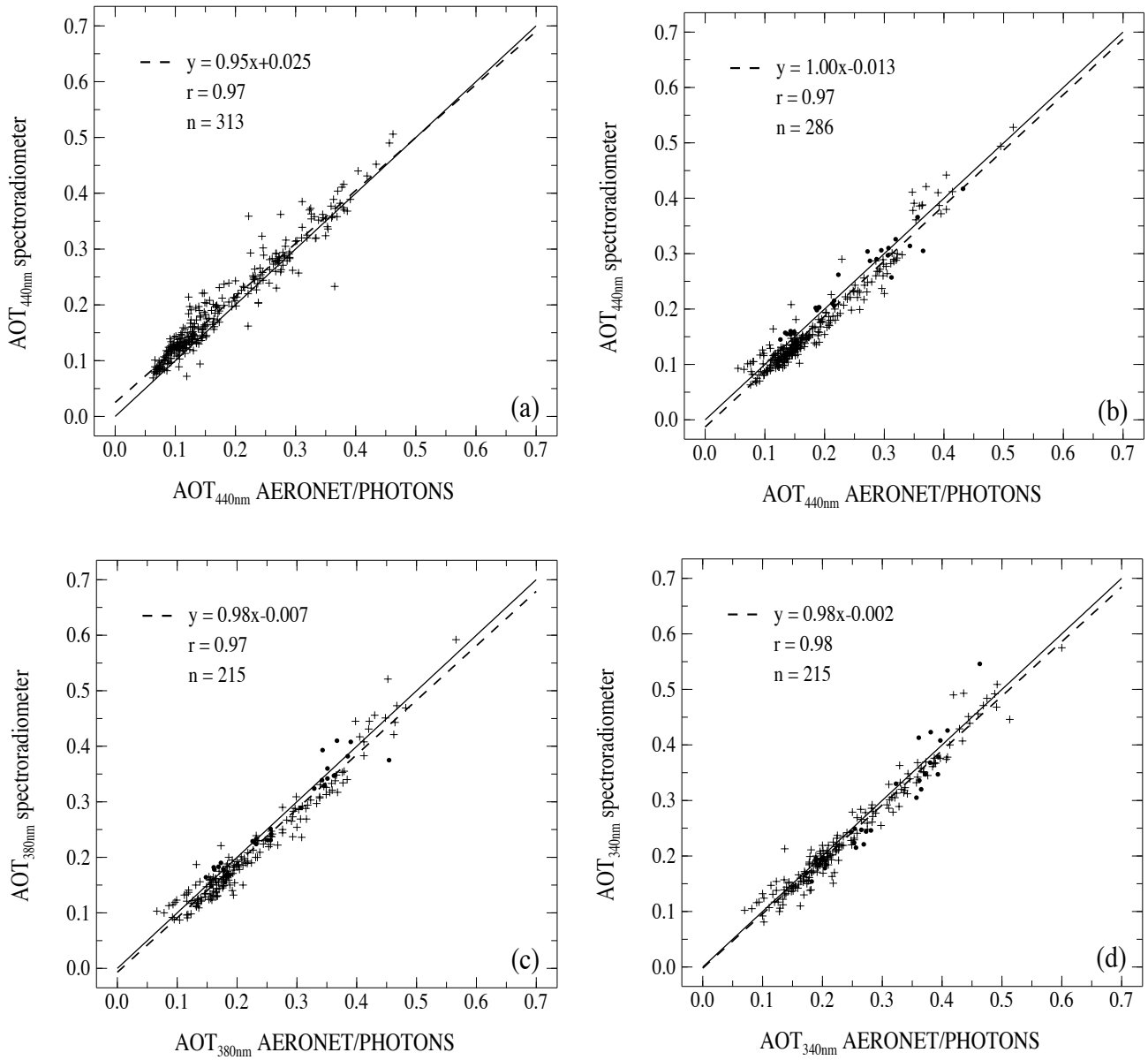

Fig. 4. Scatter plots of AOT from the spectroradiometer versus AOT from AERONET/PHOTONS: **(a)** in 2003–2005 at 440 nm; **(b)** in 2006 at 440 nm; **(c)** in 2006 at 380 nm; **(d)** in 2006 at 340 nm. In (b-c-d) dots are for level 2.0, crosses for level 1.5. The equation of the regression line (dash line) and the correlation coefficient are indicated, the solid line is the first bisector, n is the number of points.

AERONET/PHOTONS data are at level 1.5 except in January, because measurements are generally also available at 340 and 380 nm and because the pressure at ground level P_0 is routinely measured. Sunphotometer's AOT used for comparison with spectroradiometer's AOT are mean AOT over the 30 min interval covering the 2 diffuse and the global spectra.

Diurnal variations of the AOT are reported in Fig. 3 for 3 July 2006 at 340 and 440 nm along with uncertainties. For the spectroradiometer they are estimated following Sect. 2, for the sunphotometer they account for the spread around the mean AOT and for the official uncertainty. At both wavelengths the spectroradiometer's AOT are very close to sunphotometer's AOT and the spectroradiometer captures very well the diurnal variations. Moreover, the sunphotometer data are well within the spectroradiometer uncertainty bars.

Figure 4a–d shows scatter plots of AOT retrieved with the spectroradiometer and with the sunphotometer, during 2003–2005 at 440 nm and during 2006 at 440–380–340 nm.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

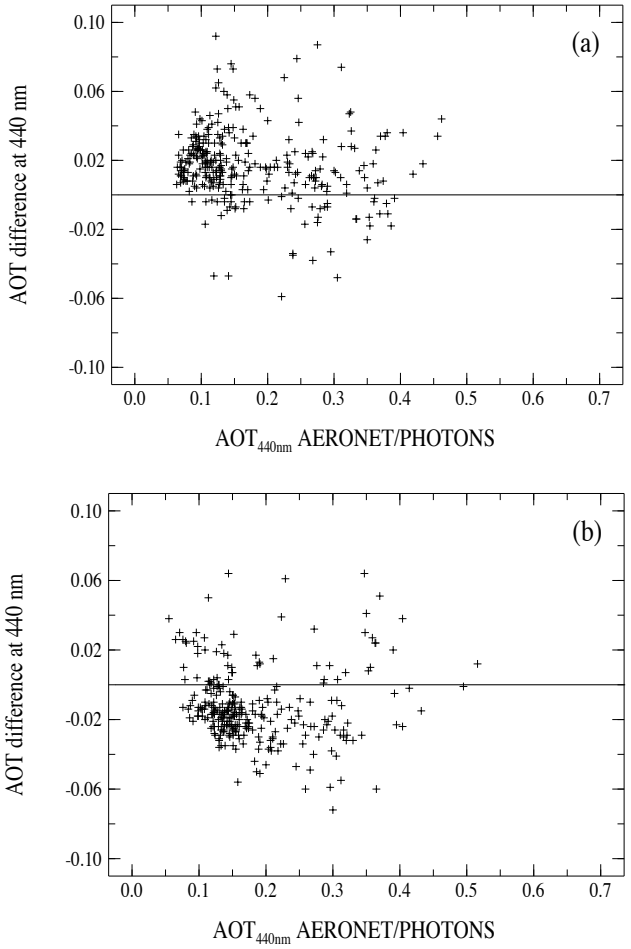

Fig. 5. AOT difference (spectro-AERONET/PHOTONS) at 440 nm versus AOT at 440 nm from AERONET/PHOTONS: **(a)** in 2003–2005; **(b)** in 2006.

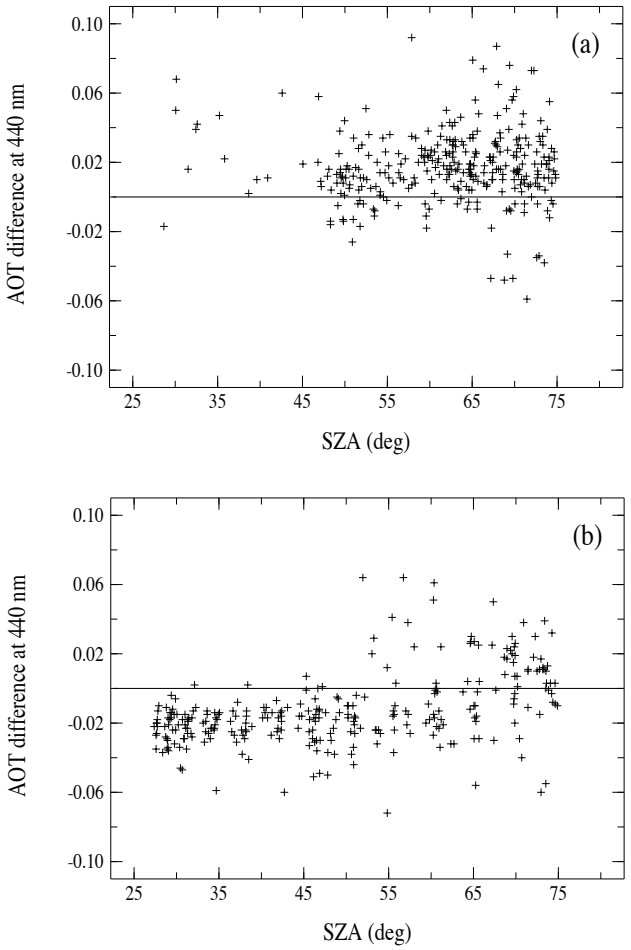

Fig. 6. AOT difference (Spectro-AERONET/PHOTONS) at 440 nm versus SZA in 2003–2005 **(a)** and in 2006 **(b)**.

When looking at AOT at 440 nm for the two periods (Fig. 4a and b) it appears that on average the spectroradiometer retrieves larger AOT than the sunphotometer in 2003–2005 (slope of the regression line = 0.95, intercept = 0.025), while it is the reverse on 2006 (slope = 1.00, intercept = −0.013). As was stated before, 2006 data from AERONET/PHOTONS are of level 1.5 after January instead of level 2.0, thus some changes could occur when the new version will be available. Nevertheless the behaviour of the January pairs (dots) does not differ from the other pairs (crosses). The agreement is also very satisfying at the two other wavelengths (slope = 0.98, intercept = −0.007 at 380 nm and slope = 0.98, intercept = −0.002 at 340 nm). In all cases the correlation is very good (correlation coefficients $\geq$0.97).

Figure 5 shows the AOT difference as function of AOT for 2003–2005 and 2006 at 440 nm. The differences are generally smaller than the spectroradiometer's AOT uncertainty. An AOT effect appears whatever the period and the wavelength, with differences generally smaller at small AOT values. A similar behaviour is observed in 2006 at 380 and 340 nm (not shown). Figure 6 shows the AOT difference versus SZA for 2003–2005 and 2006 at 440 nm. As observed in Fig. 6b, there exists a SZA effect in 2006 with a larger number of positive difference values for low sun (SZA$>$50°). The same effect is observed at 380 nm but at 340 nm it is weaker (not shown). In 2003–2005 (Fig. 6a) there is no obvious effect but during that period only few data are available for SZA$<$50°. Small SZA values occur in summer but possible seasonal effects in the differences have not been investigated because clear sky data are not regularly distributed over the year.

An explanation of the bias observed in 2006 could be an underestimation of the shadower correction made using STREAMER, but before trying to improve the correction this bias has to be confirmed when using AERONET/PHOTONS level 2.0 data. Since a large number of the AOT are rather

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

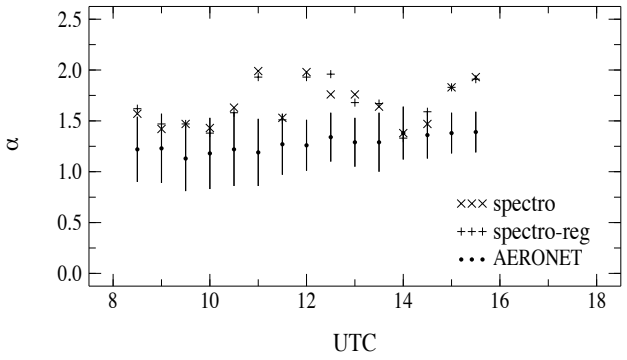

Fig. 7. Daily variations of the Angström exponents retrieved from the spectroradiomer's AOT at 340 and 440 nm, from the regression on the spectroradiometer's AOT in the 330–440 nm range and from AERONET/PHOTONS's AOT at 340 and 440 nm. Vertical bars correspond to uncertainties on α from AERONET/PHOTONS.

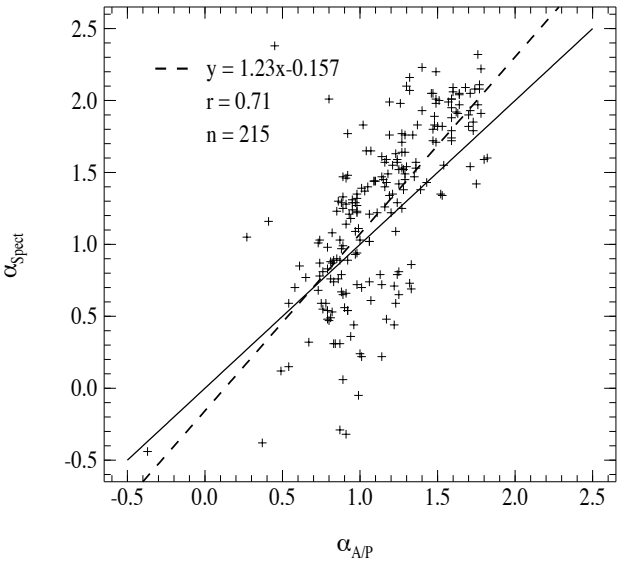

Fig. 8. Scatter plot of the Angström exponent derived from AOT at 340 and 440 nm for both instruments. The equation of the regression line (dash line) and the correlation coefficient are indicated, the solid line is the first bisector.

small (in 2003–2005 about 65% of AOT at 440 nm$\leq$0.2, in 2006 about 75% at 440 nm, 60% at 380 nm and 45% at 340 nm), a large number of relative differences are very large.

Using a power law for the dependence of AOT on the wavelength, an Angström exponent, called $\alpha_{\mathrm{Spect-reg}}$, is derived applying a least-squares fit on the spectroradiometer's AOT data in the wavelength range 330–440 nm. The lower limit of this wavelength range is chosen equal to 330 nm because, as mentioned in section 2 and as seen in Table 1, the effects of molecular scattering and of ozone absorption increase below this value and thus the AOT uncertainty increases. This value of $\alpha_{\mathrm{Spect-reg}}$ is only an estimate of the spectral variations of the AOT since the spectrum exhibits oscillations. Another Angström exponent, α_{Spect}, is derived from the AOT at 340 and 440 nm

$$\alpha_{\mathrm{Spect}} = \ell n \left(\frac{\mathrm{AOT}_{340}}{\mathrm{AOT}_{440}} \right) / \ell n \left(\frac{440}{340} \right), \quad (5)$$

and the uncertainty due to AOT uncertainties is estimated.

α_{Spect} can be directly compared with $\alpha_{A/P}$, obtained by averaging AERONET/PHOTONS Angström exponents, computed for the same wavelengths as in Eq. (5), during the 30 min interval. The uncertainty on $\alpha_{A/P}$ accounts for the spread around the mean and for the uncertainty on each value.

