

par 20 - 2170

50376
1998
273

N° d'ordre: 2411

THESE

présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE

spécialité

LASERS, MOLECULES, RAYONNEMENT ATMOSPHERIQUE

par

Laurent CAZIER



**PREPARATION DE L'ANALYSE DES MESURES AEROSOLS DE L'EXPERIENCE
SATELLITAIRE FUTURE SAGE III.
APPLICATION AUX DONNEES SAGE II: ETABLISSEMENT D'UNE
CLIMATOLOGIE DES CARACTERISTIQUES DES AEROSOLS.**

Soutenance le 4 décembre 1998 devant la commission d'examen

Mme V. E. CACHORRO	Professeur à l'Université de Valladolid	Président du Jury, Rapporteur
M. D. FUSSEN	Directeur de Recherche à l'IASB, Bruxelles	Rapporteur
Mme J. LENOBLE	Professeur Emérite à l'Université de Lille	Examineur
M. J. DEMAISON	Professeur à l'Université de Lille	Examineur
M. C. DEVAUX	Professeur à l'Université du Lille	Examineur
Mme C. BROGNIEZ	Professeur à l'Université de Lille	Directeur de thèse

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

RESUME

Le lancement de l'expérience satellitaire SAGE (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) III est prévu pour septembre 1999. Elle a pour but d'évaluer, entre autres, les coefficients d'extinction des aérosols stratosphériques à huit longueurs d'onde dans le domaine Ultra Violet-proche Infra-Rouge, à partir de mesures obtenues par occultation solaire.

Ce travail décrit deux méthodes d'inversion utilisées pour la détermination des caractéristiques des aérosols (densité de surface, densité de volume, rayon effectif et variance effective) qui sont d'un grand intérêt pour la modélisation du climat et l'étude de la chimie hétérogène. La première technique consiste en une Inversion Linéaire Contrainte (*CLI: Constrained Linear Inversion*) et la seconde se résume à un ajustement effectué sur les mesures d'extinction (*LSFM: Least Squares Fit Method*). Les deux méthodes sont appliquées à des coefficients d'extinction simulés aux longueurs d'onde de SAGE III en vue d'estimer les caractéristiques des aérosols dans le cas de distributions monomodales ou bimodales. Les performances des deux algorithmes ont été comparées à celles d'une autre méthode développée par une équipe américaine de l'université de Raleigh: la technique de recherche de minimisation aléatoire (*RMST: Randomized Minimization Search Technique*).

Les deux méthodes d'inversion sont utilisées pour établir une climatologie des aérosols à partir des données SAGE II. SAGE II fournit les coefficients d'extinction des aérosols à un nombre de longueurs d'onde plus faible que SAGE III depuis environ quinze ans. La CLI et la LSFM sont capables de caractériser raisonnablement les densités de surface, de volume et le rayon effectif des aérosols dans des conditions très variées pré et post-volcaniques. Cependant la détermination de la variance effective reste difficile.

Mot-clés: SAGE II, SAGE III, Stratosphère, Aérosols, Inversion, Extinction, Granulométries, Surface, Volume, Rayon effectif, Variance effective.

ABSTRACT

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III is planned to be launched in september 1999. It will provide stratospheric aerosol extinction coefficients at eight wavelengths in the Ultra Violet-near Infra-Red range from solar occultation measurements.

This work describes and tests two methods used for the retrieval of some aerosol characteristics of great interest for the climate modelling and for the study of heterogeneous chemistry: surface area density, volume density, effective radius and effective variance. The first technique consists in a Constrained Linear Inversion (CLI) and the second relies on a least squares fit on the extinction measurements (LSFM: Least Squares Fit Method). The two methods are applied to simulated extinction measurements at SAGE III wavelengths to investigate the ability of retrieving the aerosol characteristics in case of unimodal or bimodal size distributions. The algorithm performances have been compared with the Randomized Minimization Search Technique (RMST) operated by an american team at the University of Raleigh.

Based on these results, a climatology of the aerosol characteristics is established using the SAGE II measurements. SAGE II provides aerosol extinction at less wavelengths than SAGE III since about fifteen years. The two methods (CLI and LSFM) are able to characterize reasonably aerosol surface area density, volume density and effective radius. Nevertheless the determination of the effective variance is still difficult.

Keywords: SAGE II, SAGE III, Stratosphere, Aerosols, Occultation, Inversion, Extinction, Size distributions, Surface area density, Volume density, Effective radius, Effective variance.

A Sophie,

A mes parents et à Nathalie.

REMERCIEMENTS

Merci, tout d'abord à mon directeur de thèse Madame Colette BROGNIEZ qui m'a encadré durant ces trois années. Elle a tout simplement dynamisé mon travail. J'ai eu plaisir à travailler à ses côtés. Ses nombreuses compétences, sa rigueur ainsi que ses encouragements m'ont été plus que bénéfiques.

Merci à Madame Jacqueline LENOBLE, fondatrice du Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA), pour m'avoir accueilli très tôt dans son équipe et pour la confiance qu'elle m'a témoignée en maintes occasions au cours de ces années. Je lui suis en outre très reconnaissant de faire partie de mon jury.

Merci à Monsieur Pierre PRUVOST pour l'intérêt porté à mes travaux et les efforts qu'il effectue dans l'organisation de simulations d'entretiens d'embauche à l'IUT de Béthune avec des professionnels du recrutement. Chaque année elles sont, entre autres, proposées à tous les doctorants du LOA.

Merci à Messieurs Maurice HERMAN et Yves FOUQUART, directeurs successifs du LOA pour leur accueil.

Merci à Madame Victoria Eugenia CACHORRO, Professeur à l'Université de Valladolid, d'avoir accepté la lourde tâche de rapporteur malgré les efforts supplémentaires que peut constituer la langue française.

Merci également à Monsieur Didier FUSSEN, Directeur de Recherche à l'IASB (Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique, BISA (Belgian Institute for Space Aeronomy)) pour ses précieuses compétences et réflexions pertinentes. J'ai été sensible à tout l'intérêt qu'il a porté dans la lecture de mon manuscrit en tant que rapporteur.

Merci à Monsieur Jean DEMAISON, un de mes anciens professeurs en DEA, d'avoir accepté de juger ce travail.

Merci à Monsieur Claude DEVAUX que j'ai beaucoup sollicité durant ces trois années. Heureusement que mon bureau était situé en face du sien... Je tiens à lui exprimer ma profonde reconnaissance pour son aide sans limites.

Merci à Monsieur John ANDERSON pour son étroite collaboration qui dure depuis plus d'une année et demie ainsi que pour toutes les nombreuses inversions, comparaisons de méthodes effectuées en parallèle...

Merci à Madame Christine DEROO et Monsieur Louis GONZALES pour la gestion du système informatique du LOA.

Merci à tous les amis du bureau 314 qui y ont séjourné (T. BAILLEUL, O. CHOMETTE, F. DRENOU, B. FOUGNIE, M. LECOURT, E. PACHART) ainsi que ceux qui y sont passés (S. CARLIER, H. CHEPFER, I. CHIAPELLO, F. HENNEQUART, A. MARCHAND, T. ELIAS, D. JOLIVET, B. LAFRANCE, D. MASSEROT, J.-M. NICOLAS, G. PERRY, C. PIETRAS, R. RAMANANAHERISOA, D. RAMON) pour leur sympathie et leur amitié.

Merci et pardon à celles et ceux que j'ai pu maladroitement oublier.

SOMMAIRE

Introduction.	p. 11
Chapitre 1: Les expériences satellitaires SAGE II et SAGE III.	p. 21
1.1. L'expérience satellitaire SAGE II.	p. 23
1.2. L'expérience satellitaire SAGE III.	p. 27
Chapitre 2: Les différentes méthodes d'inversion de coefficients d'extinction des aérosols.	p. 31
2.1. Aperçu général.	p. 33
2.2. L'inversion linéaire contrainte (CLI).	p. 38
Chapitre 3: Etude de l'inversion linéaire contrainte.	p. 43
3.1. Coefficients d'extinction simulés à partir des différents modèles granulométriques.	p. 45
3.2. Critère d'Heintzenberg.	p. 49
3.3. Caractéristiques des aérosols (densité de surface, densité de volume, rayon effectif et variance effective).	p. 51
3.4. Critère de performance.	p. 52
3.5. Pour une meilleure utilisation de l'inversion linéaire contrainte.	p. 53

3.6. Inversion aux huit longueurs d'onde de SAGE III à partir de coefficients d'extinction "réels".	p. 68
---	-------

Chapitre 4: Caractérisation des aérosols à partir de mesures simulées pour SAGE III. p. 75

4.1. Inversion à partir des huit longueurs d'onde de SAGE III.	p. 77
4.1.1. Inversion avec sept classes de particules.	p. 77
4.1.1.1. Influence de l'indice de réfraction pour l'inversion linéaire contrainte.	p. 85
4.1.1.2. Comparaison avec la <i>Least Squares Fit Method</i> (LSFM)	p. 86
4.1.1.3. Influence de l'indice de réfraction pour la LSFM.	p. 92
4.1.2. Inversion avec huit classes de particules.	p. 92
4.1.3. Inversion avec six classes de particules.	p. 94
4.2. Inversion à partir de sept longueurs d'onde de SAGE III.	p. 99
Comparaison avec la LSFM.	p. 105
4.3. Inversion à partir des six plus grandes longueurs d'onde de SAGE III.	p. 107
Comparaison avec la LSFM.	p. 111
4.4. Détermination de coefficients d'extinction.	p. 113
4.5. Organigramme de l'inversion linéaire contrainte.	p. 117
4.6. Conclusions.	p. 117

Chapitre 5: Climatologie des caractéristiques des aérosols entre 1984 et 1997 à partir des données SAGE II. p. 123

5.1. Méthodologie.	p. 125
--------------------	--------

5.1.1. Choix des intervalles de temps et des gammes de latitudes.	p. 126
5.1.2. Comparaison des profils isolés des aérosols aux levers et couchers de soleil.	p. 127
5.2. Coefficients d'extinction.	p. 128
5.3. Epaisseur optique.	p. 128
5.4. Climatologie des caractéristiques des aérosols.	p. 133
5.4.1. Etude des régions non polaires.	p. 133
5.4.1.1. Evolution à 20.5 km.	p. 133
5.4.1.2. Evolution au-dessous de 20.5 km.	p. 147
5.4.1.3. Evolution au-dessus de 20.5 km.	p. 153
5.4.2. Les régions polaires.	p. 159
5.4.2.1. Evolution à 20.5 km.	p. 161
5.4.2.2. Evolution au-dessous de 20.5 km.	p. 163
5.4.2.3. Evolution au-dessus de 20.5 km.	p. 168
5.5. Conclusion.	p. 171
Conclusion.	p. 175
Références bibliographiques.	p. 181
Annexe A.	p. 195
Annexe B.	p. 237

INTRODUCTION

2

Aérosol, aérosol, aérosol! Souviens-toi que tu n'es que poussière! Bien qu'objets microniques, les aérosols, particules de poussière liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère, jouent un rôle essentiel dans le fonctionnement climatique du système terrestre. Environ trois milliards de tonnes de particules sont injectées chaque année dans l'atmosphère par des processus naturels (érosion des sols, débris minéraux et végétaux, éruptions volcaniques, bactéries, brumes et embruns océaniques...) ou par les activités humaines (activité industrielle, circulation automobile, feux de brousse...) comme le précise le tableau 0.1 [Peterson et Junge, (1971); SMIC report, (1971); Junge, (1979)]. Si la contribution naturelle est bien supérieure à l'apport anthropique, ce dernier est concentré dans des aires géographiques beaucoup plus restreintes. C'est ainsi que l'ensemble de ces aérosols influence le climat de deux manières différentes [Pollack et al., (1976); Hansen et Lacis, (1990); Kaufman et al., (1991)].

(i) Les aérosols absorbent et diffusent une partie des rayonnements solaire incident et tellurique. Un accroissement de leur concentration produit un refroidissement à la surface. Cet effet s'appelle l'effet direct des aérosols.

(ii) Les aérosols interviennent dans la formation des nuages en se comportant en noyaux de condensation et influencent leur durée de vie et leurs propriétés physiques et optiques. Cela correspond à l'effet indirect des aérosols qui se manifeste également par un refroidissement global du système climatique.

Par ces deux effets, les aérosols affectent de façon significative le bilan radiatif terrestre et leur influence climatique propre justifie alors leur étude.

L'état d'"aérosol" est en fait un état intermédiaire entre l'état particulaire constitué de grosses particules, pour lequel sont valables les notions macroscopiques classiques de densité, de tension de vapeur, d'état de surface etc..., et l'état moléculaire qui, lui, obéit à la théorie cinétique des gaz et aux lois de la mécanique statistique. Il est primordial de connaître l'effet des aérosols pour la modélisation du climat et l'étude de la chimie hétérogène. L'aérosol volcanique peut par exemple diminuer jusqu'à 4% l'ultra-violet arrivant au sol [Wang, (1994)]. Outre leur impact climatique, les aérosols sont à l'origine

d'effets perturbateurs en télédétection en particulier pour les images satellites. Par ailleurs l'étendue du spectre granulométrique de l'aérosol atmosphérique est élevée dans la mesure où celui-ci va de quelques 10^{-4} μm à 100 μm . Un tel intervalle entraîne, non seulement des variations considérables des propriétés physiques de l'aérosol, mais aussi des changements très importants des lois auxquelles il obéit. Ainsi la théorie de Mie est appliquée pour les petits aérosols. Les plus gros obéissent également à cette théorie, mais il est plus rapide d'utiliser les lois de l'optique géométrique. L'étendue du spectre rend difficile l'étude de ces particules car il n'est pas possible de les mesurer dans leur totalité avec un seul appareil. Du point de vue radiatif, les aérosols les plus importants sont ceux dont la taille est comprise entre 0.1 et 1.0 μm . Les autres dont la taille est inférieure à 0.1 μm ou supérieure à 1.0 μm n'ont qu'une influence très faible [Lenoble, (1993)].

	Sources Naturelles	Sources Anthropiques
<u>Production directe</u>		
poussières éoliennes	300	
sels de mer	1000	
autres (volcans, feux, etc...)	3-150	
sous-total	1500-1650	10-133
<u>Production indirecte</u>		
conversion gaz-particules (sulfates, nitrates, hydrocarbures)	300-1100	175-325
total	1800-2750	185-458

Tableau 0.1. Estimations de la production globale de particules d'origine naturelle et anthropique (10^6 T. an⁻¹) [Peterson et Junge (1971), SMIC report (1971), Junge (1979)].

Les aérosols sont répartis en deux classes en fonction de leur altitude: (i) les aérosols troposphériques et les (ii) aérosols stratosphériques (voir figure 0.1). La concentration des premiers est très variable dans le temps et également d'un endroit à un autre. En raison de cette forte variabilité, la prise en compte dans les modèles de leur impact climatique et météorologique est rendue très difficile. En général, en dehors des périodes post-volcaniques, la quasi totalité des aérosols est de nature troposphérique avec une forte concentration entre 0 et 2 km dans la couche limite terrestre. Les aérosols stratosphériques, quant à eux, sont généralement constitués de particules d'acide sulfurique de plus petite dimension que les aérosols troposphériques.

Dans la nature, on trouve des aérosols de tailles différentes en un même lieu, réparties suivant une distribution appelée granulométrie. Il est alors nécessaire de quantifier convenablement la composition chimique des aérosols (qui détermine l'indice de réfraction), la forme et la distribution granulométrique afin d'étudier de façon précise les propriétés microphysiques de l'aérosol atmosphérique.

On distingue en général trois modes spécifiques:

- le premier correspond ainsi à des noyaux transitoires ou noyaux d'Aitken (de rayon inférieur à $0.05 \mu\text{m}$). C'est le mode fin (*nucleation mode*).
- le deuxième s'identifie à des particules fines ou agglomérats (de rayon compris entre 0.05 et $1 \mu\text{m}$). C'est le mode d'accumulation (*accumulation mode*).
- le troisième correspond enfin aux plus grosses particules (de rayon supérieur à $1 \mu\text{m}$). C'est le mode gros (*coarse mode*).