Diurnal variations of the three α are shown in Fig. 7 for the same day as in Fig. 3. We have also reported the uncertainties on $\alpha_{A/P}$, but not those on α_{Spect} since the large relative uncertainties on spectroradiometer's AOT lead to very large uncertainties on α_{Spect} (about 2 to 5 times AERONET uncertainties). Both spectroradiometer retrievals are very close (while they correspond to slightly different wavelength ranges) whereas there are often large discrepancies with sunphotometer data, from 0.2 up to 0.7. Thus, even if spectroradiometer's AOT agree quite well with sunphotometer's AOT, as observed in Fig. 3, the small differences existing at both wavelengths lead to large differences in α.

Comparison between $\alpha_{\mathrm{Spect-reg}}$ and α_{Spect} (not shown) gives a good correlation (r=0.98), the slope of the regression line is equal to 0.95 and the intercept is 0.10, these values can be explained by the difference between the spectral ranges of definition of each α. The scatter plot α_{Spect} versus $\alpha_{A/P}$ in Fig. 8 exhibits a weaker agreement (correlation coefficient = 0.71, slope = 1.23, intercept = −0.157), as well as the plot $\alpha_{\mathrm{Spect-reg}}$ versus $\alpha_{A/P}$ (not shown) demonstrating that α retrieval from the spectroradiometer measurements is not very satisfying.

In addition to the low AOT's values at both wavelengths leading to large relative uncertainties on AOT, the rather large uncertainties on $\alpha_{A/P}$ are also explained by the small wavelength range of definition and thus $\alpha_{A/P}$ is also difficult to retrieve accurately.

As observed in Fig. 9 there is a correlation between the AOT and $\alpha_{A/P}$. Small AOT values are obtained for large $\alpha_{A/P}$, i.e. for small aerosols. Figure 10 shows that there is also a correlation between the AOT difference and $\alpha_{A/P}$. Small AOT difference values are obtained for large $\alpha_{A/P}$, i.e. for small aerosols, confirming the AOT effect seen in Fig. 5 (smaller AOT differences at small AOT). A similar behaviour is observed for the AOT differences at 340 and 380 nm (not shown). This phenomenon could be an effect of the increasing uncertainty on $\alpha_{A/P}$ when the AOT are small, i.e. when the AOT relative uncertainties are large, it needs confirmation with additional measurements.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

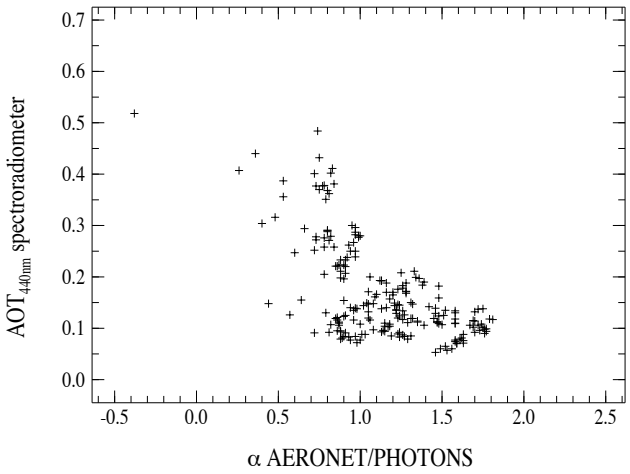

Fig. 9. Spectroradiometer's AOT at 440 nm versus the AERONET/PHOTONS Angström exponent.

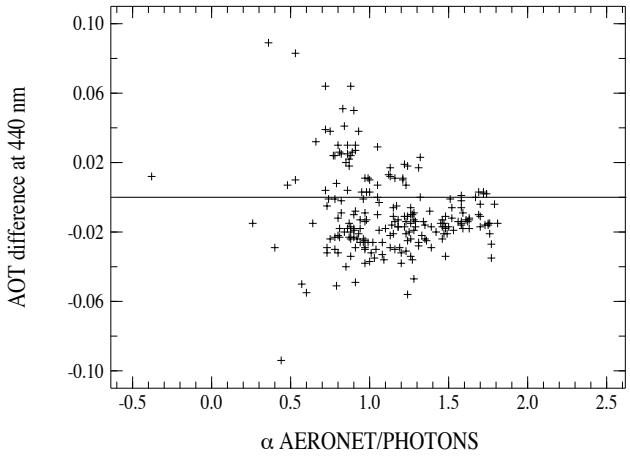

Fig. 10. AOT difference at 440 nm (Spectro-AERONET/PHOTONS) versus the AERONET/PHOTONS Angström exponent.

4 Conclusions

Global and diffuse UV-visible spectral irradiance measurements, performed with a spectroradiometer in VdA, have been used to derive the direct spectral irradiance. Under cloudless conditions, the spectral AOT has been inferred from these data. The retrieved AOT at 440, 380 and 340 nm have been compared with AOT obtained with the sunphotometers of the AERONET/PHOTONS network operating close to the spectroradiometer. The comparisons show good agreement with high correlation coefficients ($\geq$0.97), slopes of the regression lines close to 1 and intercepts very small. Moreover for SZA smaller than 65°, the differences are generally smaller than the uncertainties on the spectroradiometer's AOT. These results are satisfying accounting for the assumption made on the atmospheric conditions stability (including aerosol stability) during the registration of the spectra.

This validation excercise has been extended to the AOT spectral variations by means of the Angström exponent, computed from AOT at 340 and 440 nm. The comparison of the exponents retrieved from each instrument is less satisfying that AOT comparison, demonstrating that this parameter is difficult to retrieve accurately due to the weak AOT and to the small wavelength range of definition. Thus, AOT derived at wavelengths outside the spectroradiometer range by means of this Angström parameter would have rather large uncertainties, whereas, spectroradiometer's spectral AOT could be used for direct validation of AOT provided by satellite instruments.

Therefore, we plan to use our ground-based spectral AOT measurements to validate OMI retrievals. Next we intend to infer the SSA from the global and diffuse measurements to characterize the aerosol absorption in the UV.

Acknowledgements. We thank L. Blarel and T. Podvin from the PHOTONS team for their help in selecting the data. We thank also O. Dubovik, P. Goloub and S. Smirnov for fruitful discussions.

The site is supported by CNES within the french program TOSCA.

The figures were drawn using the Mgraph package developed at LOA by L. Gonzalez and C. Deroo:
http://www-loa.univ-lille1.fr/Mgraph.

Edited by: M. Blumthaler

References

Arola, A. and Koskela, T.: On the sources of bias in aerosol optical depth retrieval in the UV range, J. Geophys. Res., 109, D08209, doi:10.1029/2003JD004375, 2004.

Bais, A., Kazantzidis, A., Kazadzis, S., Balis, D., Zerefos, C., and Meleti, C.: Deriving an effective aerosol single scattering albedo from spectral surface UV irradiance measurements, Atmos. Environ., 39, 1093–1102, 2005.

Bernhard, G. and Seckmeyer, G.: Uncertainty of measurements of spectral solar UV irradiance, J. Geophys. Res., 104, 14 321–14 345, 1999.

Bodhaine, B. A., Wood, N. B., Dutton, E. G., and Slusser, J. R.: On Rayleigh Optical Depth Calculations, J. Atmos. Oceanic Technol., 16, 1854–1861, 1999.

Burrows, J. P., Dehn, A., Deters, B., Himmelmann, S., Richter, A., Voigt, S., and Orphal, J.: Atmospheric Remote-Sensing Reference Data from GOME: 1. Temperature-Dependent Absorption Cross Sections of NO_2 in the 231–794 nm Range, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 60, 1025–1031, 1998.

Cheymol, A., De Backer, H., Josefsson, W., and Stubi, R.: Comparison and validation of the aerosol optical depth obtained with the Langley plot method in the UV-B from Brewer ozone Spectrophotometer measurements, J. Geophys. Res, 111, D16202, doi:10.1029/2006JD007131, 2006.

de La Casinière, A., Cachorro, V., Smolskaia, I., Lenoble, J., Sorribas, M., Houët, M., Massot, O., Anton, M., and Vilaplana,

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

J. M.: Comparative measurements of total ozone amount and aerosol optical depth during a campaign at El Arenosillo, Huelva, Spain, Ann. Geophys., 23, 3399–3406, 2005, http://www.ann-geophys.net/23/3399/2005/.

Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aserosol types observed in world-wide locations, J. Atmos. Sci., 59, 590–608, 2002.

Eck, T. F., Holben, B. N., Reid, J. S., Dubovik, O., Smirnov, A., O'Neill, N. T., Slutsker, I., and Kinne, S.: Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols, J. Geophys. Res, 104(D24), 31 333–31 349, 1999.

Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., et al.: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing, in: Climate Change 2007: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, edited by: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., and Miller, H. L., Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, IPCC Report, http://www.ipcc.ch/ipccreports/ar4-syr.htm, 2007.

Gröbner, J. and Meleti, C.: Aerosol optical depth in the UVB and visible wavelength range from Brewer spectrophotometer direct irradiance measurements: 1991–2002, J. Geophys. Res., 109, D09202, doi:10.1029/2003JD004409, 2004.

Gröbner, J., Blumthaler, M., Kazadzis, S., Bais, A., Webb, A., Schreder, J., Seckmeyer, G., and Rembges, D.: Quality assurance of spectral solar UV measurements: results from 25 UV monitoring sites in Europe, 2002 to 2004, Metrologia, 43, S66–S71, doi:10.1088/0026-1394/43/2/S14, 2006.

Hamonou, E., Chazette, P., Balis, D., Dulac, F., Schneider, X., Galani, E., Ancellet, G., and Papayannis, A.: Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin, J. Geophys. Res., 104(D18), 22 257–22 270, 1999.

Houët, M.: Spectroradiométrie du rayonnement Solaire UV au sol: Améliorations apportées à l'instrumentation et au traitement des mesures. Analyse pour l'évaluation du contenu atmosphérique en ozone et en aérosols, Ph.D. thesis, Univ. of Lille, France, 2003.

Houët, M. and Brogniez, C.: Ozone column retrieval from solar UV irradiance measurements at ground level: sensitivity tests and uncertainty estimation, J. Geophys. Res., 109, D15302, doi:10.1029/2004JD004703, 2004.

Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov A.: AERONET – A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, Rem. Sens. Environ., 66, 1–6, 1998.

Kazadzis, S., Bais, A., Amiridis, V., Balis, D., Meleti, C., Kouremeti, N., Zerefos, C. S., Rapsomanikis, S., Petrakakis, M., Kelesis, A., Tzoumaka, P., and Kelektsoglou, K.: Nine years of UV aerosol optical depth measurements at Thessaloniki, Greece, Atmos. Chem. Phys., 7, 2091–2101, 2007, http://www.atmos-chem-phys.net/7/2091/2007/.

Kazadzis, S., Bais, A., Kouremeti, N., Gerasopoulos, E., Garane, K., Blumthaler, M., Schallhart, B., and Cede, A.: Direct spectral measurements with a Brewer spectroradiometer: absolute calibration and aerosol optical depth retrieval, Appl. Optics, 44(9), 1681–1690, 2005.

Key, J.: STREAMER user's guide, Technical report 96-01, Department of Geography, Boston University, 1999.

Krotkov, N., Bhartia, P. K., Herman, J., Slusser J., Scott, G., Labow, G., Vasilkov, A. P., Eck, T. F., Dubovik, O., and Holben, B. N.: Aerosol ultraviolet absorption experiment (2002 to 2004), Part 2: absorption optical thickness, refractive index, and single scattering albedo, Opt. Eng., 44(4), doi:10.1117/1.1886819, 2005.

Orphal, J. and Chance, K.: Ultraviolet and visible absorption cross-sections for HITRAN, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 82, 491–504, 2003.

Paur, R. J. and Bass, A. M.: The ultraviolet cross sections of ozone. II, Results and temperature dependence, in: Atmospheric Ozone, Proceedings of the Quadriennal Ozone Symposium, edited by: Zerefos, C. and Ghazi, A., 611–616, 1985.

Petters, J. L., Saxena, V. K., Slusser, J. R., Wenny, B. N., and Madronich, S.: Aerosol single scattering albedo retrieved from measurements of surface UV irradiance and a radiative transfer model, J. Geophys. Res., 108(D9), 4288, doi:10.1029/2002JD002360, 2003.

Slaper, H., Reinen, H., Blumthaler, M., Huber, M., and Kuik, F.: Comparing ground-level spectrally resolved solar UV measurements using various instruments: a technique resolving effects of wavelength shift and slit width, Geophys. Res. Lett., 22, 2721–2724, 1995.

Thuillier, G., Hersé, M., Labs, D., Foujols, T., Peetermans, W., Gillotay, D., Simon, P. C., and Mandel, H.: The solar spectral irradiance from 200 to 2400 nm as measured by the SOLSPEC spectrometer from the ATLAS and EURECA missions, Sol. Phys., 214, 1–22, 2003.

Wenny, B. N., Saxena, V. K., Frederick, J. E.: Aerosol optical depth measurements and their impact on surface levels of ultraviolet-B radiation, J. Geophys. Res, 106(D15), 17 311–17 319, 2001.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Atmos. Chem. Phys., 8, 4517–4528, 2008
www.atmos-chem-phys.net/8/4517/2008/
© Author(s) 2008. This work is distributed under
the Creative Commons Attribution 3.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics

Comparison of OMI ozone and UV irradiance data with ground-based measurements at two French sites

V. Buchard[1], **C. Brogniez**[1], **F. Auriol**[1], **B. Bonnel**[1], **J. Lenoble**[1,2], **A. Tanskanen**[3], **B. Bojkov**[4,5], **and P. Veefkind**[6]

[1]Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de Lille, France
[2]Interaction Rayonnement Solaire Atmosphère, Université Joseph Fourier de Grenoble, France
[3]Finnish Meteorological Institute, Helsinki, Finland
[4]Goddard Earth Sciences and Technology Center, University of Maryland, Baltimore County, Baltimore, Maryland, USA
[5]Atmospheric Chemistry Dynamics Branch, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, Maryland, USA
[6]Royal Netherlands Meteorological Institute, De Bilt, The Netherlands

Received: 18 January 2008 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 3 March 2008
Revised: 2 July 2008 – Accepted: 8 July 2008 – Published: 5 August 2008

Abstract. Ozone Monitoring Instrument (OMI), launched in July 2004, is dedicated to the monitoring of the Earth's ozone, air quality and climate. OMI is the successor of the Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) instruments and provides among other atmospheric and radiometric quantities the total column of ozone (TOC), the surface ultraviolet (UV) irradiance at several wavelengths, the erythemal dose rates and the erythemal daily doses. The main objective of this work is to compare OMI data with data from ground-based instruments in order to use OMI products (collection 2) for scientific studies. The Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) located in Villeneuve d'Ascq (VdA) in the north of France performs solar UV measurements using a spectroradiometer. The site of Briançon in the French Southern Alps is also equipped with a spectroradiometer operated by Interaction Rayonnement Solaire Atmosphère (IRSA). The OMI total ozone column data is obtained from the OMI-TOMS and OMI-DOAS algorithms. The comparison between the TOC retrieved with ground-based measurements and OMI-TOMS data shows good agreement at both sites for all sky conditions with a relative difference for most of points better than 5%. For OMI-DOAS data, the agreement is generally better than 7% and these data show a significant dependence on solar zenith angle. Comparisons of spectral UV on clear sky conditions are also satisfying with relative differences smaller than 10% except at solar zenith angles larger than 65°. On the contrary, results of comparisons of the erythemal dose rates and erythemal daily doses for clear sky show that OMI overestimates surface UV doses at VdA by about 15% and that on cloudy skies, the bias increases. At Briançon, such a bias is observed if data corresponding to snow-covered surface are excluded.

Correspondence to: V. Buchard
(buchard@loa.univ-lille1.fr)

1 Introduction

The solar UV radiation has a large impact on human life, animals and plants, with both positive and negative effects. For example, exposure to solar UV enables the synthesis of vitamin D in skin whereas skin cancer or eye diseases can be caused by excessive doses of UV radiation (WMO, 2007). Atmospheric ozone is one of the main factors affecting the surface UV radiation, so its decline observed at middle and high latitudes since the 1980s has led to monitoring of atmospheric ozone content and UV radiation. Ground-based instruments devoted to this monitoring have been developed in many countries as well as satellite instruments which allow a global geographical coverage.

Satellite data are affected by instrumental errors, as data from ground-based instruments (Bernhard and Seckmeyer, 1999), but are also affected by modelling uncertainties in deriving surface UV irradiance from UV radiance measured at the top of atmosphere. Therefore, satellite derived products need to be validated with ground-based measurements. Previous comparisons between satellite surface UV data provided by TOMS and ground-based measurements have been extensively done (Kalliskota et al., 2000; McKenzie et al, 2001; Cede et al., 2004; Arola et al., 2005; Kazantzidis et al.,

Published by Copernicus Publications on behalf of the European Geosciences Union.

© 2010 Tous droits réservés.
http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

2006). They concern mainly snow-covered surface, clouds and aerosols effects on the UV irradiance derived from satellite. The TOC inferred from satellite measurements requests also validation. All these validations must be achieved with care because of a scale issue, indeed ground-based measurements are representative only of a small local area whereas satellite measurements are representative of a large region (OMI pixel at nadir $\sim 13 \times 24\,km^2$) so that difficulties can arise from the cloud or aerosol variability.

The ground-based instruments used to perform spectral irradiance measurements and the OMI instrument are described in Sect. 2 along with the methodologies for inferring the TOC and surface UV from ground-based and from OMI measurements. Section 3 presents comparisons between the OMI products and the products retrieved at two French sites, Villeneuve d'Ascq (50.61° N, 3.14° E, 70 m a.s.l.) and Briançon (44.90° N, 6.65° E, 1330 m a.s.l.). Section 4 reports the conclusions.

2 Instruments and methodologies

2.1 Ground-based instruments

Measurements of the instruments located at Villeneuve d'Ascq and Briançon are used in this study. These sites are typical respectively of a flat region in the north of France and a high altitude valley of the French Southern Alps.

The spectroradiometers at VdA and Briançon are thermally regulated Jobin Yvon H10 double monochromators, and they scan the wavelength range from 280 to 450 nm with a sampling step of 0.5 nm. Their spectral resolution is about 0.7 nm (Full Width at Half Maximum, FWHM). Calibration is performed every 3 months with two standard lamps traceable to NIST (National Institute of Standards and Technology) and NPL (National Physical Laboratory), leading to an irradiance expanded uncertainty (coverage factor k=2) of about 8% at 300 nm and about 5% at 400 nm for a high irradiance level and 10% and 7% respectively for a low irradiance level. The instrument has been checked within the QASUME (Quality Assurance of Spectral Ultraviolet Measurements in Europe) project in September 2004 (Gröbner et al., 2006). The spectroradiometers perform scans of the global irradiance from sunrise to sunset every 30 min. A single spectral scan takes about 6 min.

The broadband instrument in VdA is a UVB-1 type from Yankee Environmental System (YES), it delivers measurements of erythemal dose rate with a three minutes time frequency. It was calibrated in August 2006 during COST-726 campaign.

2.1.1 Ozone retrieval

The total ozone column is routinely retrieved from the ground-based global irradiance spectrum using a differential absorption technique (Stamnes et al., 1991). This method is based on the comparison between two ratios of irradiances at two selected wavelengths (one where the ozone absorption is strong and the other where it is weak). One ratio is simulated beforehand and is stored in a look up table (LUT) and the other is calculated from the UV measurements (Houët and Brogniez, 2004). The LUTs are built using a Radiative Transfer Code (DISORT, DIScret Ordinates Radiative Transfert, Stamnes et al., 1988) for various solar zenith angles and total ozone columns. The ozone absorption cross-sections used to calculate the LUT are taken from Paur and Bass at 221 K (1985). With this technique, it is possible to retrieve ozone under clear sky and cloudy conditions. A previous study (Brogniez et al., 2005) has shown that under cloudy conditions the daily ozone mean is a rather good estimation of the true value. The uncertainties on the ozone retrieval are about 3% on clear sky and on cloudy days, the performance depends on the cloudiness: for example for cloudiness lower than 4 octas, the averaged uncertainty is about 4%, when cloudiness is larger than 4 octas, the averaged uncertainty is about 7%. So, in this study daily averages of the ground-based data obtained for all sky conditions and for zenith angles smaller than 75° are compared with OMI values obtained during overpass. Other comparisons with averaged ground-based values close to the satellite overpass time are also conducted.

2.1.2 UV irradiance

Erythemal dose rates are computed from ground-based spectra using CIE action spectrum (Diffey and McKinlay, 1987) and erythemal daily doses are computed integrating the erythemal dose rates over the day.

To carry out comparison of two spectra measured by two instruments with slit functions of different FWHM one has to process the spectra to set them at a common FWHM (Slaper et al., 1995; Bais et al., 2001). Therefore, the ground-based spectra were first deconvolved using their own FWHM and then reconvolved with a triangular slit function with FWHM of 0.55 nm in order to make the spectroradiometer irradiance comparable to the spectral irradiances produced by the OMI surface UV algorithm. The processing was carried out using the SHICrivm tool (Slaper et al., 1995).

2.2 Ozone monitoring instrument

OMI is a Dutch/Finnish instrument onboard the NASA Earth Observing System (EOS) Aura spacecraft (Levelt et al., 2006a). OMI is a nadir-viewing UV/Visible spectrometer with a spectral resolution about 0.63 nm for the visible channel (349–504 nm) and about 0.42 nm for the UV channel (307–383 nm). It measures the solar light scattered by the atmosphere in the 270–500 nm wavelength range with a spatial resolution at nadir of 13 km × 24 km. The sun-synchronous orbit of Aura and the wide viewing angle of OMI enable daily global coverage of the sunlit portion of the Earth. OMI is

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

the successor of TOMS instruments and contributes to monitoring of the atmospheric ozone, trace gases, aerosols and surface UV radiation (Levelt et al., 2006b).

2.2.1 OMI total column ozone data

Two algorithms are used to derive the total column of ozone from OMI measurements. One of the two algorithms is the TOMS Version 8 algorithm (Bhartia et al., 2002). The same algorithm was used to reprocess all the TOMS data since 1978. It uses two wavelengths to derive total ozone, 317.5 and 331.2 nm under most conditions, 331.2 and 360 nm for high ozone and high solar zenith angle and also other wavelengths for quality control.

The relative uncertainty on this OMI-TOMS-like product is around 2% for solar zenith angle lower than 70° and increasing to 5% at 85° according to Bhartia et al. (2002).

The other algorithm developed by KNMI (Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut in the Netherlands) is based on the Differential Optical Absorption Spectroscopy (DOAS) technique. In the DOAS algorithm, the TOC is determined in three steps. In the first step, to obtain the so-called slant column density (the amount of ozone along an average photon path from the Sun to the satellite), the actual DOAS fitting is performed. In the second step, the air mass factor is determined, which is needed to convert the slant column density into a vertical column. The third step consists of a correction for cloud effects. According to Veefkind et al. (2006), the relative uncertainty on this OMI-DOAS-like product is about 3% for cloudy days and 2% for clear days.

2.2.2 OMI surface UV data

The algorithm used to estimate the UV radiation reaching the Earth's surface is similar to the algorithm used to retrieve UV from the TOMS data (Herman et al., 1999; Krotkov et al., 2002). This OMI surface UV algorithm is based on the use of a radiative transfer model using the OMI-derived total ozone and cloud information as input parameters for modelling. The surface albedo data are obtained from a climatology based on the Nimbus-7/TOMS measurements (Tanskanen, 2004). First of all, the clear-sky surface irradiance is calculated and then a correction is made taking into account the attenuation of the UV radiation by clouds and scattering aerosols (Tanskanen et al., 2006). The speed of the algorithm is optimized using precalculated lookup tables. The OMI surface UV algorithm produces estimates of erythemal daily dose as well as local solar noon erythemal irradiance and spectral irradiances at 305.1, 310.1, 324.1 and 380.1 nm which are calculated using a triangular slit function whose FWHM is 0.55 nm. For validation purposes a modified version of the OMI surface UV algorithm was used to produce for VdA a time series of OMI-derived erythemal dose rates and spectral irradiances corresponding to the OMI overpass

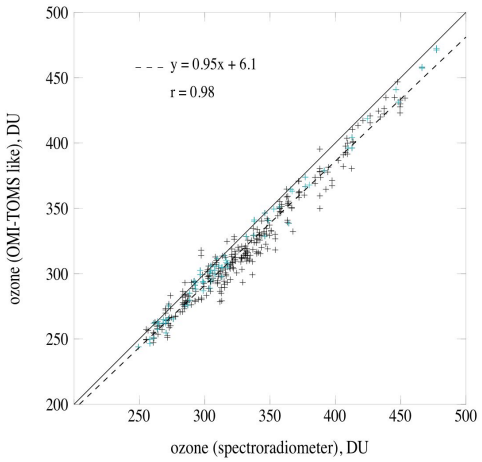

Fig. 1a. Comparison between TOC from the ground-based instrument in Briançon and from OMI-TOMS-like method for all sky conditions (blue cross represents snowy surface days). The equation of the regression line (dash line) and the correlation coefficient are indicated, the solid line is the first bisector.

time. In the future these additional products will be added to the standard OMUVB product.

The accuracy of the OMI-derived daily doses was assessed in a recent validation study (Tanskanen et al., 2007). According to the validation results the OMI-derived daily erythemal doses have a median overestimation of 0–10% for flat, snow-free regions with modest loadings of absorbing aerosols or trace gases, and some 60 to 80% of the doses are within ±20% from the ground reference. For sites significantly affected by absorbing aerosols or trace gases the positive bias can be up to 50%. Because the aerosol absorption cross sections tend to increase as the wavelength decreases, even bigger biases are expected for the low wavelength spectral irradiances derived from the OMI measurements. Thus, comparison of the OMI-derived spectral irradiances with the ground-based measurements will contribute to understanding of the effect of aerosols on surface UV as well as further development of the OMI surface UV algorithm.

3 Results

3.1 Ozone comparisons

We present scatter plots of the TOC derived from the ground-based instrument at both sites and from OMI derived with the two techniques and also time series of the relative differences (OMI-GB)/GB in percent, where GB represents the TOC from the ground-based instrument. As stated in Sect. 2.1.1, the ground-based data are daily averages.

Figure 1a shows the comparison between the TOC retrieved in Briançon and the TOC OMI-TOMS-like, for the period October 2004–September 2005 considering all sky

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

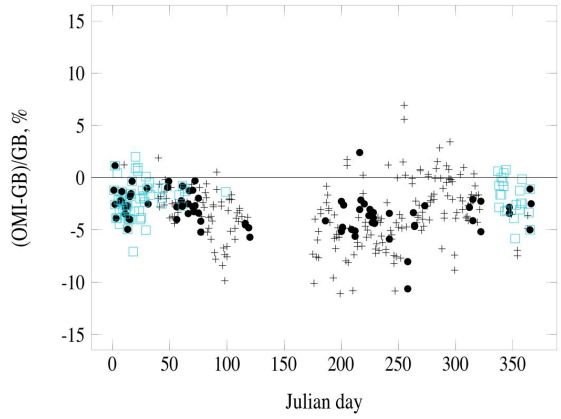

Fig. 1b. Time series of the relative differences between ground-based and OMI-TOMS-like TOC in Briançon (cross represent cloudy day data, black dots represent clear days and blue squares represent snowy surface days, black dots inside blue squares are for clear snowy days).

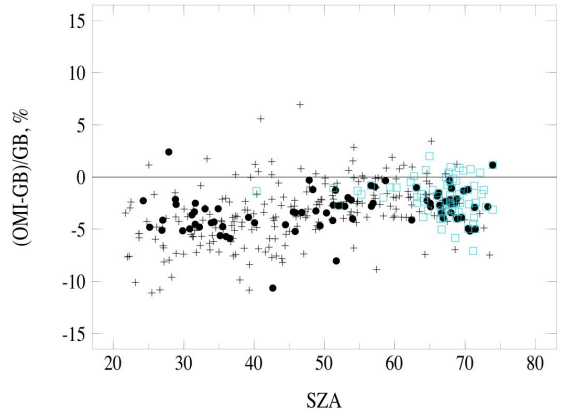

Fig. 1c. Relative differences between ground-based and OMI-TOMS-like TOC in Briançon versus SZA (cross represent cloudy day data, black dots represent clear sky days and blue squares represent snowy surface days, black dots inside a blue squares for clear snowy days).

conditions. (The comparison with the TOC OMI-DOAS-like is not presented for Briançon since the data are not available for the previous period).

Figure 1b presents the time series of the relative differences, with cloudy sky data plotted as cross, clear sky data as black points and with the snow-covered surface data as blue squares.

Accounting for the uncertainties on both products, the comparison is rather satisfying but we note a negative bias (TOC spectroradiometer>TOC OMI) about −3.1%, with discrepancies more important in summer. This seasonal effect can be explained by a cloud effect since clear sky data (black dots) show no seasonal variation. In this study, the days with snow-covered ground (blue squares) show no particular effect. If we consider only the clear days, the comparison is slightly better, the equation of the regression line is y=0.99×−7.1 with a correlation coefficient equal to 0.99.

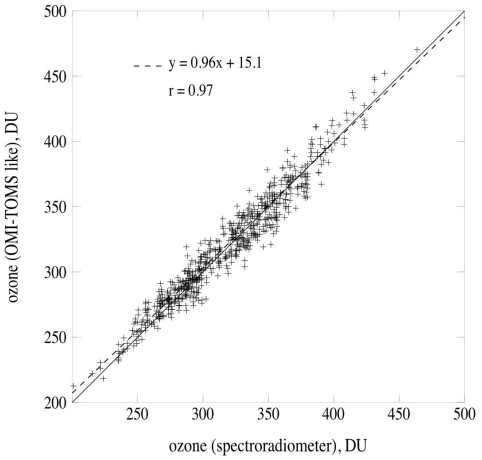

Fig. 2a. Same as Fig. 1a for OMI-TOMS-like method but in VdA.

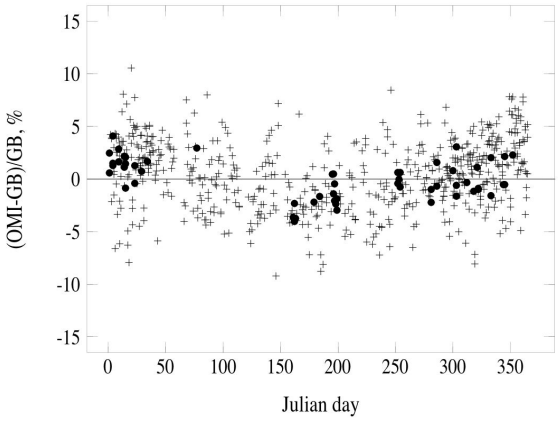

Fig. 2b. Same as Fig. 1b for OMI-TOMS-like method but in VdA.

When looking at relative differences versus the solar zenith angle (SZA) corresponding to OMI data (Fig. 1c), the largest discrepancies observed in summer (smallest SZA) are confirmed for cloudy sky condition data. For clear sky the dependency is small.

Figure 2a–c present the results for the site of VdA for OMI-TOMS-like method for the period October 2005–February 2007.