Chacun de ces modes correspond à un maximum relatif de la distribution en taille des aérosols atmosphériques. Les deux premiers modes constituent le groupe des particules fines. La figure 0.2 [Madelaine, (1982)] résume les propriétés moyennes de ces trois modes. Pour des particules dont le rayon est supérieur à $0.1 \mu\text{m}$, on peut

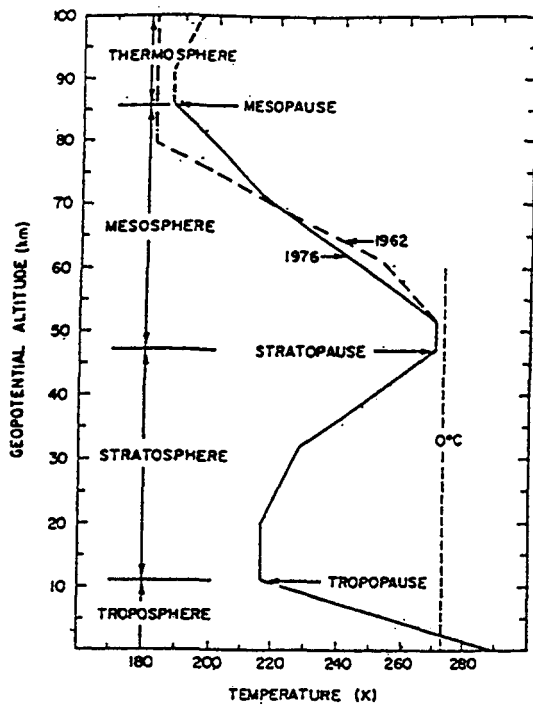


figure 0.1. Temperature-height profile for U.S. Standard Atmosphere 0-86 km. (d'après le *Handbook of Geophysics and the Space Environment Scientific Editor, Chapter 14, Adolph S. Jursa, Air Force Geophysics Laboratory, Air Force Systems Command, United States Air Force, 1985*).

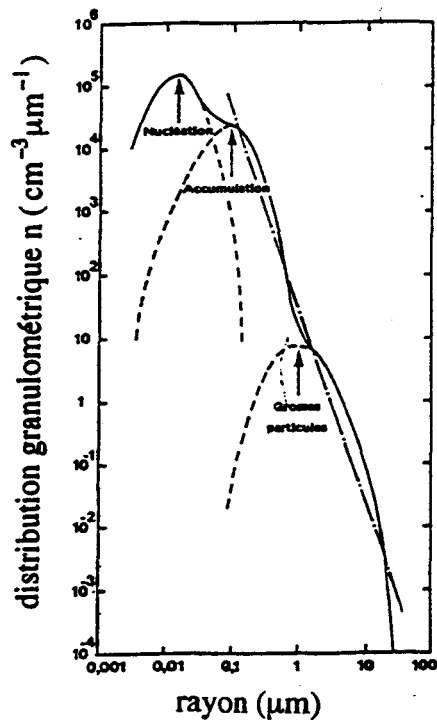


figure 0.2. Les trois modes spécifiques des aérosols atmosphériques [Madelaine, (1982)].

utiliser, entre autres, comme distribution granulométrique la distribution de Junge [Junge, (1955)] (éq. 0.1) définie par un seul paramètre ν généralement voisin de 3.

$$n(r) = C \cdot r^{-(\nu+1)} \quad (0.1)$$

où $n(r)$ est le nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris entre r et $r+dr$ et C est une constante de normalisation.

L'impact sur le champ radiatif de variations des aérosols stratosphériques se manifeste dans le rayonnement rétrodiffusé vers l'espace, dans le rayonnement atteignant les couches troposphériques et le sol, et enfin dans le bilan radiatif au niveau même de l'atmosphère moyenne. Par exemple, une augmentation de la quantité de ces aérosols, comme elle se produit après une forte éruption volcanique, modifie de façon considérable l'albédo planétaire. Etant donné la distribution globale et la longue durée de vie de ces aérosols volcaniques, un impact climatique important est prévisible. La connaissance des caractéristiques des aérosols est alors primordiale pour le développement de modèles chimiques, dynamiques et de forçage radiatif afin d'évaluer les effets des aérosols sur les perturbations climatiques à plus grande échéance et sur la diminution de la quantité d'ozone. En effet la présence de ces aérosols dans la stratosphère conduit à la formation de nuages stratosphériques polaires (*Polar Stratospheric Clouds*, PSC) [Poole et McCormick, (1988)] qui occupent un rôle majeur dans la destruction de l'ozone.

L'étude de la stratosphère occupe une place relativement grande au Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA), tout d'abord pour des raisons historiques puisque la participation du LOA à l'expérience SAGE (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) date de la fin des années 1970 et ensuite en raison de la priorité accordée par les agences nationales et internationales aux recherches sur la destruction de l'ozone depuis un peu plus d'une dizaine d'années. L'effort porte essentiellement sur les processus de destruction de l'ozone qui font intervenir les interactions rayonnement-chimie-

dynamique. Dans ce contexte, quantité de travaux sur les aérosols stratosphériques, tant sur leur télédétection que sur la modélisation de leurs effets, ont déjà été effectués. Ils s'appuient au plan de l'observation sur des ballons stratosphériques et des avions instrumentés ainsi que sur des expériences satellitaires. La combinaison de ces moyens d'observation est indispensable pour étudier tous les processus complexes agissant dans la stratosphère. Le sujet n'en est pas pour autant éteint et présente au contraire d'énormes besoins d'affinement et d'extension des études antérieures. Tous ces travaux font clairement apparaître le rôle majeur du satellite pour ces observations à grande échelle du système terre-atmosphère et l'intérêt d'une meilleure détermination des paramètres qui décrivent notre environnement.

Cette thèse s'inscrit d'une part dans la participation à la validation d'algorithmes développés par des équipes scientifiques collaborant avec la NASA et d'autre part dans le cadre du programme européen "*Environment & Climate*" ainsi que dans les demandes du CEPMMT (Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme) de Reading (Grande-Bretagne). Elle aura notamment pour objectif l'analyse de l'extinction des aérosols retrouvée dans quatre canaux de l'expérience satellitaire SAGE II. Les caractéristiques microphysiques des aérosols que sont la surface, le volume, le rayon effectif et la variance effective seront déterminées avec l'aide de deux techniques d'inversion de mesures multispectrales d'extinction: une méthode linéaire contrainte (CLI: *Constrained Linear Inversion*) [Twomey, (1963; 1965; 1977); King et al., (1978), King, (1982)] et une méthode se résumant à un ajustement effectué sur les données d'extinction (LSFM: *Least Squares Fit Method*) [Brogniez et Lenoble, (1988)]. Une climatologie de ces caractéristiques sera ainsi développée à partir des données SAGE II pour la période 1984-1997. Par ailleurs une nouvelle expérience satellitaire SAGE III est prévue pour l'été 1999. Elle comportera des améliorations par rapport à son prédécesseur SAGE II avec notamment quatre canaux aérosols supplémentaires. A partir de mesures simulées cette fois-ci aux longueurs d'onde de SAGE III seront déterminées l'ensemble des caractéristiques des aérosols définies ci-dessus ainsi que l'extinction des aérosols aux

canaux 0.600 μm et 0.940 μm destinés respectivement à la détermination de l'ozone et de la vapeur d'eau. L'extinction des aérosols sera également déterminée aux longueurs d'onde de l'infra-rouge des expériences LPMA (*Limb Profile Monitor of the Atmosphere*) et ILAS (*Improved Limb Atmospheric Spectrometer*) [Mukai et al., (1994)]. Cela permettra de tester la fiabilité de la CLI avec des mesures effectuées par ces deux expériences. La CLI et la LSFM seront par la même occasion comparées à une technique de recherche de minimisation aléatoire (RMST: *Randomized Minimization Search Technique*) [Heintzenberg et al., (1981)], développée par Saxena du *Department of Marine, Earth and Atmospheric Sciences, North Carolina State University, Raleigh, NC USA* [Lin et Saxena, (1992); Saxena et al., (1995); Anderson et Saxena (1996a)].

Le premier chapitre présentera les expériences satellitaires SAGE II et SAGE III, le deuxième abordera les différentes méthodes d'inversion. L'inversion linéaire contrainte (CLI) sera présentée dans le troisième chapitre. La quatrième section proposera une caractérisation des aérosols à partir de mesures simulées pour SAGE III. Enfin une climatologie des caractéristiques (surface, volume, rayon effectif et variance effective) des aérosols sera développée dans le cinquième chapitre.

**CHAPITRE 1: LES EXPERIENCES
SATELLITAIRES SAGE II ET SAGE III**

Durant ces trente dernières années, de nombreux efforts ont été réalisés afin de caractériser les aérosols stratosphériques. Différentes techniques sont désormais bien adaptées à ce type de recherche telles les sondages lidar [Russell et Hake Jr., (1977); Russell et al., (1993)], les compteurs optiques de particules [Pinnick et al., (1976); Rosen et Hofmann, (1983, 1986); Deshler et al., (1993)], les impacteurs à cascade [Oberbeck et al., (1989); Goodman et al., (1994)]. Parfois une combinaison de ces techniques peut être envisagée. Les aérosols et nuages stratosphériques peuvent également être étudiés par des expériences ballon par exemple à l'aide d'un radiopolarimètre comme RADIBAL (RADIomètre BALlon) [Herman et al., (1986); Santer et al., (1988); Brogniez et al., (1992)]. Deux instruments BALLAD (BALloon Limb Aerosol Detection) et BOCCAD (Balloon OCCultation for Aerosol Detection) [Ramon, (1995)] complètent le radiomètre RADIBAL au LOA depuis respectivement 1993 et 1994. Enfin l'avènement de la technologie spatiale a permis une observation globale et permanente de la stratosphère depuis la fin des années 1970 grâce aux instruments d'occultation solaire. En plus des instruments SAM (*Stratospheric Aerosol Measurement*), SAM II, SAGE, SAGE II, les expériences POAM (*Polar Ozone and Aerosol Measurement*) [Randall et al., (1996)] et ILAS [Mukai et al., (1994)] permettent également la détermination de profils d'aérosols stratosphériques et d'ozone.

1.1. L'expérience satellitaire SAGE II.

L'étude de notre environnement planétaire, au cours des dernières décennies, a été marquée par l'apparition d'un outil de compréhension, d'analyse, et, dans certains cas, de prévision, entièrement nouveau: l'observation satellitaire. Ce moyen est le plus en pointe actuellement et permet une couverture des phénomènes avec une bonne répétitivité. En coïncidence avec l'apparition de la modélisation numérique, il favorise une meilleure caractérisation des effets des aérosols du point de vue radiatif.

L'expérience satellitaire SAGE (*Stratospheric Aerosol and Gas Experiment*) II possède un radiomètre solaire à plusieurs canaux spectraux à bord du satellite ERBS (*Earth Radiation Budget Satellite*) lancé en octobre 1984 sur une orbite inclinée à 57°, à 610 km d'altitude [Mauldin et al., (1985); McCormick, (1987)]. Cet instrument conçu pour analyser les différents constituants de la stratosphère (ozone O₃, dioxyde d'azote NO₂, vapeur d'eau H₂O et aérosols) par occultation solaire a succédé ainsi à SAM II (*Stratospheric Aerosol Measurement II*) embarqué sur NIMBUS 7 en 1978 et à SAGE I en 1979. Le radiomètre effectue donc des mesures de transmissions aux levers et couchers (15*2 pour SAGE II par jour) de soleil pour différentes hauteurs tangentielles h. Une vue schématique de la géométrie d'observation est donnée dans la figure 1.1. Les transmissions sont ainsi obtenues lorsque les rayons du soleil ayant traversé l'atmosphère atteignent le satellite. L'atténuation du rayonnement correspond à trois phénomènes: (i) l'absorption par les constituants gazeux, (ii) la diffusion par les molécules de l'air ou diffusion Rayleigh, (iii) la diffusion par les aérosols dont l'absorption est faible dans le visible. SAGE II est muni de sept canaux spectraux à bande étroite couvrant un domaine de longueurs d'onde allant du visible au proche infrarouge (de 0.385 µm à 1.02 µm) (tableau 1.1). Les canaux 0.600 et 0.940 µm sont respectivement destinés à déterminer les concentrations de O₃ et H₂O, après correction de la contribution des aérosols. NO₂ est obtenu différentiellement à partir des canaux 0.448 et 0.453 µm. Les quatre autres canaux 0.385, 0.453, 0.525, 1.020 µm servent particulièrement à fournir des informations sur les aérosols.

Les profils de transmission sont inversés en plusieurs étapes pour obtenir l'extinction en fonction de l'altitude. En premier lieu le LaRC (*Langley Research Center*) [Chu et al., (1989)] fournit les transmissions des sept canaux:

$$t_{\lambda}(h) = \exp[-\int \beta_{\lambda}(z) \cdot d\rho_{\lambda}(z, h)] \quad (1.1.1)$$

où t_λ représente la transmission à la longueur d'onde λ , β_λ est le coefficient total d'extinction et ρ_λ le chemin optique du rayonnement solaire toujours pour la longueur d'onde λ . Pour les sept canaux de SAGE II, le coefficient total d'extinction β_λ à l'altitude z est la somme des coefficients d'extinction des différents constituants. Les transmissions sont corrigées de la diffusion Rayleigh calculée à partir des données météorologiques. Dans chaque canal, les différents constituants sont séparés. L'inversion spatiale fournit les profils verticaux de coefficients d'extinction [Chu et al., (1989)]. Par ailleurs la mesure d'extinction à 1.020 μm peut également permettre de détecter la présence de nuages dans la haute troposphère [Woodbury et McCormick, (1986)].

Longueur d'onde (nm)	Espèces
385	Aérosol
448	NO ₂ , Aérosol
453	Aérosol
525	Aérosol
600	O ₃ , Aérosol
940	H ₂ O
1020	Aérosol

Tableau 1.1. Canaux et produits de SAGE II [d'après Chu et al., (1989)].

Les figures 1.2 et 1.3 illustrent respectivement la localisation des mesures de SAGE II sur une année et la position des événements du mois de juillet 1991. Toutes deux confirment la localisation inhomogène de ces événements. Ainsi apparaît un maximum de données pour des latitudes comprises entre 40 et 70° de chaque hémisphère et un minimum à l'approche de l'équateur. La mise en route de l'expérience satellitaire SAGE II a permis une meilleure connaissance de la stratosphère. Pour l'une des premières fois, la communauté des utilisateurs a pu et peut encore obtenir, sur une base

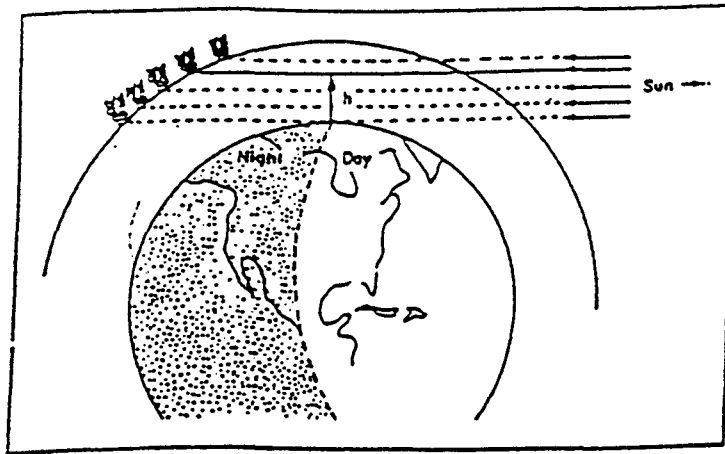


figure 1.1. ERBS/SAGE II occultation solaire.

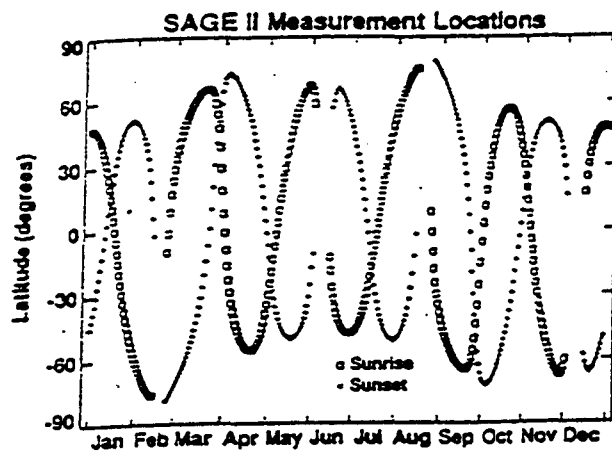


figure 1.2. Localisation des mesures.

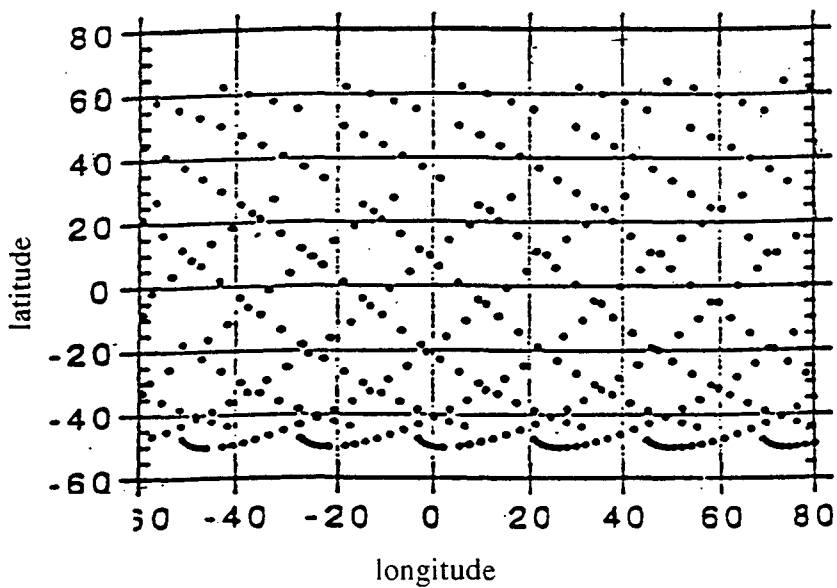


figure 1.3. Position des événements du mois de juillet 1991.

opérationnelle régulière, une grande répétitivité d'accès sur une zone quelconque du globe hormis les pôles.

Depuis le début des années 1980, le LOA participe activement à l'expérience SAGE II de la NASA. Ayant pris part à l'élaboration de l'algorithme d'inversion ainsi qu'aux campagnes de validation le LOA a ainsi accès à l'ensemble de 14 années de mesures.

1.2. L'expérience satellitaire SAGE III.

L'expérience satellitaire SAGE III, compromis entre les souhaits de performances et les possibilités technologiques, fait partie d'une série permettant la mesure de l'atténuation solaire lors de la traversée des couches atmosphériques. Elle est une version améliorée de son prédécesseur SAGE II qui est une totale réussite dans la mesure où ce dernier est toujours opérationnel et fournit encore des données. SAGE III dont le lancement était prévu en août 1998, sera finalement lancé au cours de l'été 1999 sur le satellite Meteor-3M en orbite polaire. D'autres vols sont ensuite prévus à l'aube du 21^{ème} siècle. L'instrument SAGE III couvrira une gamme de longueurs d'onde allant de 0.290 à 1.550 μm (tableau 1.2). Doté d'un ensemble de détecteurs CCD et d'une photodiode à 1.550 μm , il permettra de déterminer:

(i) les coefficients d'absorption des gaz O_3 , O_2 , NO_2 et H_2O qui fourniront les abondances de ces espèces. Le canal 0.290 μm destiné à étendre le profil d'ozone aux hautes altitudes sera une des nouveautés. L'ajout d'un canal spectral dans la bande de l'oxygène (759-771 nm) avec une résolution de l'ordre de 1 nm est également prévu afin de fournir directement les profils de densité [Wang et al., (1996)]. Par ailleurs le double canal NO_2 et le canal vapeur d'eau qui étaient présents sur SAGE II seront remplacés par des canaux spectraux (433-450 nm) et (920-960 nm) avec respectivement une résolution

de l'ordre de 1 nm et de 2 nm. Une grande nouveauté sera l'observation des occultations lunaires avec un canal (380-420 nm) pour le dioxyde de chlore OCIO et un canal (640-680 nm) pour le trioxyde d'azote NO₃ [Wang et al., (1996)].

(ii) les coefficients d'extinction des aérosols à 0.385, 0.450, 0.521, 0.676, 0.756, 0.869, 1.0195 et 1.550 µm avec une résolution verticale de 0.5 km. Ces huit canaux ont été choisis en dehors des bandes d'absorption les plus intenses des constituants gazeux de l'atmosphère. L'ajout du canal 1.550 µm est en fait destiné à obtenir davantage d'informations sur les gros aérosols. La faible diffusion Rayleigh ainsi qu'une absorption par les différents gaz de la stratosphère peu prononcée laissent présager de faibles erreurs (10%, voire moins) sur les mesures d'extinction des aérosols aux canaux 1.0195 et 1.550 µm. Comme par exemple l'illustre la figure 1.4, aux courtes longueurs d'onde de SAGE II, l'incertitude sur le coefficient d'extinction est deux fois plus importante qu'à 1.020 µm quelle que soit l'altitude, tout ceci indépendamment de la latitude et de la longitude choisies.

Longueur d'onde (nm)	Espèces
290	O ₃
385	Aérosol
433-450	NO ₂ , Aérosol
521	Aérosol
560-616	O ₃ , Aérosol
676	Aérosol
756	Aérosol
759-771	O ₂
869	Aérosol
920-960	H ₂ O
1019.5	Aérosol
1550	Aérosol

Tableau 1.2. Canaux et produits de SAGE III [d'après Abrams et al., (1996)].

Pour déterminer les caractéristiques des aérosols (surface, volume, rayon effectif et variance effective) il est nécessaire de procéder à l'inversion des mesures, à savoir des coefficients d'extinction. Le chapitre suivant présente à cet effet les différentes méthodes d'inversion.

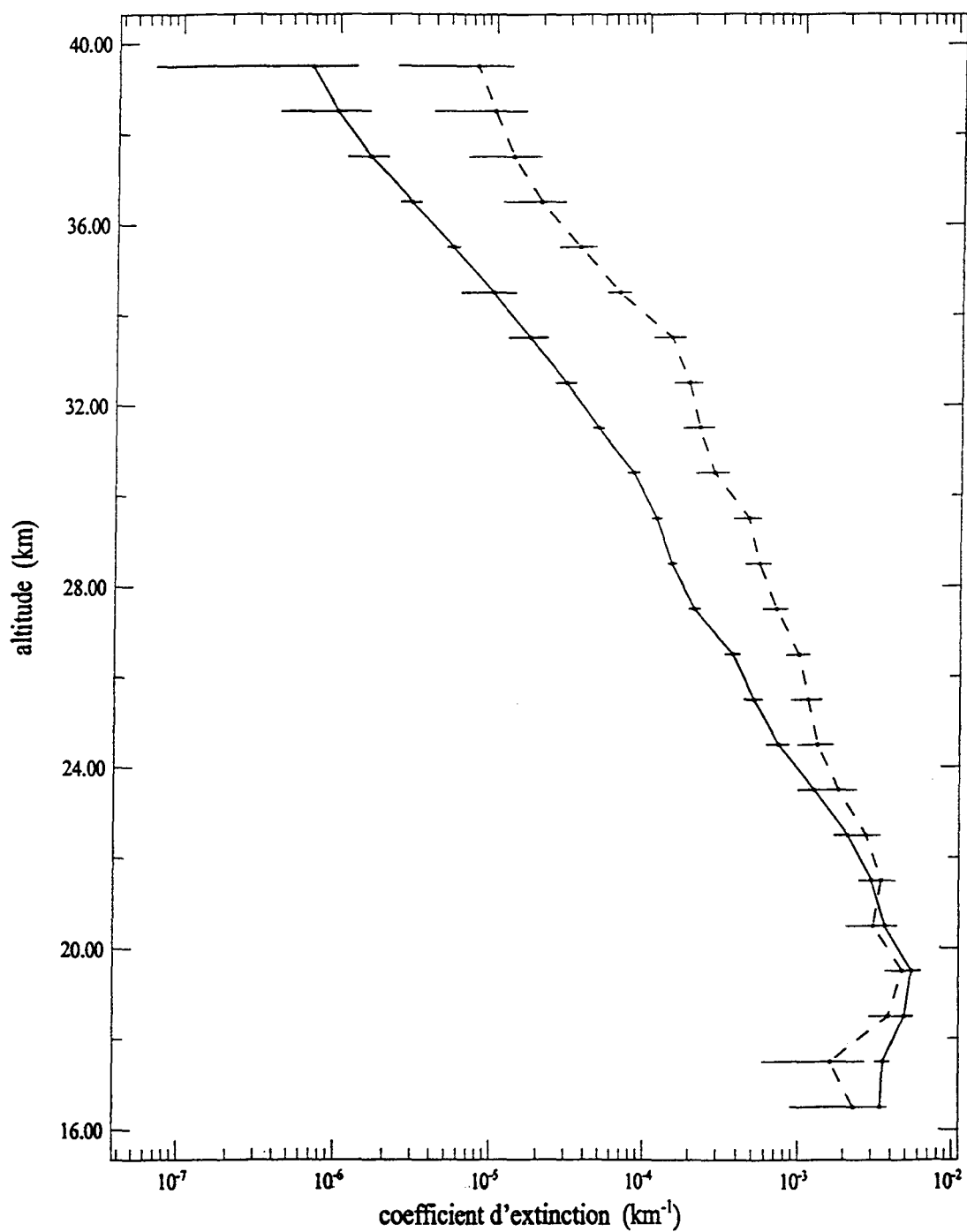


figure 1.4. (---) courbe (a): coefficients d'extinction (km^{-1}) à $0.385 \mu\text{m}$ ainsi que les incertitudes correspondantes pour la journée du 29 juin 1993 (latitude: 3°N , longitude: 24°E).

(—) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais à $1.020 \mu\text{m}$.

**CHAPITRE 2: LES DIFFERENTS METHODES
D'INVERSION DE COEFFICIENTS
D'EXTINCTION DES AEROSOLS**

2.1. Aperçu général.

Les aérosols stratosphériques sont généralement considérés comme des particules liquides sphériques (hypothèse admise dans la plupart des interprétations quantitatives des mesures de rayonnement) de rayon r (en μm) [Steele et Hamill, (1981); Thomason et Osborn, (1992); Jorge et Ogren, (1996)]. Le coefficient d'extinction β_λ (éq. 2.1.1) (qu'on exprimera en km^{-1}), fonction de la longueur d'onde λ , peut être défini pour des particules sphériques et homogènes par

$$\beta_\lambda = \int_0^\infty \pi \cdot r^2 \cdot Q_{\text{ext}}(m, r, \lambda) \cdot n(r) \cdot dr. \quad (2.1.1)$$

$Q_{\text{ext}}(m, r, \lambda)$ est le facteur d'extinction [Bohren et Huffman, (1983)] de la théorie électromagnétique de Mie [Stratton, (1941)], présentée d'une façon plus simple par van de Hulst, (1981). β_λ traduit en fait les interactions entre les particules et le rayonnement (par diffusion ou par absorption) au cours de la traversée de l'atmosphère et est caractéristique de la concentration en particules. m (éq. 2.1.2) est l'indice complexe de réfraction des aérosols.

$$m = m_r - i \cdot m_i \quad (2.1.2)$$

La partie réelle m_r fixe la vitesse de propagation de la lumière dans le milieu alors que la partie imaginaire m_i est reliée à l'absorption du matériau constitutif de l'aérosol. L'équation (2.1.1) est un exemple d'équation de Fredholm (en raison des limites de l'intégrale non variables) [Yamamoto et Tanaka, (1969)] et de première espèce (dans la mesure où $n(r)$ apparaît uniquement dans l'intégrant).

L'inversion de l'équation (2.1.1), pour la détermination de la distribution granulométrique $n(r)$ à partir de coefficients d'extinction β_λ , est un problème classique.

De nombreuses techniques d'inversion ont été employées [Deepak, (1977); Twomey, (1977)], étant soit itératives [Grassl, (1971); Heintzenberg et al., (1981); Trakhovsky et al., (1982)], soit analytiques [Box et McKellar, (1978); Perelman et Shiffrin, (1980)]. Une autre méthode également analytique repose sur l'ajustement analytique des paramètres inconnus d'une granulométrie [Box et Lo., (1976)] telle que la distribution de Junge [Junge, (1955)] (éq. 0.1). D'autres démarches s'appuient sur des fonctions poids [Capps et al., (1982)], une théorie de fonction singulière [Vieira et Box, (1987)] ou propre [Box et al., (1992)], des fonctions orthogonales empiriques [Ben-David et al., (1988)] ou encore sur l'introduction d'une inversion linéaire contrainte [Twomey, (1963); Yamamoto et Tanaka, (1969), King et al., (1978), King, (1982)]. D'autres techniques toutes aussi populaires incluent une méthode itérative non linéaire développée par Chahine (1968) et employée par Twomey (1975). L'ensemble de ces méthodes rencontre des difficultés relatives à:

(i) la non garantie de l'existence de solutions [Vieira et Box, (1987)] (en effet les différentes techniques d'inversion sont jugées sur leur capacité à restituer convenablement les coefficients d'extinction. Ainsi s'il existe une erreur importante sur l'extinction et si on a ainsi un jeu de données d'extinction totalement incohérent, il est possible que l'équation (2.1.1) n'admette pas de solution.),

(ii) la non-unicité des solutions quand celles-ci existent [Shaw, (1979); King, (1982), Vieira et Box, (1987)] (en effet une solution unique existe pour le problème direct, à savoir la détermination des extinctions à partir d'une distribution granulométrique. Par contre, pour l'inversion il peut se produire que plusieurs granulométries fournissent une restitution correcte des coefficients d'extinction.),

(iii) la non garantie de solutions toutes positives (en effet il peut arriver que les méthodes d'inversion fournissent des valeurs de distributions granulométriques négatives, solutions physiquement incorrectes. Pour éviter ce problème on ajoute une contrainte imposant que la solution doit être positive [King, (1982)].).

Dans le cadre de l'expérience satellitaire SAGE II, différents algorithmes d'inversion ont été appliqués aux différents canaux aérosols.

Ainsi Yue et al., (1986) ont supposé une distribution granulométrique de type lognormale, déjà choisie par d'autres auteurs [Hatch et Choate, (1929); Davies (1974); Lacis et Mishchenko (1995)], et ont utilisé les coefficients d'extinction à 0.385, 0.525 et 1.02 μm , trois des canaux aérosols de SAGE II, afin de déterminer les trois paramètres d'une distribution monomodale, c'est-à-dire caractérisée par un seul mode. La plus couramment utilisée avec la distribution de Junge (éq. 0.1), elle permet de décrire de manière adéquate des distributions qui s'étalent sur plusieurs ordres de grandeur de taille. Elle est déterminée (éq. 2.1.3) par le choix de trois paramètres:

(i) le rayon moyen r_m (en μm) défini de telle sorte que $\left(\frac{dN(r)}{dr}\right)_{r=r_m} = 0$,

(ii) la largeur de distribution s ou $\ln s$,

(iii) le rapport $\frac{N_0}{\ln s}$, (N_0 et $\ln s$ étant couplés).

$$n(r) = \frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_0}{r \cdot \ln s \cdot \sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left| -\frac{\ln(r/r_m)^2}{2 \cdot \ln^2 s} \right| \quad (2.1.3)$$

où $n(r)$ est le nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris entre r et $r+dr$ et N_0 est la concentration en aérosols (en cm^{-3}). Ces modèles de type LND (Log-Normal Distribution) sont très utilisés pour décrire les aérosols stratosphériques.

Par ailleurs Brogniez et Lenoble (1988) ont pu déterminer les deux paramètres (rayon effectif r_{eff} et variance effective v_{eff}) de distributions monomodales, reliés à r_m et s , d'après l'analyse de l'ensemble des mesures d'extinction de SAGE II. Le rayon effectif est une estimation du rayon moyen de la distribution granulométrique; la variance effective est une mesure de la largeur de la distribution monomodale et peut donner des informations sur la dispersion des rayons pour une distribution multimodale. Rayon effectif et variance effective sont définis en général par:

$$r_{\text{eff}} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 \cdot n(r) \cdot dr}{\int_0^{\infty} r^2 \cdot n(r) \cdot dr} \quad (2.1.4)$$

$$v_{\text{eff}} = \frac{\int_0^{\infty} (r - r_{\text{eff}})^2 \cdot r^2 \cdot n(r) \cdot dr}{r_{\text{eff}}^2 \cdot \int_0^{\infty} r^2 \cdot n(r) \cdot dr} \quad (2.1.5)$$

Hansen et Travis (1974) avaient introduit la notion d'équivalence entre lois de distribution. L'équivalence était réalisée si ces distributions granulométriques, qui se différenciaient par leur forme, correspondaient à deux paramètres géométriques identiques: le rayon effectif r_{eff} et la variance effective v_{eff} . Le rayon effectif et la variance effective sont plus représentatifs des propriétés diffusantes des particules que le rayon géométrique moyen et la largeur de distribution s de la loi lognormale. Hansen et Travis (1974) ont alors déduit les relations entre le couple $(r_{\text{eff}}, v_{\text{eff}})$ et les deux paramètres de la granulométrie de type LND (r_m, s) :

$$r_{\text{eff}} = r_m \cdot \exp[(5/2) \cdot \ln^2 s] \quad (2.1.6)$$

$$v_{\text{eff}} = \exp[\ln^2 s] - 1. \quad (2.1.7)$$

Wang et al., (1989), à partir des quatre longueurs d'onde de SAGE II relatives aux aérosols, ont utilisé une méthode de moindres carrés afin de retrouver les paramètres granulométriques de distributions lognormales ou gamma modifiées. La loi gamma modifiée [Deirmendjian (1964); Chylek et al., (1992)] permet de décrire un nombre assez considérable de granulométries en raison d'un nombre important de paramètres. Elle est définie par

$$n(r) = C \cdot r^\alpha \cdot \exp[-\beta \cdot r^\gamma] \quad (2.1.8)$$

où α , β et γ sont des paramètres que l'on ajuste et C une constante de normalisation.