The scatter plot in Fig. 2a shows similar results as in Fig. 1a.

In Fig. 2b no obvious seasonal effect appears for cloudy days (cross) but in case of clear sky (black dots), the seasonal effect appears unambiguously, OMI TOC is smaller than GB TOC in summer while it is generally the reverse (or no difference) during the rest of the year. If we look at Fig. 2c, we notice that, for the majority of points with large SZA for all sky conditions, OMI TOC is greater than GB TOC.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

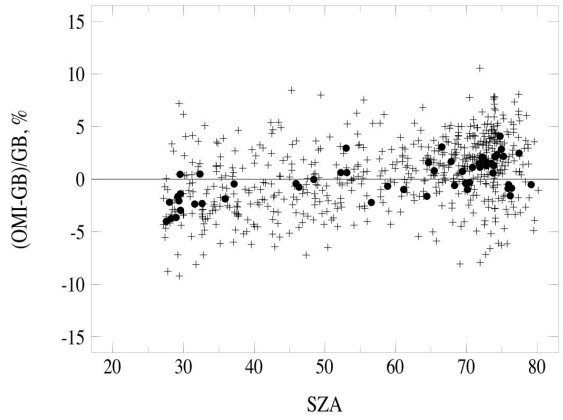

Fig. 2c. Same as Fig. 1c for OMI-TOMS-like method but in VdA.

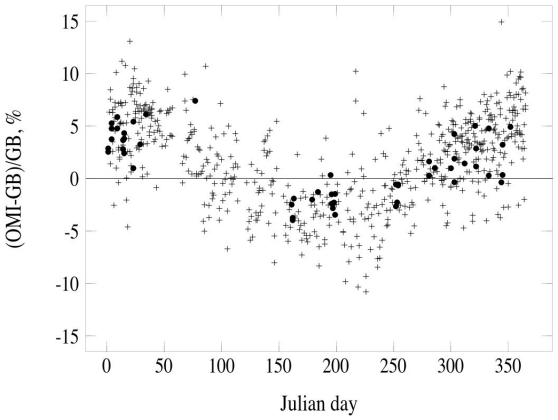

Fig. 2e. Same as Fig. 2b but for TOC from OMI-DOAS-like method.

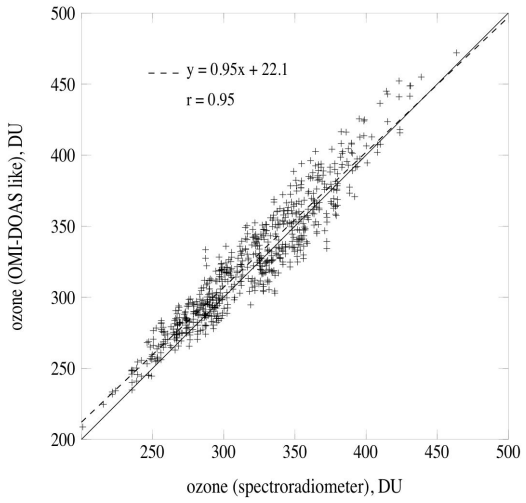

Fig. 2d. Same as Fig. 2a but for TOC from OMI-DOAS-like method.

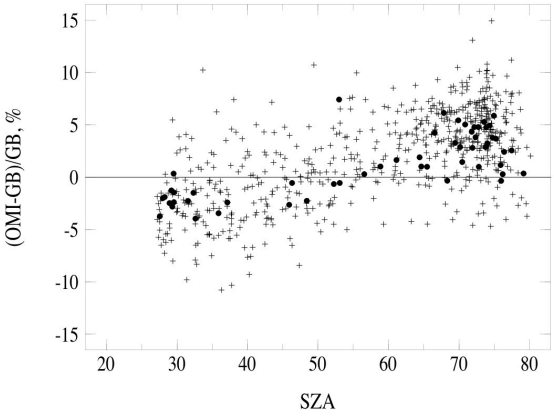

Fig. 2f. Same as Fig. 2c but for TOC from OMI-DOAS-like method.

For the comparison on clear sky days, the relative differences do not exceed 5%, the correlation coefficient is 0.98 and the equation of the regression line is y=0.98×+7.6 much satisfying that for all sky conditions.

Figure 2d–f present the results for the site of VdA for OMI-DOAS-like method for the same period as previously.

Considering the Fig. 2e and f, obviously there is a seasonal effect for both clear and cloudy sky condition data. Dependence with SZA is very important even by clear sky. Balis et al. (2007) found also a significant dependence on SZA between OMI-DOAS and ground-based data at several sites.

The regression line for only clear sky data is y=0.99×+6.3 much better than for all sky conditions with a correlation coefficient equal to 0.96. The agreement is better particularly in summer, with relative differences lower than 5%.

Other comparisons with averages of ground-based values close to the satellite overpass time show similar results (not shown).

To summarize, in VdA we have a better agreement between the ground-based TOC and OMI-TOMS-like TOC (the RMS (root mean square of the relative differences) is equal to 3.2% and the average of the relative differences is equal to 0.5%) than with the DOAS method (RMS=4.7%, average of the relative differences=1.9%) and there is a strong SZA effect.

3.2 Surface UV comparisons

3.2.1 Spectral UV

OMI spectral irradiances are available in VdA at the time of overpass. Figure 3a shows the comparison with the spectroradiometer at wavelength 324.1 nm and Fig. 3b shows the comparison at wavelength 380.1 nm for the period October 2005–February 2007 only for clear sky conditions. The correlations are excellent at both wavelengths but we observe that there is a bias at 324.1 nm and that the regression line is worse at 380.1 nm.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

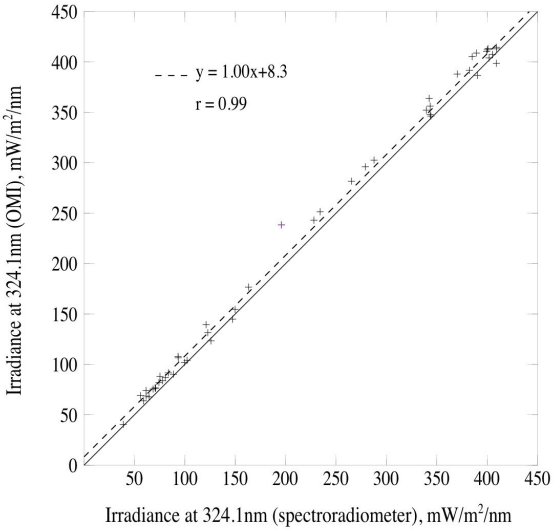

Fig. 3a. Comparison between spectral irradiance at 324.1 nm from the spectroradiometer in VdA and from OMI at the time of overpass for clear skies (the violet cross is studied later).

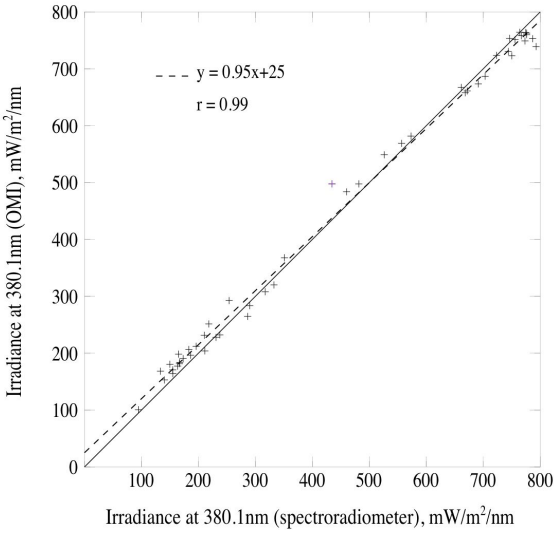

Fig. 3b. Same as Fig. 3a but at 380.1 nm.

The relative difference is plotted versus the spectral irradiance measured by the spectroradiometer in Fig. 3c (324.1 nm) and in Fig. 3d (380.1 nm). The bias observed in Fig. 3a for 324.1 nm appears clearly, it is about 6.5%; moreover we can note at both wavelengths larger differences up to 25% for low irradiances.

If we look at the plot of the relative differences versus SZA (Fig. 3e), we see larger discrepancies for SZA >65° at both wavelengths with OMI >GB in most cases. For these SZA, the irradiance is low and the uncertainty on the measurements with the ground-based spectroradiometer is larger than at smaller SZA. Only one measurement obtained for SZA=53° gives differences larger than the average values at both wavelengths (violet cross and circle).

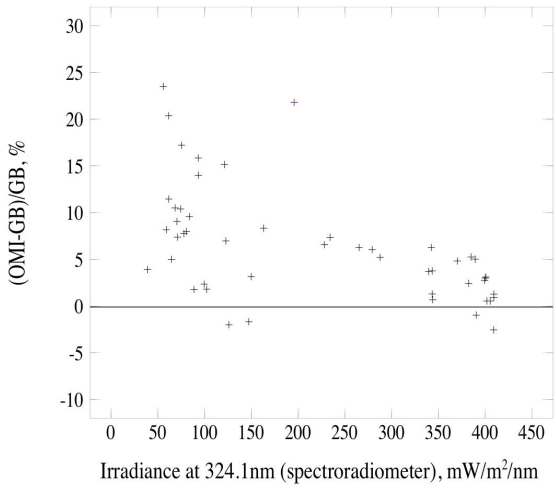

Fig. 3c. Relative differences between ground-based and OMI spectral irradiances at 324.1 nm as a function of the spectroradiometer irradiance in VdA for clear skies.

Under clear sky conditions, the aerosol optical thickness (AOT) is routinely retrieved from the spectroradiometer measurements (Brogniez et al., submitted, same issue), the lower wavelength at which AOT is retrieved with confidence is 330 nm. Figure 3f and g shows that there exists a weak correlation between the differences and the AOT for most days (the correlation coefficient is about 0.6), larger relative differences correspond to larger AOT. Arola et al. (2005) have also studied for TOMS the correlation between UV irradiance differences at 324 nm and absorption AOT, they found a better correlation (about 0.8). Kazantzidis et al. (2006) made the same studies but with AOT and found a correlation greater than 0.65. But larger differences at larger SZA seen on Fig. 3e are not systematically explained by large aerosol contents (the AOT for these days are small). Concerning the violet cross for 324.1 nm in Fig. 3e (SZA=53°), the large relative difference (23%) can be explained by the large AOT (0.47, violet plus in Fig. 3f). Similarly for 380.1 nm, the large relative difference (15%) (violet circle in Fig. 3e) is explained by the large AOT (0.47, violet plus in Fig. 3g).

3.2.2 Erythemal dose rate

OMI-derived erythemal dose rates (EDR) are also available for VdA at the time of overpass. Figure 4a and b shows the comparison with the spectroradiometer and the radiometer for the period October 2005–February 2007 for all sky conditions. OMI surface UV algorithm overestimates the dose rate by about 33% on average for the spectroradiometer and about 69% on average for the radiometer. These values can be explained by the large relative differences at low levels. If we remove the low EDR values, for example lower than 20 mW/m2, we get 22% and 34% (with about half of the points) respectively.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

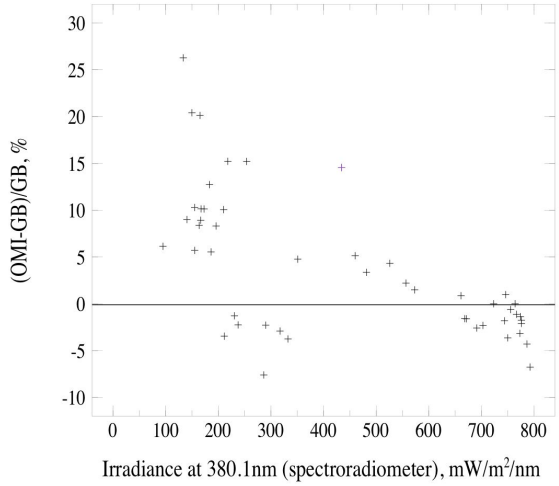

Fig. 3d. Same as Fig. 3c for 380.1 nm.

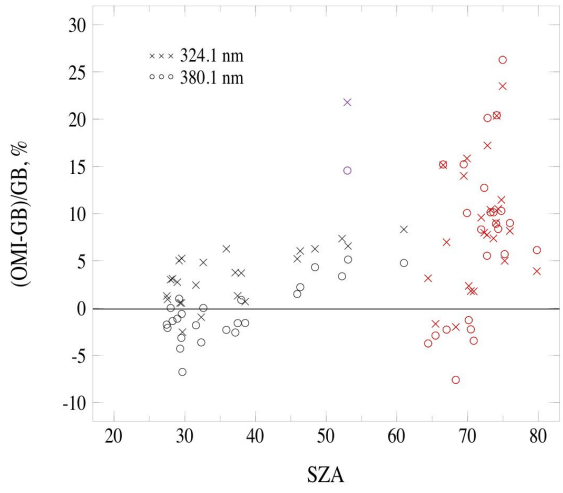

Fig. 3e. Relative differences between ground-based and OMI spectral irradiances for both wavelengths as a function of SZA in VdA for clear skies (red cross and circle for SZA>65°).

The relative differences (OMI-GB)/GB studied versus the cloud optical depth at 360 nm (COD) that is derived by the OMI surface UV algorithm, show a dependence (Fig. 4c). The difference between OMI and GB is more important for large COD. A similar study of the relative difference versus the distance between the OMI pixel and the VdA site shows no correlation (not shown).

The same comparison conducted on spectroradiometer data for clear skies only (Fig. 4d) exhibits the same behaviour, however the number of pairs is small (54 points). The points are less scattered than for all sky conditions, (the correlation coefficient is equal to 0.99 and the RMS is about 20%).

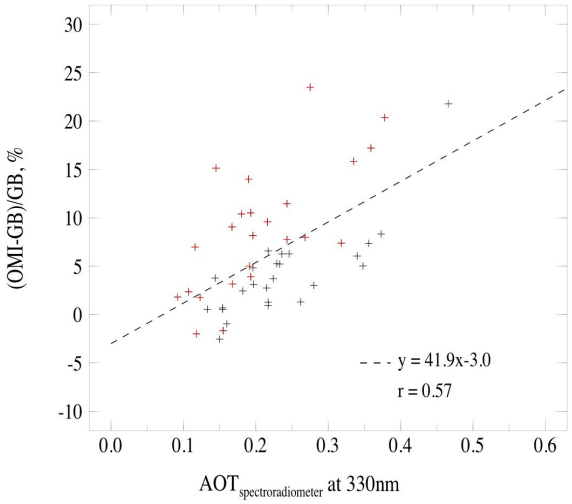

Fig. 3f. Relative differences between ground-based and OMI spectral irradiance at 324.1 nm as a function of AOT at 330 nm in VdA for clear skies (red cross for SZA>65°).

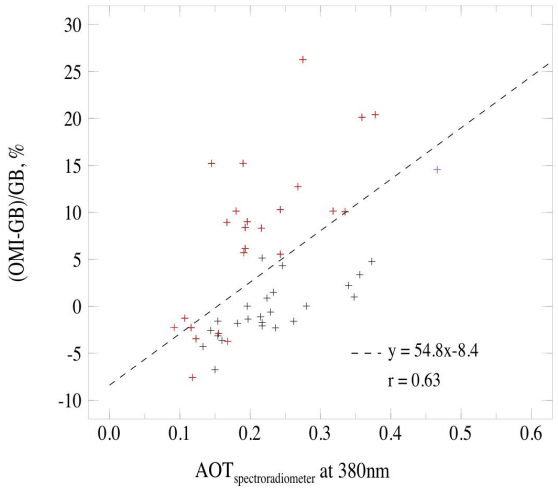

Fig. 3g. Relative differences between ground-based and OMI spectral irradiances at 380.1 nm as a function of AOT at 380 nm in VdA for clear skies (red cross for SZA>65°).