C'est à partir de relations empiriques entre les mesures d'extinction à 0.525, 0.940 et 1.02 μm , que Thomason (1991) rechercha une paramétrisation granulométrique capable de permettre la restitution d'une valeur correcte de la composante en vapeur d'eau à 0.940 μm et de montrer que les mesures SAGE II d'aérosols stratosphériques avant l'éruption du Pinatubo en 1991 pouvaient être représentées par des granulométries de type Junge

$$n(r) = A. \left(\frac{r}{r_c}\right)^{-p} \quad r \leq r_c \quad (2.1.9.a)$$

$$n(r) = A. \left(\frac{r}{r_c}\right)^{-b} \quad r \geq r_c \quad (2.1.9.b)$$

où r_c est le rayon critique (en μm) et p et b sont des constantes définies de telle sorte que $p < b$.

En outre, Livingston et Russell (1989) ont décrit une technique analytique n'ayant aucun a priori sur la granulométrie et ont déterminé, toujours à partir des spectres d'extinction de SAGE II, les différents moments (jusqu'à l'ordre trois) de la distribution granulométrique définis par

$$M_k = \int_0^{\infty} r^k . n(r) . dr. \quad (2.1.10)$$

La normalisation de $n(r)$ imposant

$$M_0 = 1. \quad (2.1.11)$$

Thomason et Poole (1993) ont utilisé une méthode similaire pour une analyse des processus du vortex antarctique à partir des propriétés d'aérosols stratosphériques.

Lin et Saxena (1992) ont utilisé une technique de recherche de minimisation aléatoire (RMST) pour représenter la granulométrie sous forme d'histogramme d'après les données d'extinction de SAGE II et ont ainsi pu déterminer les moments et autres propriétés intégrales des aérosols. Diverses applications ont été effectuées d'après cette méthode telles que la détermination des caractéristiques des aérosols de la stratosphère au-dessus de l'Antarctique pendant la chute brutale de l'ozone en 1987 [Lin et Saxena (1992)] ou encore la représentation des différentes modifications des caractéristiques de l'aérosol stratosphérique dues à l'éruption du Pinatubo dans des gammes de longitude 105-135° E [Lin et Saxena (1997)]. Dans une approche différente, Yue et al., (1997) ont utilisé avec succès la méthode RMST pour retrouver les propriétés optiques des aérosols à partir des moments de distribution granulométrique.

2.2. L'inversion linéaire contrainte (CLI).

Cette partie présente l'inversion linéaire contrainte (CLI) [Twomey, (1963; 1965; 1977); Yamamoto et Tanaka, (1969); King et al., (1978); King, (1982); Spinhirne et King (1985); Russell et al., (1993); Jorge (1996); Steele et Turco, (1997)] déjà utilisée efficacement au LOA par Vermeulen (1996) pour la caractérisation des aérosols à partir de mesures effectuées au sol. Elle est également employée pour extraire la composante aérosol des mesures de l'extinction dans l'algorithme d'inversion de SAGE II [Chu et al., (1989)]. La contrainte [Rodgers, (1976)] est rendue nécessaire dans la mesure où si $n(r)$ est déterminée par une méthode d'inversion directe voire de moindres carrés, de faibles erreurs de mesures pourront être amplifiées dans la solution en raison de l'interdépendance [Heintzenberg et al., (1981)] des sections efficaces d'extinction $K(m, r, \lambda)$ (voir section 3.2.) définies par

$$K(m, r, \lambda) = \pi \cdot r^2 \cdot Q_{\text{ext}}(m, r, \lambda) \quad (2.2.1)$$

Les distributions granulométriques $n(r)$ obtenues à partir de mesures spectrales de coefficients d'extinction des aérosols ou à partir de données simulées β_λ (éq. 2.1.1) varient rapidement avec r . King et al., (1978) ont substitué à $n(r)$ le produit de deux fonctions $h(r)$ et $f(r)$ où $h(r)$ est une fonction poids de type loi de Junge variant rapidement avec r (éq. 0.1). Même si dans la stratosphère il n'existe pas de distribution granulométrique type loi de Junge, la fonction poids de ce genre n'a juste pour effet que de rendre à peu près constante la fonction $f(r)$ [King et al., (1978)]. L'inversion s'effectue alors en déterminant la fonction plus lente $f(r)$.

L'équation (2.1.1) s'écrit alors avec l'aide de (2.2.1)

$$\beta_\lambda = \int_0^\infty K(m, r, \lambda)h(r).f(r).dr \quad (2.2.2)$$

$$\beta_\lambda = \sum_{j=1}^q \int_{r_j}^{r_{j+1}} K(m, r, \lambda)h(r).f(r).dr \quad (2.2.3)$$

où les limites de l'intégration sont finies avec $r_1 = r_{\min}$ et $r_{q+1} = r_{\max}$, l'intervalle $[r_{\min}, r_{\max}]$ étant divisé en un ensemble de q intervalles $[r_j, r_{j+1}]$ à l'intérieur desquels la composante du vecteur solution f est pratiquement constante. Il est nécessaire de réécrire l'ensemble des équations (2.2.3) obtenues pour chaque longueur d'onde dans le but de déterminer $n(r)$. Si $f(r)$ est supposée constante dans chaque intervalle nous pouvons écrire un système d'équations linéaires sous la forme matricielle

$$g = A.f + \varepsilon \quad (2.2.4)$$

où le vecteur erreur inconnu ε résulte de la combinaison d'erreurs de mesures (g_i) et d'erreurs de quadrature $\sum_j A_{ij}.f_j$. Les éléments de (2.2.4) sont alors donnés par

$$\begin{aligned}
g_i &= \beta_{\lambda_i} & i &= 1, 2, \dots, p \\
A_{ij} &= \int_{r_j}^{r_{j+1}} K(m, r, \lambda_i) \cdot h(r) \cdot dr & & (2.2.5) \\
f_j &= f(r_j \leq r \leq r_{j+1}) = f(\bar{r}_j) & j &= 1, 2, \dots, q.
\end{aligned}$$

Les β_{λ_i} sont les mesures d'extinction à p longueurs d'onde λ et le vecteur solution f est déterminé à q rayons $\bar{r}_j = \sqrt{r_j \cdot r_{j+1}}$. A_{ij} représentent les coefficients de la quadrature. Par ailleurs force est de constater la restriction de l'inversion linéaire contrainte qui impose l'inégalité non stricte $q \leq p$. En effet c'est le nombre et la valeur des longueurs d'onde p qui détermine le nombre de classes q . La résolution de l'équation (2.2.4) qui s'effectue en minimisant

$$\varepsilon = \|A \cdot \bar{f} - \bar{g}\| \quad (2.2.6.a)$$

$$\varepsilon = |(A \cdot \bar{f} - \bar{g}) \cdot (A \cdot \bar{f} - \bar{g})^T|^{1/2} \quad (2.2.6.b)$$

implique une solution instable comme l'ont souligné Phillips (1962) et Twomey (1965; 1977). L'instabilité du vecteur solution f survient si (2.2.4) est directement résolue en minimisant $\sum_i \varepsilon_i^2$ (où les ε_i sont les composantes du vecteur erreur ε). Pour éviter cette instabilité, Phillips (1962) introduisit une contrainte de lissage

$$\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \left(\frac{d^2 f_s}{dr^2} \right)^2 \cdot dr = \min_{f \in F} \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} \left(\frac{d^2 f}{dr^2} \right)^2 \cdot dr \quad (2.2.7)$$

où f_s représente la solution et F l'ensemble des solutions possibles. L'équation (2.2.7) traduit la minimisation de la somme des carrés des dérivées secondes aux points solutions de (2.2.4). Dans ce contexte, Twomey (1977) précisa que ceci n'était qu'une des contraintes possibles et en proposa une autre

$$\int_{r_{\min}}^{r_{\max}} (f_t - f_s)^2 \cdot dr = \min_{f \in F} \int_{r_{\min}}^{r_{\max}} (f_t - f)^2 \cdot dr \quad (2.2.8)$$

où f_t est une solution d'essai ou une estimation grossière de la solution, f_s et F représentent toujours respectivement la solution et l'ensemble des solutions possibles. En général la contrainte de lissage s'écrit $f^T \cdot H \cdot f$ et permet d'obtenir une solution stable. f^T est le vecteur transposé du vecteur solution f et H représente une des matrices de lissage définies et répertoriées par Twomey (1963; 1977). L'obtention du vecteur solution f est donné par

$$f = (A^T \cdot A + \gamma \cdot H)^{-1} \cdot A^T \cdot g \quad (2.2.9)$$

Le paramètre libre γ , qui influe sur l'ajustement, est un multiplicateur de Lagrange et permet de contraindre la solution f à être "partiellement" lisse selon l'opérateur H . L'équation (2.2.9) ne garantit pas des résultats physiquement réalistes et de ce fait la distribution granulométrique $n(r)$ peut prendre des valeurs négatives. γ ne garantit pas que la solution f sera positive mais il est sélectionné de telle sorte qu'un maximum d'éléments de f sont positifs. Choisir une valeur trop faible de γ peut introduire des oscillations erronées dans la solution. A l'inverse opter pour une valeur trop élevée peut être une contrainte trop forte pour la solution et pourrait éventuellement forcer la solution à être indépendante des mesures [Shaw, (1976)]. Minimiser avec une valeur de γ égale à 0, serait équivalent à effectuer un simple moindre carré au niveau des données et fournirait directement les solutions de (2.2.4) malheureusement aussi bien négatives que positives.

L'inversion des mesures multispectrales de β_λ par la méthode de King [King, (1982)] est donc basée sur l'équation $n(r)=f(r).h(r)$ et sur la résolution du système linéaire (2.2.4) et consiste à remonter par itération à la distribution granulométrique des

particules pour chaque classe de dimension où $f(r)$ est constante. La première estimation à l'ordre 0 $h^0(r)$ représente une distribution de Junge soit

$$h^0(r) = r^{-(\nu+1)}. \quad (2.2.10)$$

L'inversion avec contraintes du système (2.2.4) donc (2.2.9) permet alors de déterminer une première solution $f^1(\bar{r}_j)$. Les valeurs $f^1(\bar{r}_j)$ sont alors utilisées afin de calculer la fonction poids au premier ordre $h^1(r) = f^1(\bar{r}_j) \cdot h^0(r)$ qui représente mieux la distribution granulométrique $n(r)$ que la fonction poids initiale $h^0(r)$. Une nouvelle solution $f^2(\bar{r}_j)$ peut alors être déterminée. Cette procédure est répétée jusqu'à l'obtention d'une solution stable qui se traduit par la convergence du vecteur f vers l'unité [Herman et al., (1971)]. L'avantage de cette méthode est que $h(r)$ s'identifie de mieux en mieux au fil des itérations à la distribution granulométrique. Le critère d'arrêt de cette démarche itérative est jugé par rapport à la restitution de β_λ par l'intermédiaire de l'écart quadratique résiduel ω donné par la relation

$$\omega = \sqrt{\frac{1}{p} \cdot \sum_{i=1}^p \left| \frac{\beta^{\text{mes. sim}}(\lambda_i) - \beta^{\text{calc}}(\lambda_i)}{\beta^{\text{mes. sim}}(\lambda_i)} \right|^2}. \quad (2.2.11)$$

où p représente toujours le nombre de longueurs d'onde. $\beta^{\text{mes. sim}}$ indique que les coefficients d'extinction sont mesurés ou simulés. β^{calc} précise que les coefficients d'extinction sont calculés à partir des distributions granulométriques inversées. La restitution de β_λ est jugée satisfaisante lorsque ω est minimum ou du même ordre de grandeur que la moyenne des erreurs liées aux mesures. Notons enfin qu'on peut éventuellement mettre un poids différent pour les différentes longueurs d'onde dans l'expression de l'écart quadratique résiduel.

CHAPITRE 3: ETUDE DE L'INVERSION LINEAIRE CONTRAINTE

Ce chapitre a pour objectif de présenter l'utilisation de l'inversion linéaire contrainte (CLI). Lui succédera un autre chapitre consacré à des mesures simulées aux longueurs d'onde de SAGE III. Seront alors déterminées l'ensemble des caractéristiques des aérosols (surface, volume, rayon effectif et variance effective) par la CLI pour des jeux de mesures correspondant à dix modèles pré ou post-volcaniques particuliers. Cette technique sera par ailleurs comparée à deux autres méthodes la RMST (*Randomized Minimization Search Technique*) et la LSFM (*Least Squares Fit Method*). Enfin, dans le cinquième chapitre, sera développée une climatologie de ces caractéristiques à partir des données SAGE II. La CLI et la LSFM seront réellement ainsi testées sur une période allant de 1984 à 1997.

3.1. Coefficients d'extinction simulés à partir des différents modèles granulométriques.

Les deux distributions en taille suivant une loi lognormale (monomodale ou bimodale) et une loi gamma modifiée sont deux fonctions analytiques utilisées dans notre étude pour représenter les caractéristiques d'aérosols stratosphériques. Les coefficients d'extinction sont calculés directement à partir de l'équation (2.1.1) aux canaux aérosols de SAGE III. Le tableau 3.1.1 présente les paramètres des lois lognormale et gamma modifiée, utilisés pour calculer les coefficients d'extinction et les caractéristiques microphysiques correspondantes de chaque modèle. Coefficients et caractéristiques sont calculés pour un rayon r compris entre 0.001 et 10 μm avec une incrémentation de 0.001 μm . Les modèles choisis sont les suivants:

- * les modèles 1 et 2 sont des distributions volcaniques post-El Chichon déterminées à partir de mesures effectuées avec un impacteur [Oberbeck et al., (1983)];
- * le modèle 3 est une distribution monomodale pré-Pinatubo définie elle aussi à partir de mesures faites avec un impacteur [Goodman et al., (1994)];

Modèle	Paramètres lognormaux						Caractéristique		
	N1	s _{i1}	r _{m1}	N2	s _{i2}	r _{m2}	S	V	r _{eff}
1	4.50	1.68	0.12	0.90	1.26	0.49	4.417	0.672	0.457
2	5.10	1.65	0.19	2.80	1.17	0.59	16.706	3.154	0.566
3	0.96	1.80	0.09	NA	NA	NA	0.195	0.014	0.213
4	15.87	1.54	0.08	4.26	1.36	0.27	6.568	0.616	0.281
5	1.25	1.58	0.13	1.28	1.26	0.56	6.016	1.227	0.611
6	9.05	1.25	0.14	1.98	1.35	0.35	6.112	0.663	0.326
7	5.25	1.38	0.25	0.56	1.17	0.53	7.151	0.938	0.394
8	2.10	1.50	0.33	3.10	1.30	0.60	20.087	4.486	0.670

Modèle	Paramètres des Lois Gamma Modifiées				Caractéristique		
	A	α	b	γ	S	V	Re
9	324.00	1.00	18.00	1.00	0.233	0.017	0.222
10	50000.0	2.00	20.00	1.00	4.712	0.393	0.250

r_{eff} et r_{m_i} sont exprimés en μm, N_i en cm⁻³, S en μm² cm⁻³ et V en μm³ cm⁻³

Tableau 3.1.1. Paramètres des distributions granulométriques des différents modèles et caractéristiques microphysiques correspondantes.

- * les modèles 4 et 5 représentent les distributions volcaniques post-Pinatubo caractérisées de la même manière par Goodman et al., (1994);
- * les modèles 6 et 7 sont également des distributions volcaniques après l'éruption du Pinatubo observées par des instruments embarqués sur des ballons-sondes [Deshler et al., (1993)];
- * le modèle 8 est une moyenne de distributions volcaniques post Pinatubo effectuée par Pueschel et al., (1994);
- * les modèles 9 et 10 sont des distributions qui suivent une loi gamma modifiée représentant les aérosols de fond (*background*) [Shettle et Fenn, (1976)] et un modèle H (*Haze*) de brume stratosphérique [Deirmendjian, (1969)].

Cette sélection a la particularité de présenter des distributions suivant une loi gamma modifiée ou lognormale caractéristiques d'aérosols que nous pouvons trouver avant (distribution monomodale) ou après (distribution bimodale) des éruptions volcaniques comme celles de El Chichon ou du Mont Pinatubo. Les distributions bimodales sont calculées à partir de l'équation (2.1.3) en sommant les composantes de deux distributions monomodales, comme l'indique l'équation ci-dessous

$$n(r) = \sum_{i=1}^2 \frac{N_i}{r \cdot \sqrt{2 \cdot \pi} \cdot \ln s_i} \cdot \exp\left| \frac{-\ln(r / r_{m_i})^2}{2 \cdot \ln^2 s_i} \right| \quad (3.1.1)$$

Dans nos simulations, les composantes réelles des indices de réfraction (éq. 2.1.2) sont celles recommandées pour des solutions d'acide sulfurique composées de 75.2% de H₂SO₄ par Russell et al., (1996) (solution d'équilibre correspondant à une concentration en vapeur d'eau de 3 parties par million par volume (ppmv) et une température de -50°C). Après différents tests effectués, nous n'avons pas pris en compte la partie imaginaire qui a très peu d'influence sur la détermination de la granulométrie, ni les incertitudes relatives aux indices de réfraction. Nous avons enfin utilisé une méthode de Monte-Carlo pour simuler les mesures d'extinction en ajoutant aux coefficients d'extinction des erreurs aléatoires normalement distribuées d'après les incertitudes

données dans le tableau 3.1.2. Ainsi pour chaque modèle listé dans le tableau 3.1.1, nous avons au départ les huit coefficients d'extinction aux huit longueurs d'onde. Pour créer un jeu de données pour un modèle particulier on tire un chiffre x compris entre zéro et un pour chaque longueur d'onde et on multiplie x par le coefficient d'extinction et l'incertitude relative correspondante à la longueur d'onde considérée. La valeur déterminée est alors ajoutée ou ôtée au coefficient d'extinction réel. Ainsi pour créer un jeu de mesures il est nécessaire de tirer huit chiffres indépendants compris entre zéro et un. Cette opération a été répétée mille fois pour chaque modèle listé afin de produire mille jeux de mesures distinctes. Il faut tout de suite préciser que sur les 1000 jeux de données d'extinction simulées, seul un certain nombre ψ conduira à des solutions convergentes, c'est-à-dire positives avec un multiplicateur de Lagrange relatif (voir section 3.5. (II)) typiquement égal à 10^{-3} . Ce nombre ψ oscille entre 250 et 1000. Pourront alors être déterminées les erreurs systématiques et aléatoires des différentes caractéristiques des aérosols (surface, volume, rayon effectif et variance effective).

<u>Longueur d'onde (μm)</u>	<u>Indice de réfraction</u>	<u>Incertitude (%)</u>
0.385	1.4697	25
0.450	1.4548	25
0.521	1.4542	20
0.676	1.4520	20
0.756	1.4494	15
0.869	1.4473	15
1.0195	1.4430	10
1.550	1.4300	10

Tableau 3.1.2. Indice de réfraction et incertitude de mesure maximale pour chaque canal aérosol de SAGE III.

3.2. Critère d'Heintzenberg.

L'une des difficultés majeures pour retrouver les caractéristiques microphysiques des aérosols est de déterminer où l'information de restitution est disponible, ceci en raison de l'interdépendance linéaire des sections efficace d'extinction (éq. 2.2.1) à différentes longueurs d'onde. Pour pallier cette difficulté nous utiliserons le critère d'Heintzenberg et al., (1981) qui ont calculé le rapport de ces sections efficaces d'extinction à différentes longueurs d'onde comme une fonction du rayon de la particule aérosol afin de déterminer la région où l'information utile peut être obtenue. La section efficace d'extinction fournit en fait une mesure de la contribution relative des particules de rayon r à l'extinction mesurée ou simulée [Wang, (1996)]. Ainsi dans les intervalles de rayons où le rapport de sections efficaces d'extinction reste constant, les informations sur les tailles de particules ne peuvent pas être données par les mesures. Aussi ce critère permet d'avoir une approche plus facile pour choisir l'intervalle de rayons $[r_{\min}, r_{\max}]$ dans lequel l'inversion va être effectuée. La détermination des propriétés des aérosols en dehors de cet intervalle donnera des incertitudes plus importantes aussi bien pour les coefficients d'extinction que pour les caractéristiques des aérosols. Les figures 3.2.1 et 3.2.2 illustrent ces propos en présentant respectivement les rapports des sections efficaces d'extinction entre les deux canaux extrêmes de SAGE III (0.385 et 1.550 μm) et entre 0.521 et 1.550 μm . Sont indiquées en lignes pointillées les limites de rayons $[0.1 \mu\text{m}$ pour le rayon minimal r_{\min} et 1.25 μm pour le rayon maximal $r_{\max}]$ où les rapports des sections efficaces sont constants. Cette étude confirme l'analyse préalable de Wang et al., (1996) qui indiquèrent l'intervalle $[0.1, 1.5 \mu\text{m}]$ comme étant celui où l'information est disponible.

Généralement les aérosols stratosphériques sont assez petits. Pour une distribution bimodale, ne se produisant qu'après une éruption volcanique, le mode

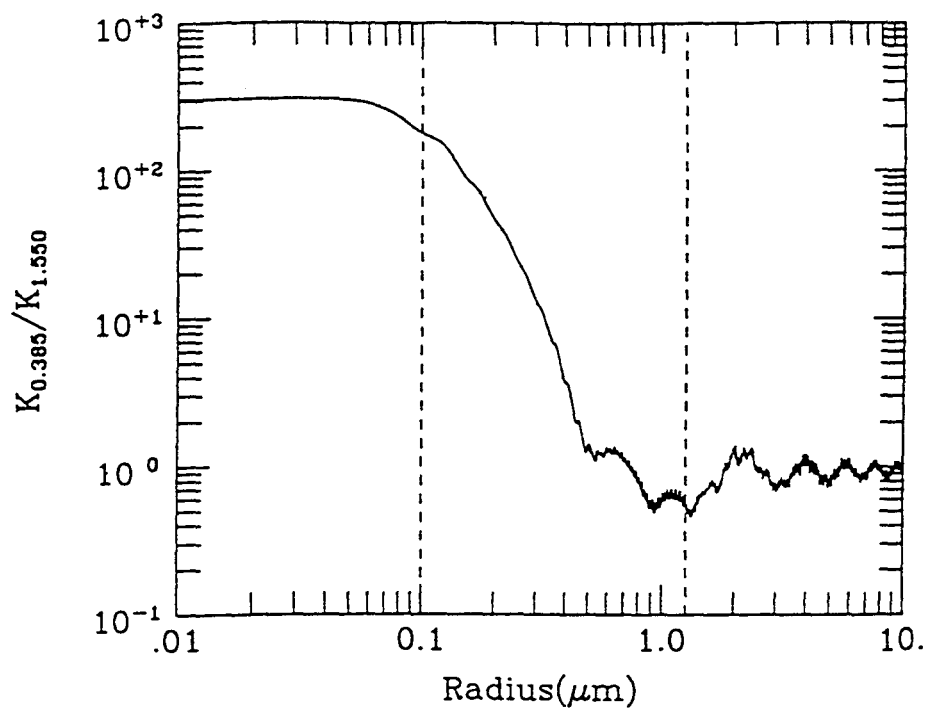


figure 3.2.1. Rapport des sections efficaces d'extinction entre les deux canaux extrêmes de SAGE III (0.385 et 1.550 μm).

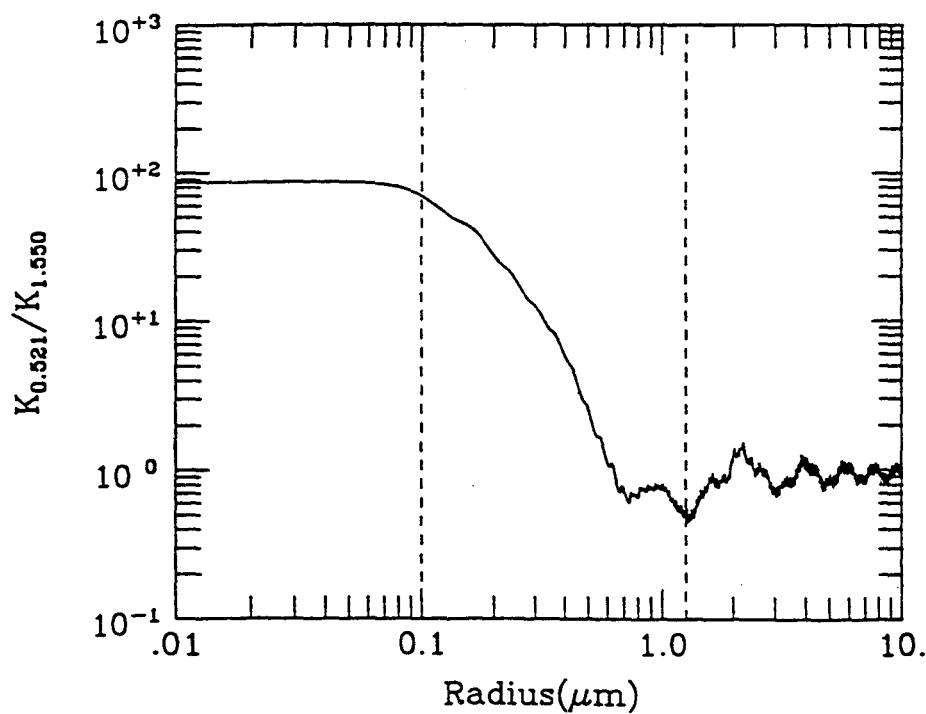


figure 3.2.2. Rapport des sections efficaces d'extinction entre 0.521 et 1.550 μm .

d'accumulation (voir introduction) se situe à 0.4-0.5 μm . Une distribution granulométrique (qu'elle soit monomodale ou bimodale) présentera souvent un pic à un rayon de l'ordre de 0.1 μm . Une meilleure estimation de ces aérosols de faible dimension pourrait être obtenue en prenant des longueurs d'onde d'observation plus petites. Malheureusement l'absorption de l'ozone et la diffusion Rayleigh dans la haute troposphère et dans la basse stratosphère impose une limite de longueur d'onde de 0.38 μm pour la mesure de coefficients d'extinction des aérosols et rend difficile l'accès à la caractérisation des petits aérosols.

3.3. Caractéristiques des aérosols (surface, volume, rayon effectif, variance effective).

Toute méthode d'inversion comme la CLI est jugée par sa capacité à déterminer le mieux possible les différents moments (éq. 2.1.10) à partir de la distribution granulométrique inversée. On l'a vu, il s'agit là de l'un des éléments essentiels à déterminer si on veut connaître le comportement des aérosols stratosphériques, puisque la connaissance des moments entraîne celle de toutes les autres grandeurs: surface, concentration, volume et indirectement la masse.

Ainsi la surface (en $\mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$) peut alors être obtenue d'après

$$S = \int_0^{\infty} 4 \cdot \pi \cdot r^2 \cdot n(r) \cdot dr = 4 \cdot \pi \cdot M_2 . \quad (3.3.1)$$

La détermination de cette caractéristique nous donne une idée de la surface disponible pour d'éventuelles réactions chimiques hétérogènes [Cadle et al. (1975)]. De nombreuses études ont souligné qu'une augmentation de surface de ces particules, suite par exemple aux éruptions volcaniques, était corrélée à une hausse du nombre des réactions hétérogènes comme celles survenant dans les nuages stratosphériques polaires

(*Polar Stratospheric Clouds - PSC*) [Crutzen et Arnold, (1986)]. Les PSC occupent une place majeure dans la chimie de la stratosphère polaire dans la mesure où ils jouent un rôle crucial dans les processus de destruction de l'ozone [Poole et McCormick, (1988)].

Par ailleurs le volume [Grainger et al., (1995)] est un paramètre tout aussi important que la surface car des réactions chimiques peuvent avoir lieu à l'intérieur des aérosols. Il est utilisé pour la détermination de la masse de ces mêmes aérosols et peut être calculé à partir de

$$V = \int_0^{\infty} \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot r^3 \cdot n(r) \cdot dr = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot M_3. \quad (3.3.2)$$

Le rayon effectif et la variance effective (éqs 2.1.4 à 2.1.7) sont donnés en fonction des différents moments par les relations suivantes:

$$r_{\text{eff}} = \frac{M_3}{M_2} = \frac{3 \cdot V}{S} \quad (3.3.3)$$

$$v_{\text{eff}} = \frac{M_4}{r_{\text{eff}}^2 \cdot M_2} - 1 = \frac{M_2 \cdot M_4}{M_3^2} - 1. \quad (3.3.4)$$

3.4. Critère de performance.

Nous définissons l'erreur totale sur les caractéristiques des aérosols par la relation

$$\frac{\Delta X}{X} = \frac{\text{abs}(\overline{X_{\text{inversé}}} - X_{\text{réel}}) + \sigma_X}{\overline{X_{\text{inversé}}}} \quad (3.4.1)$$

où $\overline{X_{\text{inversé}}}$ est la valeur moyenne des $X_{\text{inversé}}$, $X_{\text{inversé}}$ étant la valeur de la caractéristique X (qui représente la surface S, le volume V, le rayon effectif r_{eff} ou la variance effective v_{eff}) calculée à partir des distributions granulométriques déterminées après inversion. Les

différentes caractéristiques (S , V , r_{eff} , v_{eff}) pourront être calculées à partir des ψ (voir section 3.1.) granulométries. De ce fait il est nécessaire de produire un nombre considérable de mesures afin d'avoir une estimation correcte des incertitudes. σ_X est la déviation standard sur $\overline{X_{\text{inversé}}}$ et définit l'erreur aléatoire. $X_{\text{réel}}$ est la véritable valeur (voir tableau 3.1.1). La différence relative entre la moyenne calculée $\overline{X_{\text{inversé}}}$ et $X_{\text{réel}}$ est définie comme étant l'erreur systématique. La moyenne de chaque caractéristique sera comparée aux valeurs théoriques.

Enfin l'erreur quadratique moyenne est définie par

$$R_X^* = \sqrt{\frac{1}{M^*} \cdot \sum_{i=1}^{M^*} \left(\left(\frac{\Delta X}{X} \right)_i \right)^2} \quad (3.4.2)$$

où M^* représente le nombre de modèles représentatifs de distributions granulométriques testés, en l'occurrence 10 dans notre étude. Notons que les valeurs de R_X^* peuvent également être déterminées pour le calcul des coefficients d'extinction à partir des distributions granulométriques retrouvées. Cette technique ressemble à celle employée par Wang et al., (1989) pour l'expérience satellitaire SAGE II afin d'estimer les erreurs systématiques et aléatoires des caractéristiques des aérosols à partir d'un jeu de 50 mesures simulées.

3.5. Pour une meilleure utilisation de l'inversion linéaire contrainte (CLI).

De nombreuses difficultés apparaissent liées à la non unicité des solutions qui dépendent fortement:

- (I) du choix de la contrainte de lissage par l'intermédiaire de la matrice H,
- (II) de la sélection de la valeur du multiplicateur de Lagrange γ ,
- (III) de la fonction poids $h(r)$,
- (IV) du critère d'arrêt de la méthode,
- (V) du système de quadrature utilisé,
- (VI) de l'intervalle $[r_{\min}, r_{\max}]$ utilisé dans l'inversion,
- (VII) du nombre de points de quadrature \bar{r}_j utilisé.

Dans la mesure où un nombre infini de solutions obtenu à partir d'un choix raisonnable de paramètres d'inversion restitue les coefficients d'extinction avec la précision expérimentale désirée, la sélection d'une solution unique relève d'une certaine connaissance *a priori* de la solution même.

Dans les exemples qui vont suivre (figures 3.5.1, 3.5.2, ..., 3.5.8 et 3.5.9), nous montrerons les distributions granulométriques des modèles choisis (trait plein) ainsi que les granulométries obtenues après inversion des données aérosols aux huit longueurs d'onde de SAGE III. Pour les figures 3.5.1, 3.5.2, 3.5.3, 3.5.4 et 3.5.5, les inversions sont effectuées pour un seul jeu de données (et non pour ψ , voir sections 3.1. et 3.4.) à partir des coefficients d'extinction réels sans introduction d'erreurs sur ces mêmes coefficients. Les résultats seront présentés après arrêt de l'inversion linéaire contrainte au bout de la huitième itération (voir (IV)).