As can be seen in Fig. 4e, a weak correlation (r=0.60) exists between the relative difference and the aerosol content. The bias appears larger at bigger values of AOT. Correlation with the presence of absorbing aerosols is not yet studied since the SSA is not available in the UV range in VdA.

3.2.3 Erythemal daily dose

Figure 5a shows the scatter plot of the erythemal daily doses (EDD) derived from OMI and from the spectroradiometer in Briançon for the period October 2004–September 2005 for all sky conditions.

Time series of the relative differences are shown in Fig. 5b. The data pairs are grouped in three classes: clear-sky, cloudy sky, and snow-covered surface (cloudy or not).

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Table 1. Summary of TOC OMI validation results (r is the correlation coefficient; n is the number of days included in the comparison; the Root Mean Square:

RMS $\left(\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(y_i-x_i)^2}\right)$, the % RMS $\left(\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(\frac{y_i-x_i}{x_i})^2}\times 100\right)$ and the mean relative difference in % $\left(\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(\frac{y_i-x_i}{x_i})\times 100\right)$).

	n	r	slope	intercept	RMS	Mean relative differences
Briançon TOC (OMI TOMS-like)	348	0.98	0.95	6.1	13.8 DU (4.1%)	−3.1%
clear sky Briançon TOC (OMI TOMS-like)	78	0.99	0.99	−7.1	11.9 DU (3.7%)	−3.2%
VdA TOC (OMI TOMS-like)	662	0.97	0.96	15.1	10.4 DU (3.2%)	0.5%
clear sky VdA TOC (OMI TOMS-like)	56	0.98	0.98	7.6	6.2 DU (1.9%)	0.1%
VdA TOC (OMI DOAS-like)	684	0.95	0.95	22.1	15 DU (4.7%)	1.9%
clear sky VdA TOC (OMI DOAS-like)	56	0.96	0.99	6.3	10.6 DU (3.3%)	1.4%

Table 2. Summary of UV OMI validation results.

	n	r	slope	intercept	RMS	Mean relative differences
VdA EDR OMI= f(spectroradiometer)	723	0.96	1.08	4.4	16.5 mW/m^2 (58%)	32.5%
clear sky VdA EDR OMI= f(spectroradiometer)	54	0.99	1.14	0.5	14.7 mW/m^2 (20%)	16.8%
VdA EDR OMI= f(radiometer)	627	0.96	1.13	6.2	17.1 mW/m^2 (110%)	69.3%
clear sky VdA EDR OMI= f(radiometer)	45	0.99	1.14	4.2	15.1 mW/m^2 (45%)	38.9%
Briançon EDD OMI= f(spectroradiometer)	293	0.97	1.22	−154	514 J/m^2 (24%)	7.9%
VdA EDD OMI= f(spectroradiometer)	349	0.99	1.14	16.6	340 J/m^2 (27.5%)	17.1%
clear sky VdA EDD OMI= f(spectroradiometer)	33	0.99	1.13	2.3	340 J/m^2 (13.5%)	13%
clear sky VdA Spectral UV 324.1 nm	49	0.99	1.0	8.3	12.5 mW/m^2/nm (8.8%)	6.4%
clear sky VdA Spectral UV 380.1 nm	49	0.99	0.95	25	21.5 mW/m^2/nm (8.4%)	3.7%

It appears that when the ground is covered with snow, the OMI-derived daily dose is generally lower than the ground-based measurement, with large relative difference. The surface albedo used by the OMI surface UV algorithm is a climatological one, and likely it was lower than the actual effective surface albedo at least during the validation campaign. Past studies have also revealed this underestimation of the surface UV provided by TOMS data (Kalliskota et al., 2000; Krotkov et al., 2001, 2002).

If we consider all the data, the average of the relative differences is 8%, but when excluding snowy days, there is a positive difference for the majority of points (generally in summer) and the average of the relative differences is about 14%.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

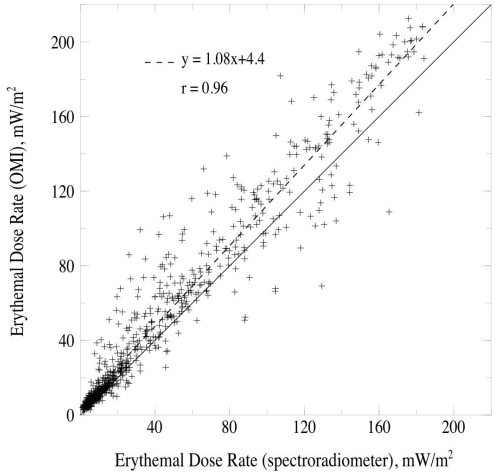

Fig. 4a. Comparison between erythemal dose rate from the spectroradiometer in VdA and erythemal dose rate from OMI at the time of overpass. The equation of the regression line (dash line) and the correlation coefficient are indicated, the solid line is the first bisector.

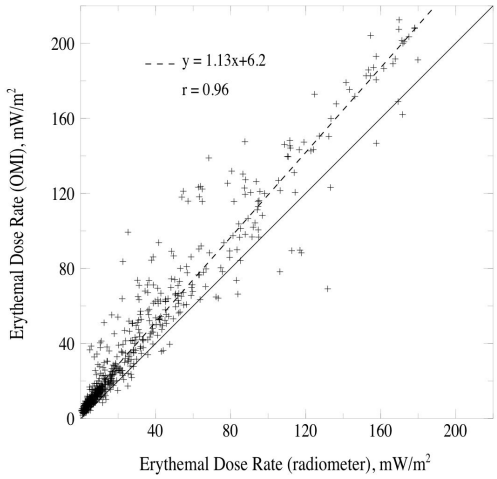

Fig. 4b. Same as Fig. 4a but for the broadband radiometer.

Finally, Fig. 5c compares the erythemal daily doses in VdA for the period October 2005–July 2006 for all sky conditions.

In VdA, a positive bias appears (OMI>GB) as well as in Briançon when excluding snowy days, the average of relative differences is about 17% for all sky conditions (Fig. 5d). For clear sky days (black dots), the relative differences are smaller, they do not exceed 22%, but the bias remains (Fig. 5d), the average of relative differences is about 13%.

As mentioned in Sect. 2.2.2, a bias is also observed in a previous validation work conducted with measurements at several sites (Tanskanen et al., 2007).

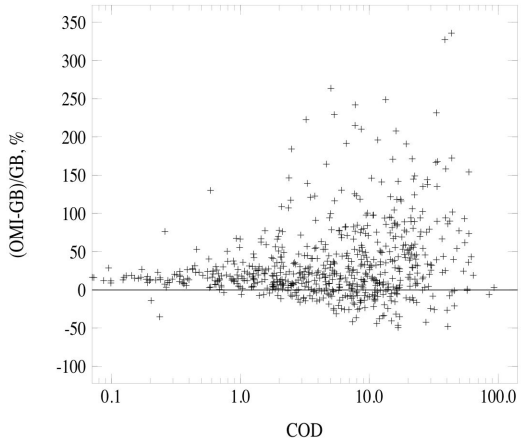

Fig. 4c. Relative differences of erythemal dose rates (OMI-spectro)/spectro as a function of COD in VdA for all sky conditions.

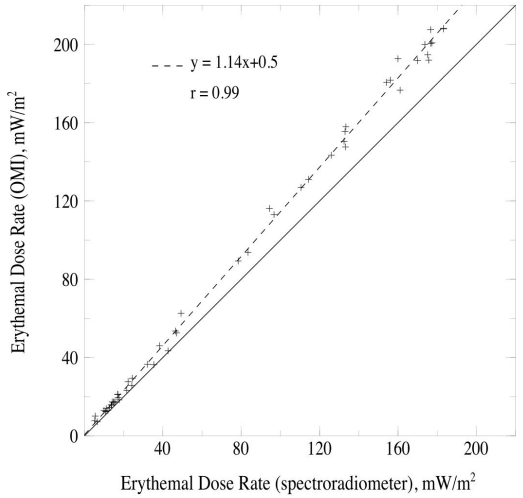

Fig. 4d. Same as Fig. 4a but for clear skies only.

4 Summary

The previous results from the scatter plots are summarized in Table 1 for ozone, in Table 2 for UV. For each comparison, we report the number of data pairs and in parentheses the number of points (n), the correlation coefficient (r), the slope and the intercept of the regression line, the RMS

$$\left(\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}(y_i - x_i)^2}\right),$$

the % RMS

$$\left(\sqrt{\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(\frac{y_i - x_i}{x_i}\right)^2} \times 100\right)$$

and the mean relative difference in %

$$\left(\frac{1}{n}\sum_{i=1}^{n}\left(\frac{y_i - x_i}{x_i}\right) \times 100\right).$$

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

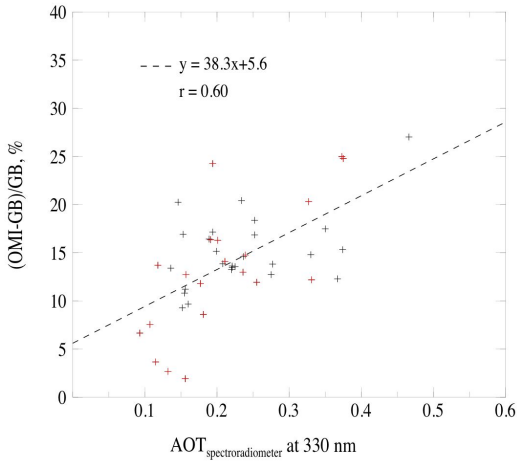

Fig. 4e. Relative differences of erythemal dose rates (OMI-spectro)/spectro as a function of AOT at 330 nm in VdA for clear skies (red cross for SZA >65°).

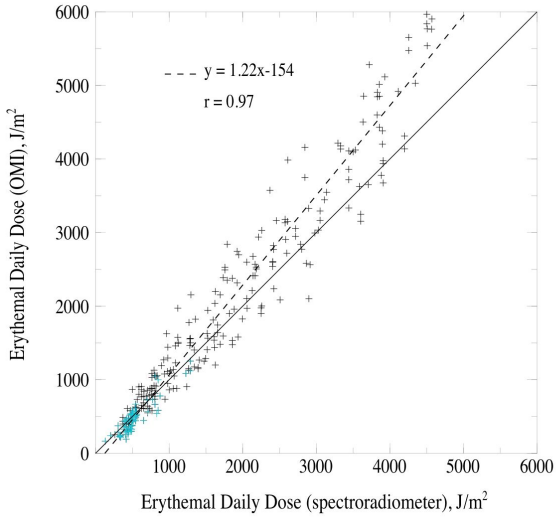

Fig. 5a. Comparison between erythemal daily doses from the spectroradiometer in Briançon and from OMI. The blue cross indicate snowy surface. The equation of the regression line (dash line) and the correlation coefficient are indicated, the solid line is the first bisector.

5 Conclusions

The aim of this study was to compare OMI products with measurements performed by ground-based UV instruments located at two French sites. Two spectroradiometers were used, one operating at VdA and the other at Briançon. The comparison of the total column of ozone shows a satisfying agreement at both sites for the OMI-TOMS-like product (the RMS are 4.1% for Briançon and 3.2% for VdA). For the OMI-DOAS-like product, the comparison conducted at VdA is less satisfying (RMS=4.7%) and a seasonal variation of the agreement appears. This phenomenon is related to a SZA effect and has been reduced in the new version of the

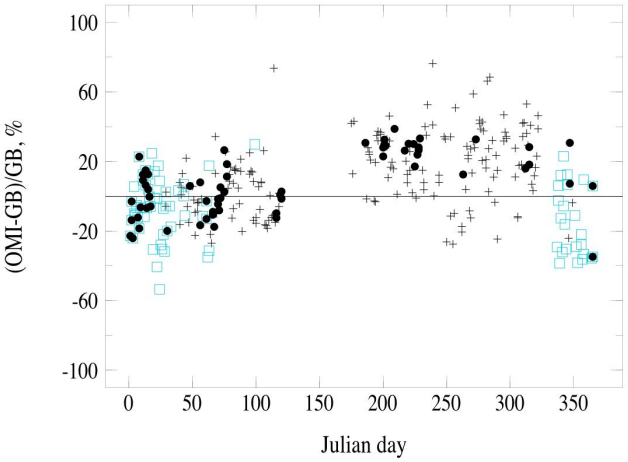

Fig. 5b. Time series of the relative differences between ground-based and OMI erythemal daily doses in Briançon (cross for cloudy day, blue squares are for snowy surface and black dots are for clear days, black dots inside blue squares are for clear snowy days).

data according to (Kroon et al., 2008) (collection 3, overpass files not yet available).

For this validation campaign a modified version of the OMI surface UV algorithm was used to provide irradiances at 324.1 and 380.1 nm and OMI erythemal dose rates at the time of overpass at VdA.

Spectral UV comparisons are satisfying for VdA (the mean relative differences are 6.5% and 3.7% for 324.1 and 380.1 nm respectively). For both wavelengths, the largest differences are observed at low irradiance level (large SZA). If we neglect the low EDR values, the comparisons of OMI erythemal dose rates for VdA show an overestimation of the ground-based dose rates of about 22% on average for the spectroradiometer and 34% on average for the radiometer. The same effect appears for the erythemal daily doses with an overestimation of about 17%. For the site of Briançon, for most days OMI overestimates also ground-based erythemal daily doses (14% for all sky days without snow-covered surface). If we take into account the days with snow-covered surface, the mean difference is reduced (about 8%). These observed biases between OMI erythemal dose rates, OMI erythemal daily doses and ground-based data are in agreement with previous results obtained at other sites, including snow-covered surface cases (Tanskanen et al., 2007).

The study of the impact of the AOT on the quality of the agreement show that large AOT values can explain sometimes, large discrepancies between ground-based and satellite UV products.

The better agreement observed for spectral UV compared to the erythemal daily dose and dose rate can be explained considering that the erythemal doses concern a shorter wavelength range and that the validation of spectral irradiance at 305 and 310 nm is not included in the current validation work.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

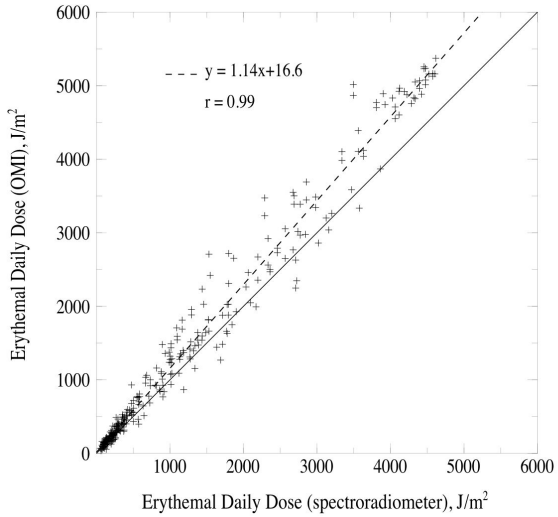

Fig. 5c. Same as Fig. 5a but in VdA.

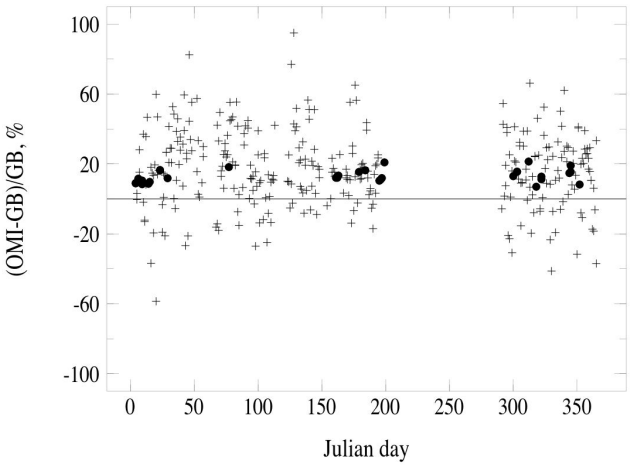

Fig. 5d. Same as Fig. 5b but in VdA.

Acknowledgements. We thank T. Cabot and A. de la Casinière for taking care of the Briançon instrument which belongs to the Centre Européen Médical et Bioclimatique de Recherche et d'Enseignement Universitaire. The sites are supported by CNES within the french program TOSCA. The figures were drawn using the Mgraph package developed at LOA by L. Gonzalez and C. Deroo (http://www-loa.univ-lille1.fr/Mgraph/). The Dutch-Finnish built OMI instrument is part of the NASA EOS Aura satellite payload. The OMI project is managed by NIVR and KNMI in the Netherlands. We thank the OMI International Science Team for the satellite data used in this study. The OMI surface UV data were obtained from the NASA Aura Validation Data Center (AVDC). This work was performed in the framework of the International ESA/KNMI/NIVR OMI "Announcement of Opportunity for Calibration and Validation of the Ozone Monitoring Instrument", providing early access to provisional OMI data sets and guidance to public OMI data. OMI overpass data is available through the Aura Validation Data Center (AVDC, http://avdc.gsfc.nasa.gov)

Edited by: J. Groebner

References

Arola, A., Kazadzis, S., Krotkov, N., Bais, A., Groebner, J., and Herman, J. R.: Assessment of TOMS UV bias due to absorbing aerosols, J. Geophys. Res., 110, D23211, doi:10.1029/2005JD005913, 2005.

Bais, A., Gardiner, B., Slaper, H., et al.: SUSPEN intercomparison of ultraviolet spectroradiometers, J. Geophys. Res., 106, D12, 12 509–12 525, 2001.

Balis, D., Kroon, M., Koukouli, M. E., Brinksma, E. J., Labow, G., Veefkind, J. P., and McPeters, R. D.: Validation of Ozone Monitoring Instrument total ozone column measurements using Brewer and Dobson spectrophotometer ground-based observations, J. Geophys. Res., 112, D24S46, doi:10.1029/2007JD008796, 2007.

Bhartia, P. K. and Wellemeyer, C.: TOMS-V8 Total O_3 algorithm, in: OMI ozone product ATBD Volume II, NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD, USA, 2002.

Bernhard, G. and Seckmeyer, G.: Uncertainty of measurements of spectral solar UV irradiance, J. Geophys. Res., 104, 14 321–14 345, 1999.

Brogniez, C., Houët, M., Siani, A. M., Weihs, P., Allaart, M., Lenoble, J., Cabot, T., de La Casinière, A., and Kyro, E.: Ozone column retrieval from solar UV measurements at ground level: effects of clouds and results from six European sites, J. Geophys. Res., 110, D24202, doi:10.1029/2005JD005992, 2005.

Brogniez, C., Buchard, V., and Auriol, F.: Validation of UV-visible aerosol optical thickness retrieved from spectroradiometer measurements, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 8, 3895–3919, 2008, http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/8/3895/2008/.

Cede, A., Luccini, E., Nuñez, L., Piacentini, R. D., Blumthaler, M., and Herman, J. R.: TOMS-derived erythemal irradiance versus measurements at the stations of the Argentine UV Monitoring Network, J. Geophys. Res., 109, D08109, doi:10.1029/2004JD004519, 2004.

Diffey, B. and McKinlay, A. F.: A reference action spectrum for ultraviolet induced erythema in human skin – human exposure to UV radiation: risks and regulations, Elsevier, NY, USA, 83–87, 1987.

Gröbner, J., Blumthaler, M., Kazadzis, S., Bais, A., Webb, A., Schreder, J., Seckmeyer, G., and Rembges, D.: Quality assurance of spectral solar UV measurements: results from 25 UV monitoring sites in Europe 2002 to 2004, Metrologia, 43, S66–S71, doi:10.1088/0026-1394/43/2/S14, 2006.

Herman, J. R., Krotkov, N., Celarier, E., Larko, D., and Labow, G.: Distribution of UV radiation at the Earth's surface from TOMS-measured UV-backscattered radiances, J. Geophys. Res., 104, 12 059–12 076, 1999.

Houët, M. and Brogniez, C.: Ozone column retrieval from solar UV irradiance measurements at ground level: sensitivity tests and uncertainty estimation, J. Geophys. Res, 109, D15302, doi:10.1029/2004JD004703, 2004.

Kalliskota, S., Kaurola, J., Taalas, P., Herman, J. R., Celarier, E., and Krotkov, N.: Comparison of the daily UV doses estimated

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

from Nimbus7/TOMS measurements and ground-based spectroradiometric data, J. Geophys. Res., 105, 5059–5067, 2000.

Kazantzidis, A., Bais, A. F., Groebner, J., Herman, J. R., Kazadizis, S., Krotkov, N., Kyro, E., den Outer, P. N., Garane, K., Gorts, P., Lakkala, K., Meleti, C., Slaper, H., Tax, R. B., Turunen, T, and Zerefos, C. S.: Comparison of satellite-derived UV irradiances with ground based measurements at four European stations, J. Geophys. Res., 111, D13207, doi:10.1029/2005JD006672, 2006.

Kroon, M., Veefkind, J. P., Sneep, M., McPeters, R. D., Bhartia, P. K., and Levelt, P. F.: Comparing OMI-TOMS and OMI-DOAS total ozone column data, J. Geophys. Res., 113, D16S28, doi:10.1029/2007JD008798, 2008.

Krotkov, N. A., Bhartia, P. K., Herman, J., Ahmad, Z., and Fioletov, V.: Satellite estimation of spectral surface UV irradiance – 2: Effecct of horizontally homogeneous clouds and snow, J. Geophys. Res., 106, 11 743–11 759, 2001.

Krotkov, N. A., Herman, J., Bhartia, P. K., Seftor, C., Arola, A., Kaurola, J., Kalliskota, S., Taalas, P., and Geogdzhaev, I.: Version 2 TOMS UV algorithm: problems and enhancements, Opt. Eng., 41, 3028–3039, 2002.

Levelt, P. F., van den Oord, G. H. J., Dobber, M. R., Mälkki, A., Visser, H., de Vries, J., Stammes, P., Lundell, J. O. V., Saari, H.: The Ozone Monitoring Instrument, IEEE T. Geosci. Remote, 44(5), 1093–1101, 2006a.

Levelt, P. F., Hilsenrath, E., Leppelmeier, G. W., van den Oord, G. B. J., Bhartia, P. K., Tamminen, J.: Science objectives of the ozone monitoring instrument, IEEE T. Geosci. Remote, 44(5), 1199–1208, 2006b.

McKenzie, R. L., Seckmeyer, G., Bais, A. F., Kerr, J. B., and Madronich, S.: Satellite retrievals of erythemal UV dose compared with ground-based measurements at northern and southern midlatitudes, J. Geophys. Res., 106, 24 051–24 062, doi:10.1029/2001JD000545, 2001.

Paur, R. J. and Bass, A. M.: The ultraviolet cross sections of ozone – 2: Results and temperature dependence, in: Atmospheric Ozone, Proceedings of the Quadriennal Ozone Symposium, Haldikiki, Greece, 3–7 September 1984, 611–616, 1985.

Slaper, H., Reinen, H., Blumthaler, M., Huber, M., and Kuik, F.: Comparing ground-level spectrally resolved solar UV measurements using various instruments: a technique resolving effects of wavelength shift and slit width, Geophys. Res. Lett., 22(20), 2721–2724, 1995.

Stamnes, K., Tsay, S. C., Wiscombe, W. J., and Jayaweera, K.: Numerically stable algorithm for discrete ordinate method radiative transfer in multiple scattering and emiting layered media, Appl. Opt., 27, 2502–2509, 1988.

Stamnes, K., Slusser, J. R, and Bowen, M.: Derivation of total ozone abundance and cloud effects from spectral irradiance measurements, Appl. Opt., 30, 4418–4426, 1991.

Tanskanen, A.: Lambertian surface albedo climatology at 360 nm from TOMS data using moving time-window technique, in "Proceedings of the 20th Quadriennal Ozone Symposium", Kos, Greece, 1–8 June 2004, 1159–1160, 2004.

Tanskanen, A., Krotkov, N. A., Herman, J. R., and Arola, A.: Surface Ultraviolet Irradiance from OMI, IEEE T. Geosci. Remote, 44(5), 1267–1271, 2006.

Tanskanen, A., Lindfors, A., Määttä, A., Krotkov, N., Herman, J., Kaurola, J., Koskela, T., Lakkala, K., Fioletov, V., Bernhard G., McKenzie, R., Kondo, Y., O'Neill, M., Slaper, H., den Outer, P., Bais, A., and Tamminen J.: Validation of daily erythemal doses from ozone monitoring Instrument with ground-based UV measurement data, J. Geophys. Res., 112, D24S44, doi:10.1029/2007JD008830 2007.

Veefkind, J. P., de Haan, J. F., Brinksma, E. J., Kroon, M., and Levelt, P. F.: Total ozone from the ozone monitoring instrument (OMI) using the DOAS technique, IEEE T. Geosci. Remote, 44(5), 1239–1244, 2006.

WMO: Scientific assessment of ozone depletion 2006, WMO Report No. 50, World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland, 2007.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Acronymes

AAOT :	Absorption Aerosol Optical Thickness, épaisseur optique d'absorption des aérosols
AI :	Aerosol Index
ACP :	Atmospheric Chemistry and Physics
AERONET :	AErosol RObotic NETwork
AMMA :	Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine
AOT :	Aerosol Optical Thickness, épaisseur optique des aérosols
AQUA :	Nom de plateforme satellitaire
ATLAS :	ATmospheric Laboratory for Applications and Science
A-Train :	Afternoon Train
AURA :	Nom de plateforme satellitaire
BERLIOZ :	BERLIner OZone
BTU :	Brandenburgische Technische Universität
CALIPSO :	Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation
CFC :	ChloroFluoroCarbone
CIE :	Commission Internationale de l'Eclairage
COV :	Composés Organiques Volatiles
DOAS :	Differential Optical Absorption Spectroscopy
DISORT :	DIScrete Ordinates Radiative Transfer
DU :	Dobson Unit
EURECA :	EUropean Retrieval CArrier
FMI :	Finnish Meteorological Institute
FWHM :	Full Width at Half Maximum
GOCART :	Goddard Global Ozone Chemimistry Aerosol Radiation and Transport
GSFC :	Goddard Space Flight Center
HYSPLIT :	Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory
IASI :	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer
INRA :	Institut National de la Recherche Agronomique

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

IPCC :	Intergovernmental Panel on Climate Change
IRSA :	Interaction Rayonnement Solaire Atmosphère
KNMI :	Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut in the Netherlands
LA :	Laboratoire d'Aérologie
LER :	Lambertian Equivalent Reflectivity
LIDAR :	Light Detection and Ranging
LISA :	Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques
LOA :	Laboratoire d'Optique Atmosphérique
LSCE :	Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
LUT :	Look Up Table
MODIS :	MODerate resolution Imaging Spectroradiometer, radiomètre embarqué
NDACC :	Network for Detection of Atmospheric Composition Change
NIVR :	Netherlands Agency for Aerospace Programmes
OCO :	Orbiting Carbon Observatory
OHP :	Observatoire de Haute Provence
OMI :	Ozone Monitoring Instrument
PARASOL :	Polarisation et Anisotropie des Réflectances au sommet de l'Atmosphère, couplées avec un Satellite d'Observation emportant un Lidar
PHOTONS :	PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire
PI :	Principal Investigator
PMOD :	Physikalisch-Meteorologisches Observatorium Davos
POAM :	Polar Ozone and Aerosol Measurement
PSC :	Polar Stratospheric Cloud
RMS :	Root Mean Square
SAFARI :	Southern African Regional Science Initiative
SCIAMACHY :	SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY
SOSP :	SOlar SPectrum
SZA :	Solar zenith Angle, Angle solaire zénithal
TERRA :	Nom de plateforme satellitaire
TOA :	Top of Atmosphère
TOC :	Total Column of Ozone, Colonne Totale d'Ozone
TOMS :	Total Ozone Mapping Spectrometer
UV :	Ultraviolet
YES :	Yankee Environmental System

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Bibliographie

Alicke, B., Geyer, A., Hofzumahaus, A., Holland, F., Konrad, S., Pätz, H. W., Schäfer, J., Stutz, J., Volz-Thomas, A., et Platt, U. OH formation by HONO photolysis during the BERLIOZ experiment. *J. Geophys. Res.*, 108(D4), p. 8247, 2003. doi :10.1029/2001*JD*000579.

Angström, A. On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air. *Geogr. Ann. H*, 11, p. 156–166, 1929.

Arola, A., Kazadzis, S., Krotkov, N., Bais, A., Gröbner, J., et Herman, J. R. Assessment of TOMS UV bias due to absorbing aerosols. *J. Geophys. Res.*, 110(D23211), 2005.

Bais, A. F. et al. International Photolysis Frequency Measurement and Model Intercomparison (IPMMI) : Spectral actinic solar flux measurements and modeling. *J. Geophys. Res.*, 108(D16), 2003. doi :10.1029/2002*JD*002891.

Bais, A.F., Kazantzidis, A., Kazadzis, S., Balis, D.S., Zerefos, C.S., et Meleti, C. Deriving an effective aerosol single scattering albedo from spectral surface UV irradiance measurements. *Atmos. Environ.*, 39(6), p. 1093–1102, 2005.

Balis, D., Kroon, M., Koukouli, M. E., Brinksma, E. J., Labow, G., Veefkind, J. P., et McPeters, R. D. Validation of Ozone Monitoring Instrument total ozone column measurements using Brewer and Dobson spectrophotometer ground-based observations. *J. Geophys. Res.*, 112(*D*24*S*46), 2007. doi :10.1029/2007*JD*008796.

Bates, D. R. et Nicolet, M. Atmospheric hydrogen. *Publ. Astron. Soc. Pac.*, 62, p. 106–110, 1950.

Bernhard, G. et Seckmeyer, G. Uncertainty of measurements of spectral solar UV irradiance. *J. Geophys. Res.*, 104, p. 14321–14345, 1999.

Bhartia, P. K. et Wellemeyer, C. TOMS-V8 Total O3 algorithm. Dans *OMI ozone product ATBD Volume II*, Bhartia, P. K. (éditeur), NASA Goddard Space Flight Center, Greenbelt, MD, USA, 2002.

Bodhaine, B. A., Wood, N. B., Dutton, E. G., et Slusser, J. R. On Rayleigh Optical Depth Calculations. *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 16, p. 1854–1861, 1999.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Bodhaine, B.A., Dutton, E.G., McKenzie, R.L., et Johnston, P.V. Spectral UV measurements at Mauna Loa : July 1995-July 1996. *J. Geophys. Res.*, 23, p. 2121–2124, 1997.

Bohn, B. Solar spectral actinic flux and photolysis frequency measurements in a deciduous forest. *J. Geophys. Res.*, 111(D15303), 2006. doi :10.1029/2005JD006902.