Nous allons étudier en détail les sept points cités ci-dessus:

(I). Dans cette étude, nous utiliserons la contrainte de lissage relative aux dérivées secondes (éq. 2.2.7) définie par Phillips (1962) plutôt que celle proposée par Twomey (1977) (éq. 2.2.8) où il faut systématiquement déterminer une solution d'essai ou une estimation grossière de la solution. La matrice de lissage correspondante H est donnée par Twomey (1963)

lissage se fait sentir mais n'est pas trop importante. Si γ_{rel} est très supérieure à 10^{-3} (par exemple 1) les solutions ne sont pas acceptables car la contrainte est trop forte. Quand γ_{rel} dépasse la valeur 4, l'itération est stoppée. De fortes valeurs de γ sont parfois nécessaires pour forcer l'ensemble de toutes les valeurs de $f(\bar{r}_j)$ à être positives simultanément pour tous les points \bar{r}_j . C'est pourquoi les solutions négatives de $f(\bar{r}_j)$ obtenues pour de plus faibles valeurs de γ sont remplacées systématiquement par de faibles valeurs positives égales à 0.1. Rappelons que l'obtention d'une solution stable se traduit par la convergence du vecteur f vers l'unité (voir section 2.2). La valeur 0.1 (soit 10% de l'unité) permet de prendre en compte de façon toute relative l'influence de la classe dans la restitution du coefficient d'extinction. Elle permet également la poursuite de l'itération. Autre subtilité: il arrive qu'après inversion toutes les solutions $f(\bar{r}_j)$ soient positives mais certaines d'entre elles peuvent être très faibles. Dès lors pour éviter une chute trop importante du nombre de particules dans une classe qui empêcherait une bonne restitution des coefficients d'extinction, ces faibles valeurs sont réhaussées jusqu'à $f(\bar{r}_j)=0.04$. Toutes les solutions deviennent donc positives et supérieures à 0.04, valeur choisie après différents essais. Quand des solutions physiquement acceptables ne peuvent être déterminées l'inversion linéaire contrainte diverge et il est alors requis de changer d'intervalle de rayon ou de fonction poids $h(r)$. Quand elle ne diverge pas, la solution est comptabilisée.

La figure 3.5.1 représente le modèle 3 à savoir une distribution monomodale pré-Pinatubo [Goodman et al., 1994] et démontre le manque d'information relatif aux petites particules. La courbe (a) représente l'inversion effectuée dans l'intervalle [0.05, 1.50 μm] pour une valeur de $\gamma_{rel} = 10^{-5}$ alors que la courbe (b) représente l'inversion accomplie dans le même intervalle mais pour une contrainte plus forte correspondant à $\gamma_{rel} = 10^{-4}$. Ces deux inversions, effectuées à partir d'une fonction poids type loi de Junge (éq. 0.1) avec $v=4$, illustrent comment un accroissement de contrainte a pour effet de modifier la forme de la distribution granulométrique inversée à environ 0.15 μm (le nombre de particules dont le rayon est inférieur à 0.10 μm diminuant). Ces mêmes

particules contribuent pour moins de 4% à l'extinction totale à la plus petite des longueurs d'onde de SAGE III, en l'occurrence $0.385 \mu\text{m}$, et pour moins de 1% à la plus grande des longueurs d'onde $1.550 \mu\text{m}$. En raison de ce manque d'informations au sujet de ces petites particules, de la faible contribution à la restitution du coefficient d'extinction et du critère d'Heintzenberg, nous restreindrons immédiatement l'intervalle de rayons à $[0.10, 1.25 \mu\text{m}]$.

(III). La figure 3.5.2 illustre l'influence de la fonction poids toujours pour le modèle 3. L'inversion se fait dorénavant dans l'intervalle $[0.10, 1.25 \mu\text{m}]$. La courbe (a) représente la distribution granulométrique inversée à partir d'une fonction poids type loi de Junge avec $\nu=4$, la courbe (b), la distribution granulométrique inversée avec $h(r)=1$. A l'exception des limites d'inversion la courbe (a) rend bien compte du modèle. Par contre, au niveau de la courbe (b) deux modes apparaissent alors qu'ils n'ont pas de raison d'exister.

Les figures 3.5.3 et 3.5.4 illustrent toujours l'influence de la fonction poids mais pour une distribution bimodale type post El Chichon [Oberbeck et al., 1983]. Elle correspond à notre modèle 2. Il est intéressant de constater que l'intervalle de rayons utilisé a été modifié par rapport à la figures 3.5.2. En effet l'utilisation du précédent intervalle $[0.10, 1.25 \mu\text{m}]$ ne permet pas d'obtenir une solution convergente. Le nouvel intervalle est donc $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$. Sont représentées sur les figures 3.5.3 et 3.5.4 les distributions granulométriques inversées à partir des fonctions poids type loi de Junge avec des pentes 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8. Hormis l'inversion à partir de la fonction poids de pente $\nu=2$, où trois modes apparaissent, les deux véritables modes du modèle sont bien visibles. Nous retrouvons bien le second mode dans tous les cas même si un écart aux grands rayons subsiste. En revanche même si le premier mode est apparent, il est difficile de localiser avec exactitude son maximum. Ceci peut s'expliquer par la faible contribution qu'ont les petites particules à la restitution du coefficient d'extinction. Par ailleurs force

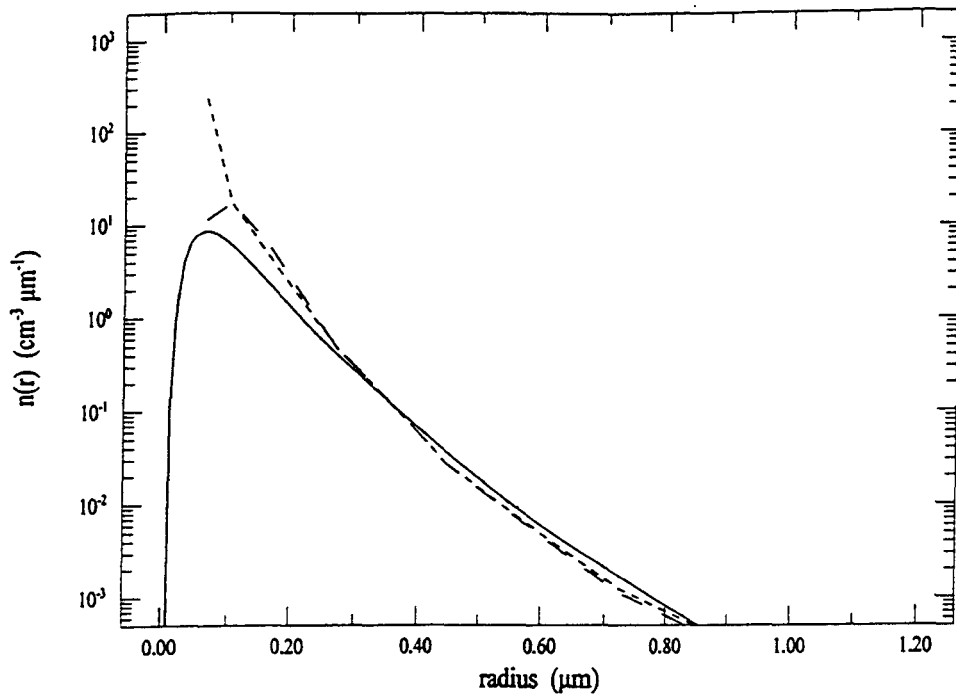


figure 3.5.1. (---) courbe (a): inversion du modèle 3 (trait plein) pour l'intervalle [0.05, 1.5 μm] à partir d'une fonction poids type loi de Junge avec $\nu=4$. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} = 10^{-5}$.

(---) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais pour $\gamma_{\text{rel}} = 10^{-4}$.

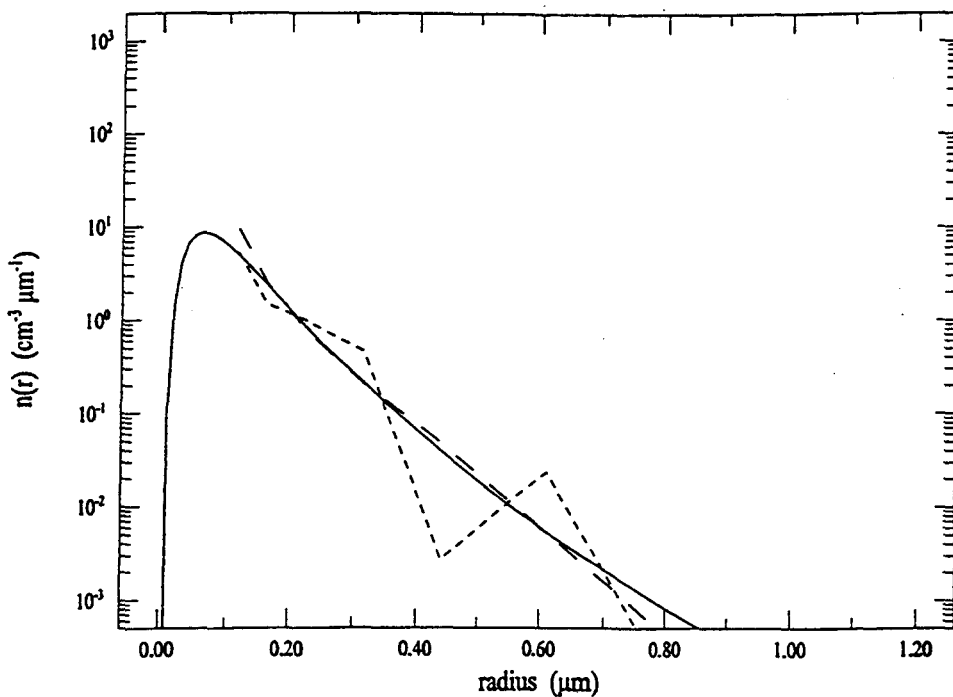


figure 3.5.2. (---) courbe (a): inversion du modèle 3 (trait plein) pour l'intervalle [0.10, 1.25 μm] à partir d'une fonction poids type loi de Junge avec $\nu=4$. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$.

(---) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais avec une fonction poids $h(r)=1$.

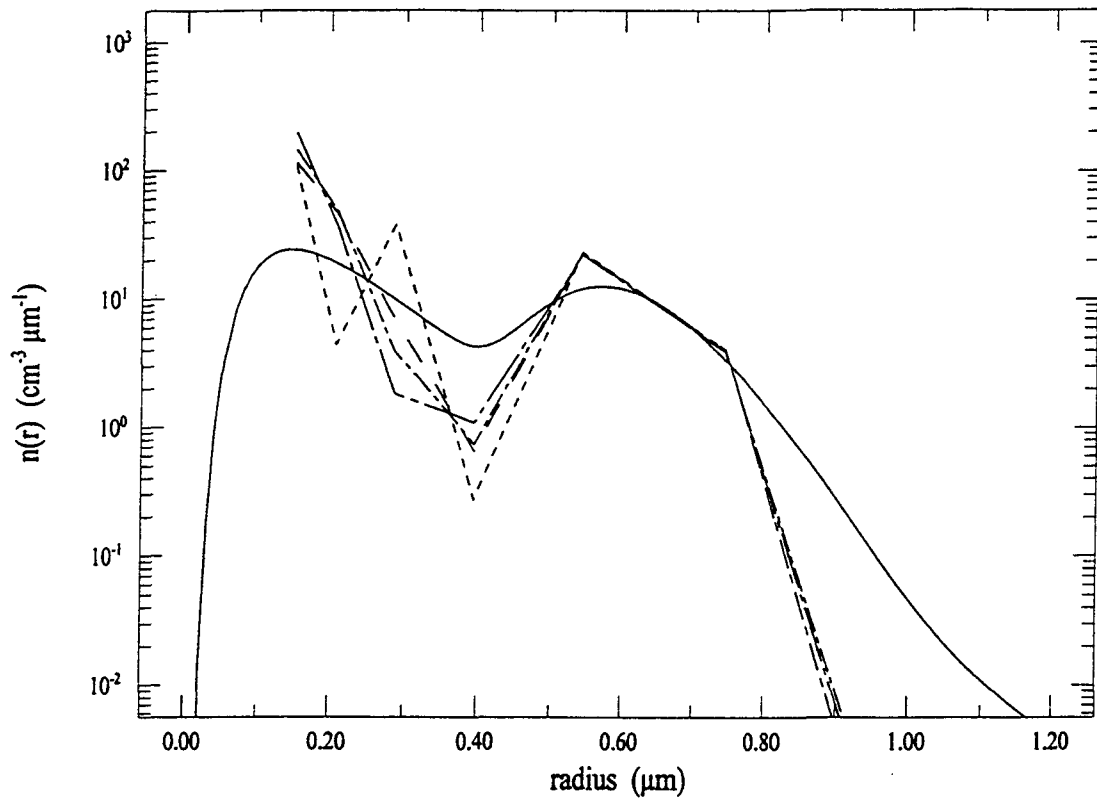


figure 3.5.3 (-----) courbe (a): inversion du modèle 2 (trait plein) pour l'intervalle $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$ à partir d'une fonction poids type loi de Junge avec $\nu=2$. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$.

(- - - -) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais pour $\nu=3$.

(— - — -) courbe (c): idem que pour courbe (a) mais pour $\nu=4$.

(- - - -) courbe (d): idem que pour courbe (a) mais pour $\nu=5$.

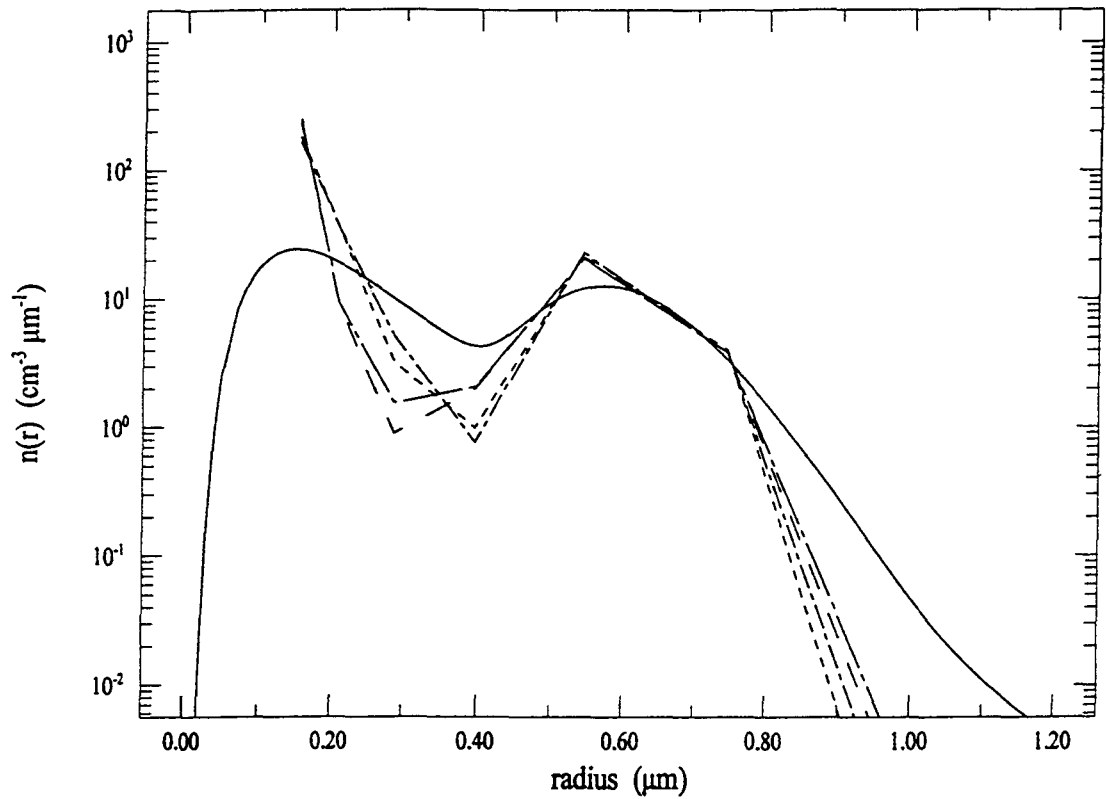


figure 3.5.4 (-----) courbe (a): inversion du modèle 2 (trait plein) pour l'intervalle $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$ à partir d'une fonction poids type loi de Junge avec $\nu=6$. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$.