Bohn, B., Koppmann, R., et Rohrer, F. Seasonal variations and profile measurements of photolysis frequencies j (O1D) and j (NO2) at the ECHO forest field site. *J. Geophys. Res.*, 111(*D*12303), 2006. doi :10.1029/2005*JD*006856.

Bohn, B., Kraus, A., Müller, M., et Hofzumahaus, A. Measurement of atmospheric photolysis frequencies using filter-radiometry. *J. Geophys. Res.*, 109(D16), 2004. doi :10.1029/2003JD004319.

Bojkov, R.D., Zerefos, C.S., Balis, D.S., Ziomas, I.C., et Bais, A.F. Record low total ozone during northern winters of 1992 and 1993. *Geophys. Res. Lett.*, 20, p. 1351–1354, 1993.

Bongartz, A., Kames, J., Schurath, U., George, C., Mirabel, P., et Ponche, J. L. Experimental determination of HONO mass accommodation coefficients using two different techniques. *J. Atmos. Chem.*, 18, p. 149–169, 1994.

Booth, C.R. et Madronich, S. Radiation amplification factors - improved formulation accounts for large increases in ultraviolet radiation associated with Antarctic ozone depletion. Dans *Ultraviolet Radiation in Antarctica : Measurements and Biological Effects*, Weiler, C.S. et Penhale, P.A. (éditeurs), pages 39–42, Washington, DC, 1994. AGU Antarctic Research Series, volume 62, American Geophysical Union.

Brasseur, G. et Solomon, S. *Aeronomy of the Middle Atmosphere*. Springer, New York, 2005.

Brogniez, C., Buchard, V., et Auriol, F. Validation of UV aerosol optical thickness retrieved from spectroradiometer measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2008.

Brogniez, C., M., Houët, M., Siani A., Weihs, P., Allaart, M., Lenoble, J., Cabot, T., de La Casinière, A., et Kyro, E. Ozone column retrieval from solar UV measurements at ground level : effects of clouds and results from six European sites. *J. Geophys. Res.*, 110(D24202), 2005. doi :10.1029/2005*JD*005992.

Buchard, V. Rayonnement solaire ultraviolet : mesure et modélisation des fréquences de photolyse de NO2. Master's thesis, Université de Lille1, 2005.

Buchard, V., Brogniez, C., Auriol, F., Bonnel, B., Lenoble, J., Tanskanen, A., Bojkov, B., et Veefkind, P. Comparison of OMI ozone and UV irradiance data with ground-based measurements at two French sites. *Atmos. Chem. Phys.*, 8, p. 4517–4528, 2008.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Burrows, J. P., Richter, A., Dehn, A., Deters, B., Himmelmann, S., et Orphal, J. Atmospheric remote-sensing reference data from GOME-2 : Temperature-dependent absorption cross sections of O3 in the 231- 794 nm range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 61, p. 509–517, 1999.

Carlson, T. N. et Prospero, J. M. The large scale movement of Saharan air outbreaks over the northern equatorial Atlantic. *J. Appl. Meteorol.*, 11, p. 283–297, 1972.

Cede, A., Luccini, E., Nunez, L., Piacentini, R. D., Blumthaler, M., et Herman, J. TOMS derived erythemal irradiance versus measurements at the stations of the Argentine UV Monitoring Network. *J. Geophys. Res.*, 109, 2004. doi :10.1029/2004*JD*004519.

Chapman, S. On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere. *Philos. Mag.*, pages 369–383, 1930.

Cheymol, A. et De Backer, H. Retrieval of the aerosol optical depth in the UV-B at Uccle from Brewer ozone measurements over a long time period 1984-2002. *J. Geophys. Res.*, 108(doi :10.1029/2003*JD*003758), 2003.

Cheymol, A., De Backer, H., Josefsson, W., et Stubi, R. Comparison and validation of the aerosol optical depth obtained with the Langley plot method in the UV-B from Brewer ozone Spectrophotometer measurements. *J. Geophys. Res*, 111, 2006. doi :10.1029/2006*JD*007131.

Chiapello, I., Bergametti, G., Gomes, L., Chatenet, B., Dulac, F., Pimenta, J., et Suares, E. S. An additional low layer transport of sahelian and saharan dust over the north-eastern tropical atlantic. *Geophys. Res. Lett.*, 22(23), p. 3191–3194, 1995. doi :10.1029/95*GL*03313.

Chiapello, I., Goloub, P., Tanré, D., et Marchand, A. Aerosol detection by TOMS and Polder over oceanic regions. *J. Geophys. Res.*, 105(*D*6), p. 7133–7142, 2000.

Chiapello, I. et Moulin, C. TOMS and METEOSAT satellite records of the variability of Saharan dust transport over the Atlantic during the last two decades (1979- 1997). *Geophys. Res. Lett.*, 29(8), p. 17–20, 2002.

Clerbaux, C. et al. The IASI/MetOp I mission : First observations and highlights of its potential contribution to GMES. *Space Res. Today*, 168, p. 19–24, 2007.

Cotte, H., Devaux, C., et Carlier, P. Transformation of irradiance measurements into spectral actinic flux for photolysis rates determination. *J. Atmos. Chem.*, 26, p. 1 – 28, 1997.

Crutzen, P.J. The influence of nitrogen oxide on the atmospheric ozone content. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 96, p. 320–327, 1970.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Curier, R. L., Veefkind, J. P., Braak, R., Veihelmann, B., Torres, O., et de Leeuw, G. Retrieval of aerosol optical properties from OMI radiances using a multiwavelength algorithm : Application to western Europe. *J. Geophys. Res.*, 113(*D*17*S*90), 2008. doi :10.1029/2007*JD*008738.

Dave, J. V. Meaning of successive iteration of the auxiliary equation of radiative transfer. *Astrophys. J.*, 140, p. 1292–1303, 1964.

De Graaf, M., Stammes, P., Torres, O., et Koelemeijer, R. B. A. Absorbing aerosol index : Sensitivity analysis, application to gome and comparison with toms. *J. Geophys. Res.*, 110(D01201), 2005. doi :10.1029/2004*JD*005178.

Demore, W. B., Sander, S. P., Golden, D. M., Hampson, R. F., Kurylo, M. J., Howard, C. J., Ravishankara, A. R., Kolb, C. E., et Molina, M. J. Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modeling. *JPL Publ.*, 97-4, p. 155–157, 1997.

Derimian, Y., Léon, J. F., Dubovik, O., Chiapello, I., Tanré, D., Sinyuk, A., Auriol, F., Podvin, T., Brogniez, G., et Holben, B. N. Radiative properties of aerosol mixture observed during the dry season 2006 over M'Bour, Senegal (African Monsoon Multidisciplinary Analysis campaign). *J. Geophys. Res.*, 113(*D*00*C*09), 2008. doi :10.1029/2008*JD*009904.

Diffey, B. L. Solar ultraviolet radiation effects on biological systems. *Physics in Medicine and Biology*, 36(3), p. 299–328, 1991.

Dobber, M., Kleipool, Q., Dirksen, R., Levelt, P. F., Jaross, G., Taylor, S., Kelly, T., Flynn, L., Leppelmeier, G., et Rozemeijer, N. Validation of Ozone Monitoring Instrument level 1b data products. *J. Geophys. Res.*, 113(*D*15*S*06), 2008a. doi :10.1029/2007*JD*008665.

Dobber, M. R., Voors, R., Dirksen, R., Kleipool, Q., et Levelt, P. The high-resolution solar reference spectrum between 250 and 550 nm and its application to measurements with the Ozone Monitoring Instrument. *Solar. Phys.*, 249, p. 281–291, 2008b.

Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y.J., King, M. D., Tanré, D., et Slutsker, I. Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *J. Atmos. Sci.*, 59(3), p. 590–608, 2002.

Dubovik, O. et King, M. D. A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, 105(*D*16), p. 20673–20696, 2000.

Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B., King, M. D., Kaufman, Y.J., Eck, T. F., et Slutsker, I. Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and Sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, 105(D8), p. 9791–9806, 2000.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Eck, T. F., Holben, B. N., Reid, J. S., Dubovik, O., Smirnov, A., O'Neill, N. T., Slutsker, I., et Kinne, S. Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols. *J. Geophys. Res.*, 104(D24), p. 31333–31349, 1999.

Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., et Flaud, J.-M. Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI. *Geophys. Res. Lett.*, 35 (*L*18805), 2008. doi :10.1029/2008GL034803.

Farman, J.C., Gardiner, B.G., et Shanklin, J.D. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClOx/NOx Interaction. *Nature*, 315, p. 207–210, 1985.

Feister, U. et Grewe, R. Spectral albedo measurements in the UV and visible region over different types of surfaces. *J. Photochem. Photobiol.*, 62, p. 736–744, 1995.

Fioletov, V.E. et Evans, W.F.J. The influence of ozone and other factors on surface radiation. Dans *Ozone Science : a Canadian Perspective on the changing ozone layer*, Wardle, D.I., Kerr, J.B., McElroy, C.T., et Francis, D.R. (éditeurs), pages 73–79. University of Toronto Press, 1997.

Floyd, L.E., Cook, J.W., Herring, L.C., et Crane, P.C. SUSIM's 11-year observational record of the solar UV irradiance. *Adv. Space Res.*, 31(9), p. 2111–2120, 2003.

Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D.W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D.C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., et Van Dorland, R. Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. Dans *Climate Change 2007 : The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K.B., Tignor, M., et Miller, H.L. (éditeurs), pages 129–234. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007.

Ghetti, F., Checcucci, G., et Bornman, J. Impact on ecosystems and human health and predictive models. Dans *Environmental UV Radiation*, pages 85–93, 2006.

Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J., Holben, B., Dubovik, D., et Lin, S. J. Sources and distributions simulated with the GOCART Model. *J. Geophys. Res.*, 106, p. 20255–20273, 2001.

Gröbner, J., Blumthaler, M., Kazadzis, S., Bais, A., Webb, A., Schreder, J., Seckmeyer, G., et Rembges, D. Quality assurance of spectral solar UV measurements : results from 25 UV monitoring sites in Europe 2002 to 2004. *Metrologia*, 43(*S*66-*S*71), 2006. doi :10.1088/0026 − 1394/43/2/*S*14.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Gröbner, J. et Meleti, C. Aerosol optical depth in the UVB and visible wavelength range from Brewer spectrophotometer direct irradiance measurements : 1991-2002. *J. Geophys. Res.*, 109(*D*09202), 2004. doi :10.1029/2003*JD*004409.

Hamilton, L. C. *Regression with graphics : A second course in Applied Statistics*. Duxbury, 1992.

Hamonou, E., Chazette, P., Balis, D., Dulac, F., Schneider, X., Galani, E., Ancellet, G., et Papayannis, A. Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin. *J. Geophys. Res.*, 104(D18), p. 22257–22270, 1999.

Haywood, J. M. et al. Overview of the Dust and Biomass-burning Experiment and African Monsoon Multidisciplinary Analysis Special Observing Period-0. *J. Geophys. Res.*, 113 (*D*00*C*17), 2008. doi :10.1029/2008*JD*010077.

Henyey, L.G. et Greenstein, J.L. Diffuse radiation in the galaxy. *Astrophys. J.*, 93, p. 70–83, 1941.

Herman, J. R., Bhartia, P. K., Torres, O., Hsu, N. C., Seftor, C. J., et Celarier, E. Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus-7/TOMS data. *J. Geophys. Res.*, 102, p. 16911 ? 16922, 1997.

Herman, J. R., Krotkov, N., Celarier, E., Larko, D., et Labow, G. Distribution of UV radiation at the Earth's surface from TOMS measured UV-backscattered radiances. *J. Geophys. Res.*, 104, p. 12059–12076, 1999.

Herman, J.R. et Celarier, E.A. Earth surface reflectivity climatology at 340 nm to 380 nm from TOMS data. *J. Geophys. Res.*, 102, p. 28003–28011, 1997.

Hofzumahaus, A., Kraus, A., et Müller, M. Solar actinic flux spectroradiometry : A technique for measuring photolysis frequencies in the atmosphere. *Appl. Opt.*, 38, p. 4443–4460, 1999.

Holben, B.N., Eck, T.F., Slutsker, I., Tanre, D., Buis, J.P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J.A., Kaufman, Y., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., et Smirnov, A. AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization. *Rem. Sens. Environ.*, 66, p. 1–16, 1998.

Holland, F., Hofzumahaus, A., Schäfer, J., Kraus, A., et Patz, H.-W. Measurements of OH and H2O radical concentrations and photolysis frequencies during BERLIOZ. *J. Geophys. Res.*, 108(doi :10.1029/2001*JD*001393), 2003.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Houët, M. *Spectroradiométrie du rayonnement solaire UV au sol : Améliorations apportés à l'instrumentation et au traitement des mesures. Analyse pour l'évaluation du conternu atmosphérique en ozone et en aérosol*. PhD thesis, Université de Lille1, 2003.

Houët, M. et Brogniez, C. Ozone column retrieval from solar UV irradiance measurements at ground level : sensitivity tests and uncertainty estimation. *J. Geophys. Res.*, 109 (D15302), 2004. doi :10.1029/2004*JD*004703.

Hsu, N. C., Herman, J. R., Gleason, J. F., Torres, O., et Seftor, C. J. Satellite detection of smoke aerosols over a snow/ice surface by TOMS. *Geophys. Res. Lett.*, 26(8), p. 1165–1168, 1999.

IPCC. *Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2001.

Johnson, B. T., Osborne, S. R., Haywood, J. M., et Harrison, M. A. J. Aircraft measurements of biomass burning aerosols over west africa during dabex. *J. Geophys. Res.*, 113 (D00C06), 2008. doi :10.1029/2007JD009451.

Kalliskota, S., Kaurola, J., Taalas, P., Herman, J. R., Celarier, E., et Krotkov, N. Comparison of the daily UV doses estimated from Nimbus7/TOMS measurements and ground based spectroradiometric data. *J. Geophys. Res.*, 105, p. 5059–5067, 2000.

Kaufman, Y. J., Koren, I., Remer, L. A., Tanre, D., Ginoux, P., et Fan, S. Dust transport and deposition observed from the terra-moderate resolution imaging spectroradiometer (modis) spacecraft over the atlantic ocean. *J. Geophys. Res.*, 110(*D*10*S*12), 2005. doi :10.1029/2003*JD*004436.

Kazadzis, S., Bais, A., Kouremeti, N., Gerasopoulos, E., Garane, K., Blumthaler, M., Schallhart, B., et Cede, A. Direct spectral measurements with a brewer spectroradiometer : absolute calibration and aerosol optical depth retrieval. *Appl. Optics*, 44(9), p. 1681–1690, 2005.

Keckhut, P., David, C., Marchand, M., Bekki, S., Jumelet, J., Hauchecorne, A., et Höpfner, M. Observation of polar stratospheric clouds down to the mediterranean coast. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, p. 5275–5281, 2007.

Key, J. *Streamer user's guide, Technical Report* 96-01. Department of Geography, Boston University, 1999.

Kleffmann, J. Daytime Sources of Nitrous Acid (HONO) in the Atmospheric Boundary Layer. *Chem.Phys.Chem.*, 8, p. 1137 –1144, 2007.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Kraus, A. et Hofzumahaus, A. Field measurements of atmospheric photolysis frequencies for O3, NO2, HCHO, H2O2, and HONO by UV spectroradiometry. *J. Atm. Chem.*, 31, p. 161–180, 1998.