(---) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais pour $\nu=7$.

(- - -) courbe (c): idem que pour courbe (a) mais pour $\nu=8$.

(- . - . -) courbe (d): idem que pour courbe (a) mais pour une inversion à partir d'une fonction poids combinaison de 2 lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et $\nu=7$.

est de constater que si le minimum entre les deux modes est facile à distinguer, son amplitude n'est pas caractérisée de façon précise.

En fait dorénavant dans le but d'optimiser la restitution du modèle bimodal on préférera utiliser une fonction poids comme étant la combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives 6 et 7 comme par exemple sur la figure 3.5.4 (courbe (d)). Il est apparu dans les nombreuses simulations effectuées qu'une meilleure inversion avait lieu pour les bimodaux quand une légère modification de pente survenait. Ce changement de pente interviendra au niveau du troisième point (c'est-à-dire le centre de la troisième classe). Chacun pourra s'étonner d'un choix de pentes relativement élevé mais des fortes valeurs de v sont associés à une décroissance rapide de la répartition granulométrique et donc à une distribution des particules plutôt déplacée vers les faibles rayons. Par ailleurs il est advenu qu'un choix de pentes plus traditionnel (c'est-à-dire $2 < v < 4$) conduit à un nombre légèrement plus élevé de situations divergentes (plus faibles valeurs de ψ , voir sections 3.1. et 3.4.) menant à des solutions non satisfaisantes.

Par ailleurs comme il apparaît figure 3.5.5, sur un cas rare, il peut advenir que la fonction poids ait peu d'influence sur l'inversion.

(IV). En outre le critère d'arrêt de la méthode peut influencer les résultats. Nous avons vu que l'inversion linéaire contrainte était jugée correcte lorsque l'écart quadratique résiduel ω (éq. 2.2.11) est minimum ou du même ordre de grandeur que les erreurs liées aux mesures. En fait il s'avère, pour notre inversion, qu'après un nombre d'itérations égal à huit, la restitution du coefficient d'extinction est jugée satisfaisante. King, (1982), Spinhirne et King, (1985) en étaient d'ailleurs arrivés aux mêmes conclusions. Par conséquent, dans tous les résultats présentés, nous arrêterons l'itération à l'ordre huit.

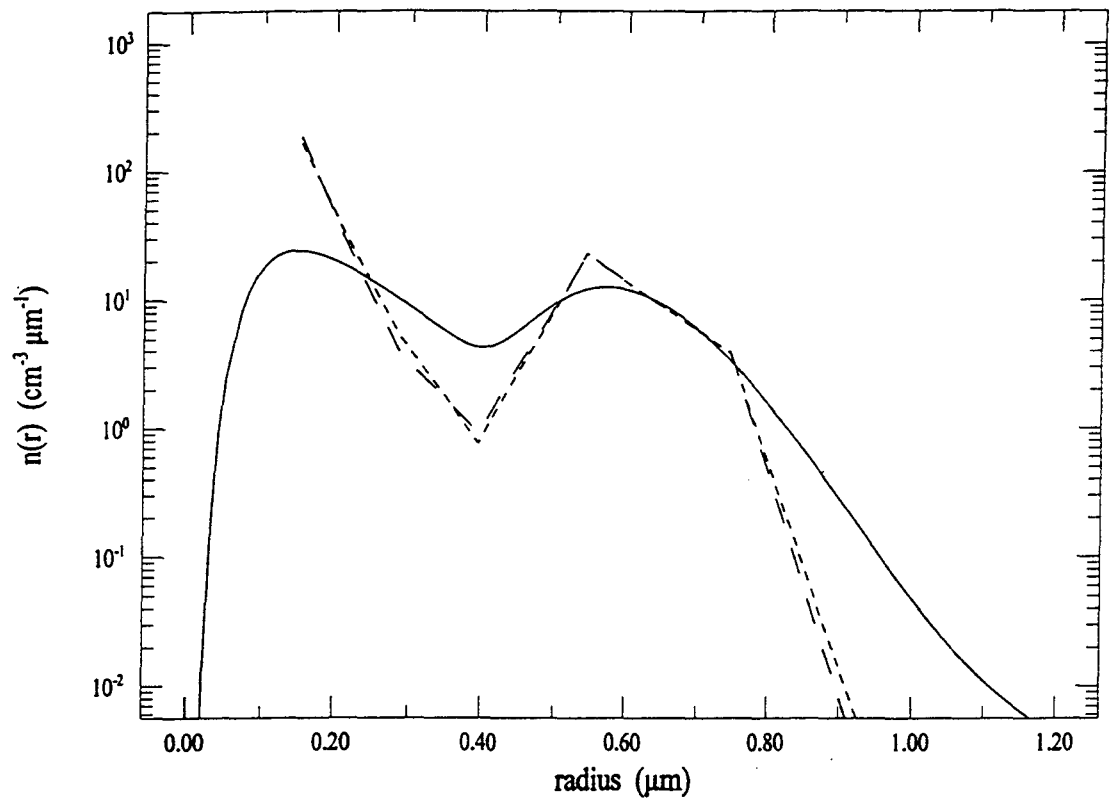


figure 3.5.5. (— — —) courbe (a): inversion du modèle 2 (trait plein) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir d'une fonction poids $h(r)=1$. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$.

(- - - - -) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais avec une fonction poids combinaison de 2 lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7.

(V). Dans cette étude nous utiliserons une quadrature d'égal division [King et al., (1978); King (1982)], c'est-à-dire que les centres des classes seront équidistants en échelle logarithmique à savoir:

$$\ln(\overline{r}_j) - \ln(\overline{r}_{j-1}) = \ln(\overline{r}_{j-1}) - \ln(\overline{r}_{j-2}) \quad (3.5.2)$$

où le rayon $\overline{r}_j = \sqrt{r_j \cdot r_{j+1}}$ (éq. 2.2.5) correspond au "centre" en log de la classe j.

(VI) et (VII). Avant d'effectuer toute inversion il est nécessaire de s'attarder sur quatre points fondamentaux:

- (i) le nombre de longueurs d'onde,
- (ii) la valeur de ces longueurs d'onde,
- (iii) l'intervalle de rayons choisi,
- (iv) le nombre de classes utilisées dans l'inversion, nombre qui est au plus égal au nombre de longueurs d'onde.

Pour SAGE II et SAGE III nous avons respectivement 4 et 8 canaux aérosols. Les longueurs d'onde de SAGE II varient de 0.385 à 1.020 μm alors que pour SAGE III elles s'échelonnent de 0.385 à 1.550 μm . On remarque déjà que le canal aérosol 1.550 μm , qui va servir à détecter les grosses particules, va nous permettre de choisir une borne maximale r_{max} supérieure à celle prise pour l'inversion des données SAGE II.

L'intervalle [0.10, 1.00 μm] sera choisi pour SAGE II (voir section 3.2. et figures 3.2.1 et 3.2.2). Wang (1989) avait d'ailleurs fait le même choix. On optera pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] pour SAGE III. La borne minimale r_{min} est elle aussi différente. Il s'est en effet avéré dans tous les calculs d'inversion des données simulées de SAGE III, effectués avec différents intervalles de rayons ayant pour borne minimale r_{min} une valeur inférieure à 0.13 μm comme 0.10 ou 0.11 μm , qu'on obtient un nombre de solutions convergentes moins élevé et des résultats moins satisfaisants. Cela est dû au

fait que la borne maximale s'est déplacée vers les grands rayons et qu'il est à la fois difficile de prendre une borne maximale élevée et une borne minimale faible. Wang (1996) opta plutôt pour l'intervalle $[0.12, 1.22 \mu\text{m}]$ pour l'inversion des données aérosols simulées de SAGE III.

Le nombre de classes utilisés dans l'inversion est lui aussi primordial. On choisira un nombre de classes q égal au nombre de longueurs d'onde p moins l'unité. En effet lorsque $p=q$ il sera montré (voir section 4.1.2.) qu'il est plus difficile de caractériser le premier point de la granulométrie correspondant aux petites particules et à la première classe de rayons.

Il est également nécessaire que l'intervalle choisi tienne compte au maximum de particules qui participent à la restitution du coefficient d'extinction. Prenons par exemple les modèles 2 (structure bimodale) et 10 (structure type gamma modifiée (un seul mode)) représentés sur les figures 3.5.6 et 3.5.7. Ces deux exemples ont été inversés avec l'intervalle de rayon $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$. L'écart quadratique résiduel ω (éq. 2.2.11) entre les coefficients d'extinction restitués et simulés est de 3.7% pour le modèle 2 et de 3.3% pour le modèle 10. Les figures 3.5.8 et 3.5.9 qui représentent l'extinction restituée en fonction de la longueur d'onde montrent que la restitution est satisfaisante pour les deux modèles.

Il n'est pas inutile de s'attarder sur quelques séries de coefficients d'extinction créées par la méthode de Monte-Carlo que nous n'arrivons pas à inverser et qui ne sont par conséquent pas comptabilisées dans nos ψ solutions. La figure 3.5.10 illustre à cet effet six séries de huit coefficients d'extinction représentant le modèle 2 qui créent des difficultés. On constate qu'elles ont toutes la particularité de présenter un coefficient d'extinction sous-estimé à la longueur d'onde $0.385 \mu\text{m}$. Pour les autres modèles non représentés, on remarque dans la majorité des cas également qu'il n'est pas possible de déterminer les distributions granulométriques et par conséquent les caractéristiques des

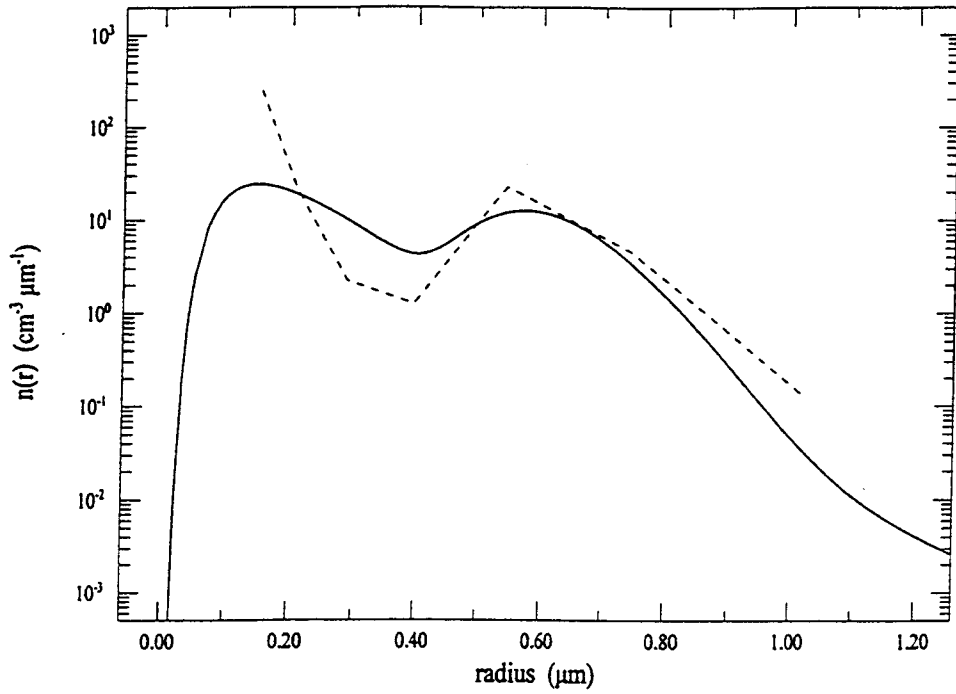


figure 3.5.6. (- - -) inversion du modèle 2 (trait plein) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir d'une fonction poids combinaison de 2 lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$.

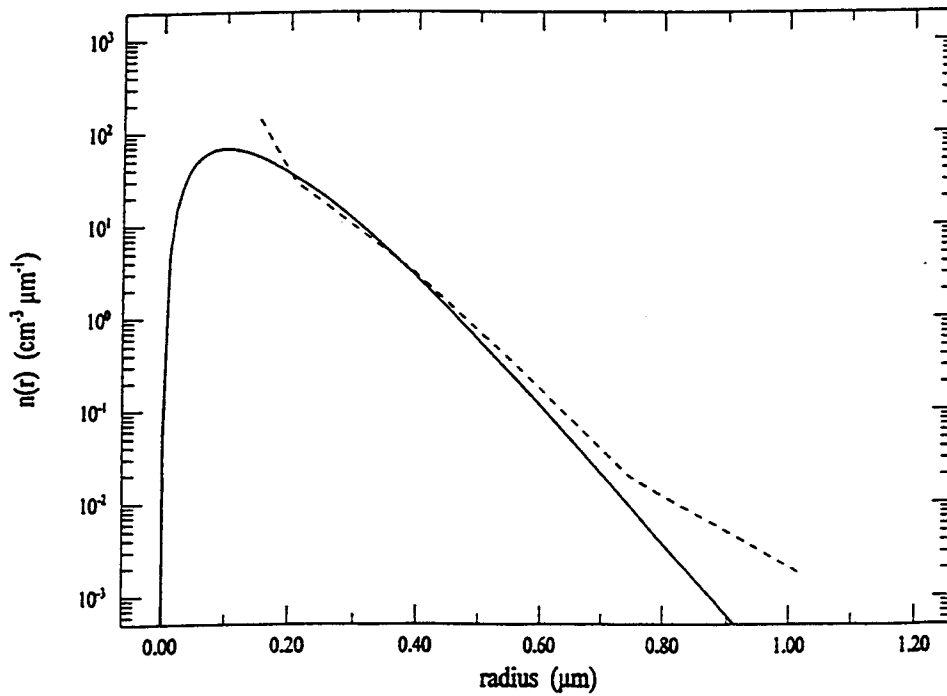


figure 3.5.7. (- - -) idem que pour la figure 3.5.6. mais pour le modèle 10.

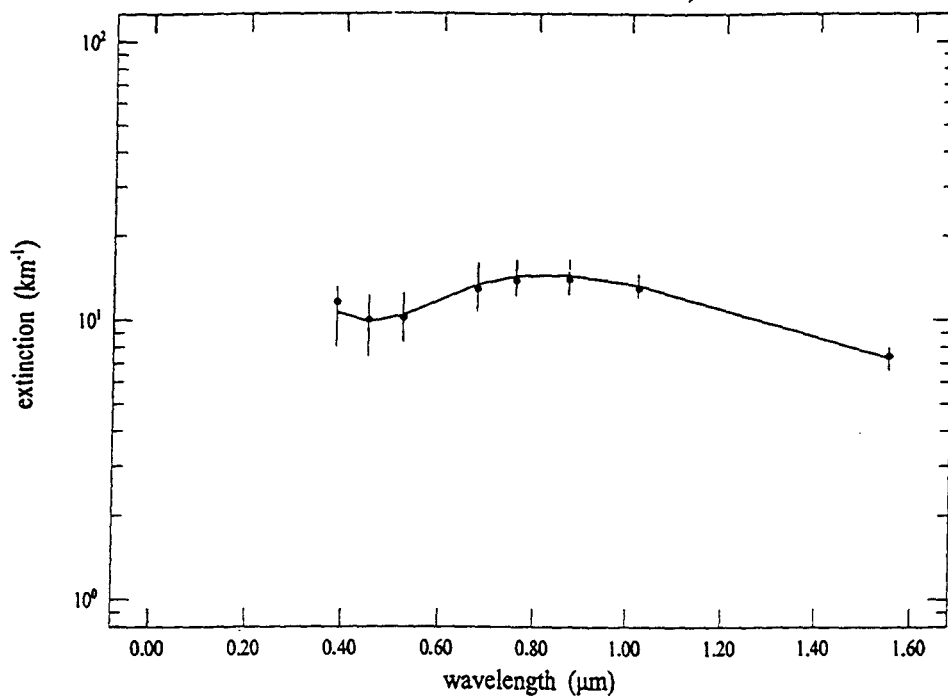


figure 3.5.8. Coefficients d'extinction simulés pour le modèle 2 avec les incertitudes correspondantes (barres verticales) et coefficients d'extinction restitués (points) à partir de la granulométrie inversée (mêmes conditions que la figure 3.5.6.).