Kroon, M., Veefkind, J. P., Sneep, M., McPeters, R. D., Bhartia, P. K., et Levelt, P. F. Comparing OMI-TOMS and OMI-DOAS total ozone column data. *J. Geophys. Res.*, 113($D16S28$), 2008. doi :10.1029/2007$JD008798$.

Krotkov, N. A., Bhartia, P. K., Herman, J., Ahmad, Z., et Fioletov, V. Satellite estimation of spectral surface UV irradiance - 2 : Effect of horizontally homogeneous clouds and snow. *J. Geophys. Res.*, 106, p. 11743–11759, 2001.

Krotkov, N. A., Bhartia, P. K., Herman, J., Slusser, J., Scott, G., Labow, G., Vasilkov, A. P., Eck, T. F., et Holben, B. Aerosol ultraviolet absorption experiment (2002 to 2004), part 2 : absorption optical thickness, refractive index, and single scattering albedo. *Opt. Eng.*, 44, 2005.

Krotkov, N. A., Bhartia, P. K., Herman, J. R., Fioletov, V., et Kerr, J. B. Satellite estimation of spectral surface UV irradiance in the presence of tropospheric aerosols 1 : Cloud-free case. *J. Geophys. Res.*, 103, p. 8779–8793, 1998.

Krotkov, N. A., Herman, J. R., Bhartia, P. K., Seftor, C., Arola, A., Kaurola, J., Kalliskota, S., Taalas, P., et Geogdzhaev, I. V. Version 2 total ozone mapping spectrometer ultraviolet algorithm : Problems and enhancements. *Opt. Eng.*, 41(12), p. 3028–3039, 2002.

Kurucz, R.L., Furenlid, I., Brault, J., et Testerman, L. Solar Flux Atlas from 296 to 1300 nm. *National Solar Observatory, Sunspot*, 1984.

Lenoble, J. et Brogniez, C. A comparative review of radiation aerosols models. *Beitr. Phys. Atmosph.*, 57(1), 1984.

Levelt, P. F., Hilsenrath, E., Leppelmeier, G. W., van den Oord, G. H. J., Bhartia, P. K., Taminnen, J., de Haan, J. F., et Veefkind, J. P. The Ozone Monitoring Instrument. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 44(5), p. 1093–1101, 2006.

Levelt, P. F., Veefkind, J.P., Voors, R.H.M., et de Vries, J. Instrument Description. Dans *OMI Instrument, level* 0-1*b processor, Calibration and Operations, ATBD Volume I*, Levelt, P. F. (éditeur), 2002.

Léon, J.-F., Derimian, Y., Chiapello, I., Tanré, D., Podvin, T., Chatenet, B., Diallo, A., et Deroo, C. LIDAR observations of aerosol transport over M'Bour (16.96°W ; 14.39°N), Sénégal from 2006 to 2008. *Atmos. Chem. Phys.*, 2009. En préparation.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Madronich, S. UV radiation in the natural and perturbed atmosphere. Dans *Environmental Effects of Ultraviolet (UV) Radiation*, pages 17–69. Lewis, Boca Raton, FL, 1993.

Martin, T. J., Gardiner, B. G., et Seckmeyer, G. Uncertainties in satellite-derived estimates of surface UV doses. *J. Geophys. Res.*, 105(*D*22), p. 27005–27012, 2000.

Masserot, D. *Spectroradiométrie du rayonnement solaire UV : Mesures et Analyses*. PhD thesis, Université de Lille1, 2001.

Matsumi, Y., Comes, F. J., Hancock, G., Hofzumahaus, A., Hynes, A. J., Kawasaki, M., et Ravishankara, A. R. Quantum yields for production of O(1D) in the ultraviolet photolysis of ozone : Recommendation based on evaluation of laboratory data. *J. Geophys. Res.*, 107(*D*3), 2002. doi :10.1029/2001*JD*000510.

Mayer, B., Seckmeyer, G., et Kylling, A. Systematic long-term comparison of spectral UV measurements and UVSPEC modeling results. *J. Geophys. Res.*, 102, p. 8755–8767, 1997.

McClatchey, R.A., Fenn, R.W., Selby, J.E.A., Volz, F.E., et Garing, J.S. Optical properties of the atmosphere. *Environmental Research Papers*, 354, 1971.

McElroy, M. B., Salawitch, R. J., Wofsy, S. C., et Logan, J. A. Reductions of antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine. *Nature*, 321, p. 759–762, 1986.

McKenzie, R.L., Johnston, P.V., Bodeker, G.E., Kotkamp, M., Bodhaine, B.A., Hofmann, D.J., Dutton, E.G., Schnell, R.C., Barnes, J.E., et Ryan, S.C. UV spectral irradiance comparison and contrast between Mauna Loa observatory, Hawaii, and Lauder, New Zealand. Dans *Proceedings of the XVIII Quadrennial Ozone Symposium*, Bojkov, R.D. et Visconti, G. (éditeurs), pages 857–860, Parco Scientifico e Technologico d'Abruzzio, L'Aquila, Italy, 1998.

McKenzie, R.L., Liley, J. B., et Björn, L. O. UV Radiation : Balancing Risks and Benefits. *J. Photochem. Photobiol.*, 85, p. 88–98, 2009.

McKinley, A.F. et Diffey, B.L. A reference action spectrum for ultraviolet induced erythema in human skin. *CIE Journal*, 6, p. 17–22, 1987.

McPeters, R.D., Bhartia, P.K., Krueger, A.J., Herman, J.R., Wellemeyer, C.G., Seftor, C.J., Jaross, G., Torres, O., Moy, L., Labow, G., Bierly, S.L., Taylor, W., Swissler, T., et Cebula, R.P. *Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data Products User's Guide*. NASA, 1998.

Merienne, M. F., Jenouvrier, A., et Coquart, B. The NO2 absorption spectrum : 1. Absorption cross sections at ambient temperature in the 300-500 nm region. *J. Atmos. Chem.*, 20, p. 281–297, 1995.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Molina, M.J. et Rowland, F.S. Stratospheric sink for chlorofluoromethanes : chlorine atom-catalysed destruction of ozone. *Nature*, 249(5460), p. 810–812, 1974.

Orphal, J. et Chance, K. Ultraviolet and visible absorption crosssections for HITRAN. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer.*, 82, p. 491–504, 2003.

Pachart, E. *Mesure et modélisation du rayonnement ultraviolet au sol*. PhD thesis, Université de Lille1, 1997.

Paur, R. J. et Bass, A. M. The ultraviolet Cross-Sections of Ozone : II. Results and temperature dependence, in : Atmospheric Ozone. Dans *Proceedings of the Quadriennal Ozone Symposium, Haldikiki, Greece,* 3-7 *September* 1984, pages 611–616, 1985.

Petters, J.L., Saxena, V.K., Slusser, J.R., Wenny, B.N., et Madronich, S. Aerosol single scattering albedo retrieved from measurements of surface UV irradiance and a radiative transfer model. *J. Geophys. Res.*, 108(D9), 2003. doi : 10.1029/2002JD002360.

Redelsperger, J.L., Thorncroft, C. D., Diedhiou, A., Lebel, T., Parker, D. J., et Polcher, J. African monsoon multidisciplinary analysis : An international research project and field campaign. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 87, p. 1739–1746, 2006. doi :10.1175/$BAMS - 87 - 12 - 1739$.

Schwartz, G.G. et Blot, W.J. Vitamin D status and cancer incidence and mortality : something new under the sun. *J. Natl. Cancer Inst.*, 98(7), p. 428–430, 2006.

Shetter, R. E. et al. Photolysis frequency of NO2 : Measurement and modeling during the International Photolysis Frequency Measurement and Modeling Intercomparison (IPMMI). *J. Geophys. Res.*, 108(D16), 2003. doi :10.1029/2002JD002932.

Shetter, R. E., Cantrell, C. A., Lantz, K. O., Flocke, S. J., Orlando, J. J., Tyndall, G. S., Gilpin, T. M., Fischer, C. A., Madronich, S., et Calvert, J. G. Actinometric and radiometric measurement and modeling of the photolysis rate coefficient of ozone to $O(^1D)$ during Mauna Loa Observatory Photochemistry Experiment 2. *J. Geophys. Res.*, 101(D9), 1996.

Slaper, H., Reinen, H., Blumthaler, M., Huber, M., et Kuik, F. Comparing ground-level spectrally resolved solar UV measurements using instruments : a technique resolving effects of wavelength shift and slit width. *Geophys. Res. Lett.*, 22(20), p. 2721–2724, 1995.

Slingo, A. et al. Observations of the impact of a major Saharan dust storm on the atmospheric radiation balance. *Geophys. Res. Lett.*, 33(L24817), 2006. doi :10.1029/2006GL027869.

Solomon, S., Garcia, R., Rowland, F.S., et Wuebbles, D.J. On the depletion of antarctic ozone. *nature*, 351, p. 755–758, 1986.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Stamnes, K., Tsay, S.-C., Wiscombe, W., et Jayaweera, K. Numerically stable algorithm for discrete-ordinatemethod radiative transfer in multiple scattering and emitting layered media. *Appl. Opt.*, 27, p. 2502–2509, 1988.

Steinbrecht, W., Claude, H., Schönenborn, F., McDermid, I. S., Leblanc, T., Godin, S., Song, T., Swart, D. P. J., Meijer, Y. J., Bodeker, G. E., Connor, B. J., Kämpfer, N., Hocke, K., Calisesi, Y., Schneider, N., de la Noë, J., Parrish, A. D., Boyd, I. S., Brühl, C., Steil, B., Giorgetta, M. A., Manzini, E., Thomason, L. W., Zawodny, J. M., McCormick, M. P., Russell, J. M., Bhartia, P. K., Stolarski, R. S., et Hollandsworth-Frith, S. M. Long-term evolution of upper stratospheric ozone at selected stations of the Network for the Detection of Stratospheric Change (NDSC). *J. Geophys. Res.*, 111(D10S06), 2006.

Stolarski, R.S et Cicerone, R.J. Stratospheric chlorine : A possible sink for ozone. *Can. J. Chem.*, 52, p. 1610–1615, 1974.

Tanskanen, A. Lambertian surface albedo climatology at 360 nm from TOMS data using moving time-window technique. Dans *Proceedings of the* 20*th Quadriennal Ozone Symposium*, pages 1159–1160, Grèce, 1 – 8 June 2004.

Tanskanen, A., Krotkov, N. A., Herman, J. R., et Arola, A. Surface ultraviolet irrandiance from OMI. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 44(5), 2006.

Tanskanen, A., Lindfors, A., Määttä, A., Krotkov, N., Herman, J., Kaurola, J., Koskela, T., Lakkala, K., Fioletov, V., G., Bernhard, McKenzie, R., Kondo, Y., O'Neill, M., Slaper, H., den Outer, P., Bais, A., et Tamminen, J. Validation of daily erythemal doses from ozone monitoring Instrument with groundbased UV measurement data. *J. Geophys. Res.*, 112, 2007. doi :10.1029/2007*JD*008830.

Taylor, H. R. Cataracts and ultraviolet light. Dans *Global Atmospheric Change and Public Health*, White, J. C. (éditeur), pages 61–65, New York, 1990. Elsevier Science Publishing.

Taylor, J. *Incertitudes et analyse des erreurs dans les mesures physiques*. Dunod, 2000.

Thuillier, G., Hersé, M., Labs, D., Foujols, T., Peetermans, W., Gillotay, D., Simon, P. C., et Mandel, H. The solar spectral irradiance from 200 to 2400 nm as measured by the SOLSPEC spectrometer from the ATLAS and EURECA missions. *Sol. Phys.*, 214, p. 1–22, 2003.

Torres, O., Bhartia, P.K., Herman, J.R., Ahmad, Z., et Gleason, J. Derivation of aerosol properties from a satellite measurement of backscattered ultraviolet radiation : Theoretical basis. *J. Geophys. Res.*, 103, p. 17099–17110, 1998.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

Torres, O., Bhartia, P.K., Herman, J.R., Sinyuk, A., Ginoux, P., et Holben, B. A long term record of aerosol optical depth from TOMS observations and comparison to AERONET measurements. *J. Atm. Sci.*, 59, p. 398–413, 2002a.

Torres, O., Bhartia, P.K., Sinyuk, A., Welton, E.J., et Holben, B. Total Ozone Mapping Spectrometer measurements of aerosol absorption from space : Comparison to SAFARI 2000 ground-based observations. *J. Geophys. Res.*, 110($D10S18$), 2005. doi : 10.1029/2004$JD004611$.

Torres, O., Decae, R., Veefkind, P., et de Leeuw, G. OMI Aerosol Retrieval Algorithm. Dans *Clouds, Aerosols, and Surface UV Irradiance, ATBD Volume III*, Stamnes, P. (éditeur), pages 47–69, 2002b.

Torres, O., Tanskanen, A., Veihelmann, B., Ahn, C., Braak, R., Bhartia, P. K., Veefkind, P., et Levelt, P. Aerosols and surface UV products from Ozone Monitoring Instrument observations : An overview. *J. Geophys. Res.*, 112($D24S47$), 2007. doi :10.1029/2007$JD008809$.

Troe, J. Are primary quantum yields of NO2 photolysis at lambda <= 398 nm smaller than unity ? *Int. J. Res. in Phys. Chem. and Chem. Phys.*, 5, p. 573–581, 2000.

Tulet, P., Mallet, M., Pont, V., Pelon, J., et Boone, A. The 7 -13 March dust storm over West Africa : Generation, transport, and vertical stratification. *J. Geophys. Res.*, 113($D00C08$), 2008. doi10.1029/2008$JD009871$.

Veefkind, J. P., de Haan, J. F., Brinksma, E. J., Kroon, M., et Levelt, P. F. Total ozone from the ozone monitoring instrument (OMI) using the DOAS technique. *IEEE T. Geosci. Remote*, 44(5), p. 1239–1244, 2006.

Vermeer, M., Schmieder, G. J., Yoshikawa, T., van den Berg, J.W, Metzman, M. S., Taylor, J. R., et Streilein, J. W. Effects of ultraviolet B light on cutaneous immune responses of humans with deeply pigmented skin. *Journal of Investigative Dermatology*, 97, p. 729–734, 1991.

Vogel, B., Vogel, H., Kleffmann, J., et Kurtenbach, R. Measured and simulated vertical profiles of nitrous acid- Part II : Model simulations and indications for a photolytic source. *Atmos. Environ.*, 37, p. 2957–2966, 2003.

Wang, P.C. *Modélisation et mesure du rayonnement solaire ultraviolet*. PhD thesis, Université de Lille1, 1995.

Webb, A. R. et Engelsen, O. Calculated ultraviolet exposure levels for a healthy vitamin D status. *J. Photochem. Photobiol.*, 82(6), p. 1697–1703, 2006.

© 2010 Tous droits réservés. http://doc.univ-lille1.fr

Thèse de Virginie Buchard-Marchant, Lille 1, 2009

WMO. *(World Meteorological Organization), Scientific Assessment of Ozone Depletion :* 1998, *Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No.* 44. Geneva, Switzerland, 1999.

WMO. *(World Meteorological Organization), Scientific Assessment of Ozone Depletion :* 2006, *Global Ozone Research and Monitoring Project-Report No.* 50. Geneva, Switzerland, 2007.

Zerefos, C.S., Balis, D.S., Bais, A.F., Gillotay, D., Simon, P.C., Mayer, B., et Seckmeyer, G. Variability of UV-B at four stations in Europe. *Geophys. Res. Lett.*, 24, p. 1363–1366, 1997.

© 2010 Tous droits réservés.

http://doc.univ-lille1.fr