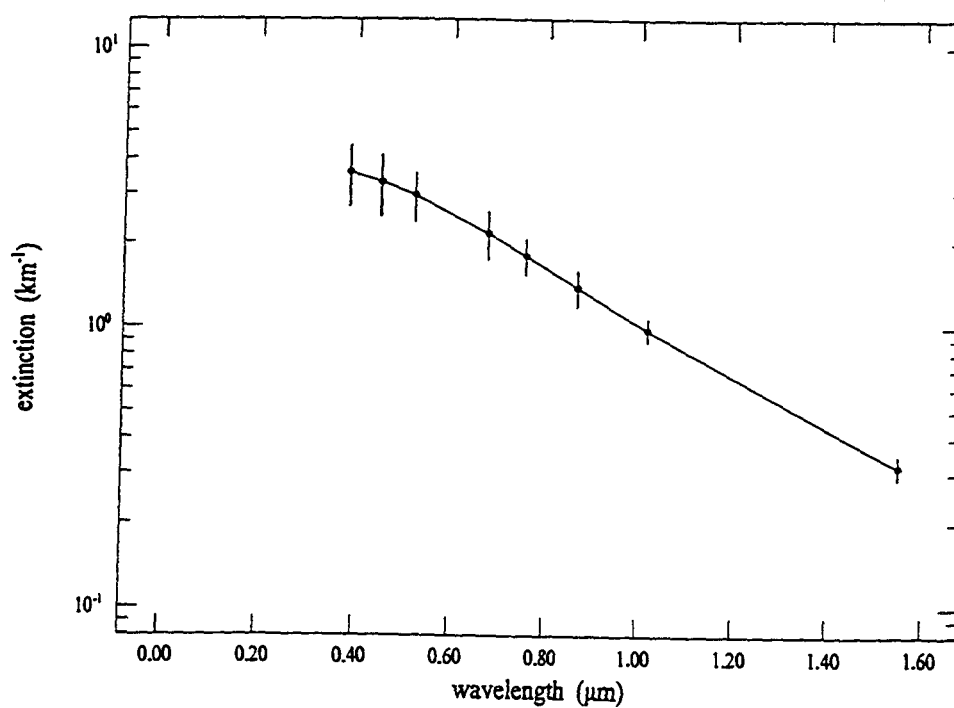


figure 3.5.9. Idem que pour la figure 3.5.8. mais pour le modèle 10 (mêmes conditions que pour la figure 3.5.7.).

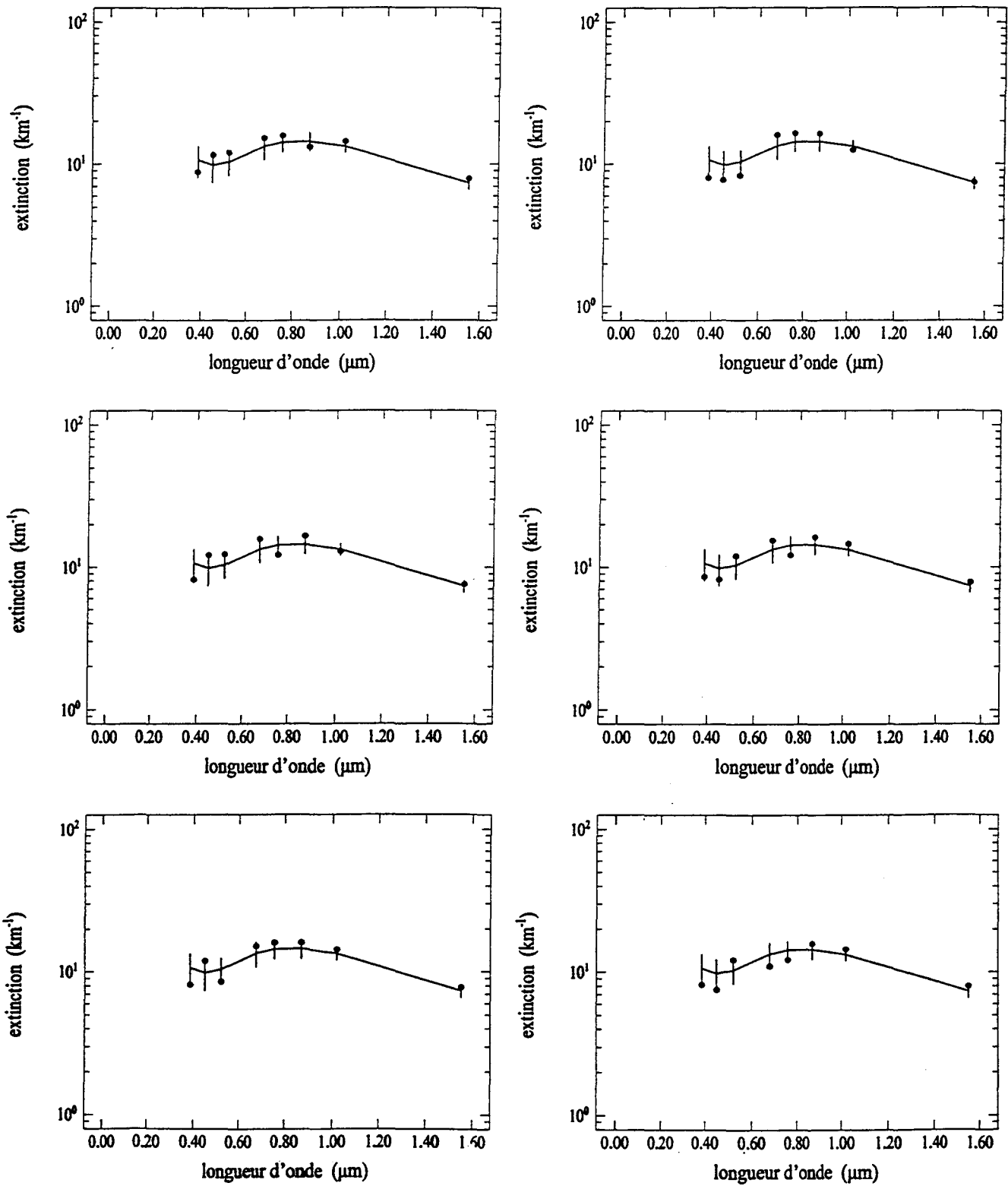


figure 3.5.10. Six exemples de variations spectrales d'extinction relatives au modèle 2 créés par la méthode de Monte-Carlo qui posent des difficultés au niveau de l'inversion linéaire contrainte.

aérosols à partir de séries de coefficients d'extinction ayant une valeur au canal $0.385 \mu\text{m}$ très inférieure à la valeur centrale.

En outre, il est intéressant de visualiser pour chacun des deux modèles 2 et 10 la contribution relative des particules dans une certaine gamme de rayons (intervalle) à l'extinction totale, quand cette dernière est calculée entre 0.001 et $10 \mu\text{m}$, pour les différentes longueurs d'onde de SAGE III. Il apparaît que le choix de l'intervalle $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$ est plus judicieux pour le modèle 2 que pour le modèle 10. En effet, d'après le tableau 3.5.1, pour le modèle 2, la contribution relative à l'extinction totale des particules dont le rayon est compris entre 0.001 et $0.13 \mu\text{m}$ est inférieure à 0.5% . Ce pourcentage est inférieur à 0.2% pour les aérosols dont le rayon se situe entre 1.2 et $10 \mu\text{m}$. Pour le modèle 10 la borne maximale $1.20 \mu\text{m}$ est bien adaptée à l'inversion avec des particules au-delà de cette limite participant peu à la restitution du coefficient d'extinction. Cependant la borne minimale $0.13 \mu\text{m}$ semble un peu trop élevée pour le modèle 10. Même si la contribution relative à l'extinction des particules dont le rayon est plus petit que $0.13 \mu\text{m}$ est inférieure à 4% , la contribution à la surface et au volume de ces mêmes particules est respectivement de l'ordre de 10 et de 3% (tableaux 3.5.1 et 3.5.2). Aussi ne faut-il pas seulement se limiter à tester la restitution du coefficient d'extinction pour déterminer l'intervalle de rayons.

3.6. Inversion aux huit longueurs d'onde de SAGE III à partir de coefficients d'extinction "réels".

Dans cette section nous allons inverser les coefficients d'extinction "réels" des dix modèles du tableau 3.1.1 par l'inversion linéaire contrainte dans le but de (i) voir quelle erreur systématique on peut espérer pour les différentes caractéristiques et de (ii) rendre compte si on introduit une erreur supplémentaire quand on se crée nos jeux de 1000 données. Nous avons utilisé, dans la section 3.1., une méthode de Monte-Carlo pour

		Contribution Relative à l'extinct. (%)	
Canal	Intervalle	Modèle 2	Modèle 10
1	0.001 à 0.13 µm	< 0.5	< 4
2	idem	< 0.5	< 3
3	idem	< 0.5	< 2
4	idem	< 0.5	< 1.2
5	idem	< 0.5	< 1.0
6	idem	< 0.5	< 0.8
7	idem	< 0.5	< 0.6
8	idem	< 0.5	< 0.4
Canal	Intervalle	Modèle 2	Modèle 10
1	1.2 à 10 µm	< 0.2	< 0.1
2	idem	< 0.2	< 0.1
3	idem	< 0.2	< 0.1
4	idem	< 0.2	< 0.1
5	idem	< 0.2	< 0.1
6	idem	< 0.2	< 0.1
7	idem	< 0.2	< 0.1
8	idem	< 0.2	< 0.1

*Tableau 3.5.1. Contribution relative des particules dans une certaine gamme de rayons (intervalle) à l'extinction totale quand cette dernière est calculée entre 0.001 et 10 µm pour les modèles 2 et 10 pour les différentes longueurs d'onde de SAGE III (i. e. contribution relative=(extinction(intervalle)-extinction(totale))/extinction(totale)]*100).*

Le canal 1 correspond à 0.385 µm, etc..., le canal 8 à 1.550 µm.

		Contribution Relative à S ou V (%)	
Caractéristiques	Intervalle	Modèle 2	Modèle 10
Surface S	0.001 à 0.13 µm	< 0.7	< 9.9
Volume V	idem	< 0.2	< 3.0
Caractéristiques	Intervalle	Modèle 2	Modèle 10
Surface S	1.20 à 10 µm	< 0.1	< 0.1
Volume V	idem	< 0.2	< 0.1

Tableau 3.5.2. Idem que le tableau 3.5.1 mais pour la surface S et le volume V.

précisément simuler les mesures d'extinction en ajoutant à ces coefficients d'extinction réels des erreurs aléatoires normalement distribuées (voir tableau 3.1.2). Il n'y a donc pas d'introduction d'erreurs sur les coefficients. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.6.1.

En premier lieu, il est intéressant de constater qu'il est impossible d'inverser les coefficients d'extinction "réels" du modèle 8. Cette mauvaise inversion se traduit par le fait que la valeur du γ_{rel} (éq. 3.5.1) est supérieure à 4. La figure 3.6.1 représente les coefficients d'extinction simulés pour ce modèle avec les incertitudes correspondantes et les coefficients d'extinction restitués après la huitième itération à partir de la granulométrie inversée. La figure 3.6.2 montre la distribution granulométrique inversée du modèle 8. Si la restitution du coefficient d'extinction est très satisfaisante, on constate une chute du nombre de particules dans la première classe qui devient de plus en plus importante si on poursuit l'itération. Pour obtenir une inversion possible des coefficients d'extinction du modèle 8, il suffit alors de modifier l'intervalle de rayons $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$. Si on opte pour un nouvel intervalle $[0.14, 1.20 \mu\text{m}]$ l'erreur systématique pour la surface, le volume, le rayon effectif et la variance effective est respectivement de 8.4, 0.4, -6.8 et 38.6%. Cet exemple rend compte de la complexité et de la sensibilité du choix de l'intervalle de rayons.

En deuxième lieu est calculée l'erreur quadratique moyenne $R^{* \text{ sys.}}$ correspondant aux erreurs systématiques pour l'ensemble des caractéristiques (S, V, r_{eff}, v_{eff}) des aérosols. Les résultats sont satisfaisants avec une valeur de $R^{* \text{ sys.}}$ inférieure à 10% pour le rayon effectif et le volume. Pour la surface, $R^{* \text{ sys.}}$ est égale à 12.3%. Ces résultats sont en accord avec ceux présentés dans le tableau 4.1.1 où $R^{* \text{ sys.}}$ valait respectivement 12.6, 3.5 et 10.3% pour la surface, le volume et le rayon effectif.

Pour une étude climatologique des données SAGE III il ne sera bien évidemment pas possible d'étudier tous les cas individuellement et il sera raisonnable de se limiter à un seul intervalle de rayon $[r_{min}, r_{max}]$, en l'occurrence $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$, qui est le meilleur

	<u>Surface</u>	<u>Volume</u>	<u>Rayon effectif</u>	<u>Variance effective</u>
	Systematique	Systematique	Systematique	Systematique
Modèle 1	3.6	1.0	-2.7	10.5
Modèle 2	-0.3	-0.6	-0.2	-7.0
Modèle 3	-24.1	-6.7	14.0	-55.2
Modèle 4	-15.1	-3.3	10.2	-72.0
Modèle 5	-1.3	-0.3	1.0	-13.8
Modèle 6	-6.6	-1.8	4.5	-18.0
Modèle 7	9.6	2.6	-7.8	30.1
Modèle 8	non disponible	non disponible	non disponible	non disponible
Modèle 9	-16.1	-4.4	10.2	-50.6
Modèle 10	-9.6	-2.6	6.4	-35.1
$R^{* \text{ sys.}}$	12.1	3.2	7.7	38.4

$R^{* \text{ sys.}}$ définit l'erreur quadratique moyenne correspondant aux erreurs systématiques pour chaque caractéristique des aérosols.

Tableau 3.6.1. Erreurs systématiques (en %) sur la surface, le volume, le rayon effectif et la variance effective pour la CLI à partir des 10 modèles réels (aucune introduction d'erreurs sur les coefficients d'extinction).

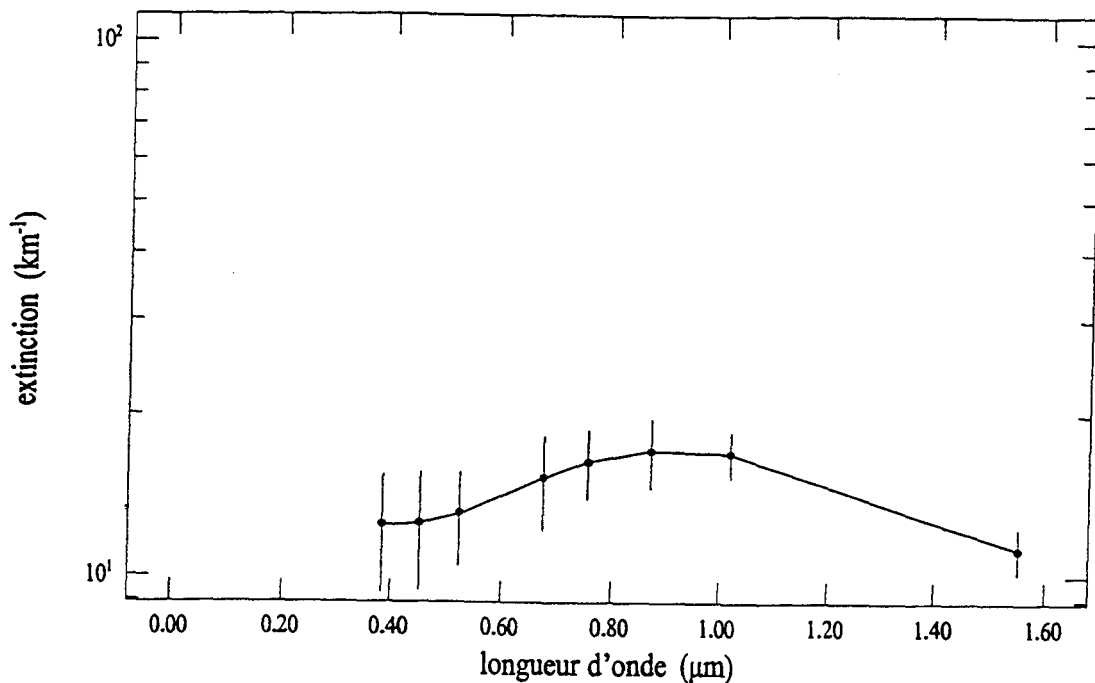


figure 3.6.1. Coefficients d'extinction simulés pour le modèle 8 avec les incertitudes correspondantes (barres verticales) et coefficients d'extinction restitués (points) à partir de la granulométrie inversée. Intervalle $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$. Fonction poids combinaison de 2 lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7 . $\gamma_{\text{rel}} > 4$.

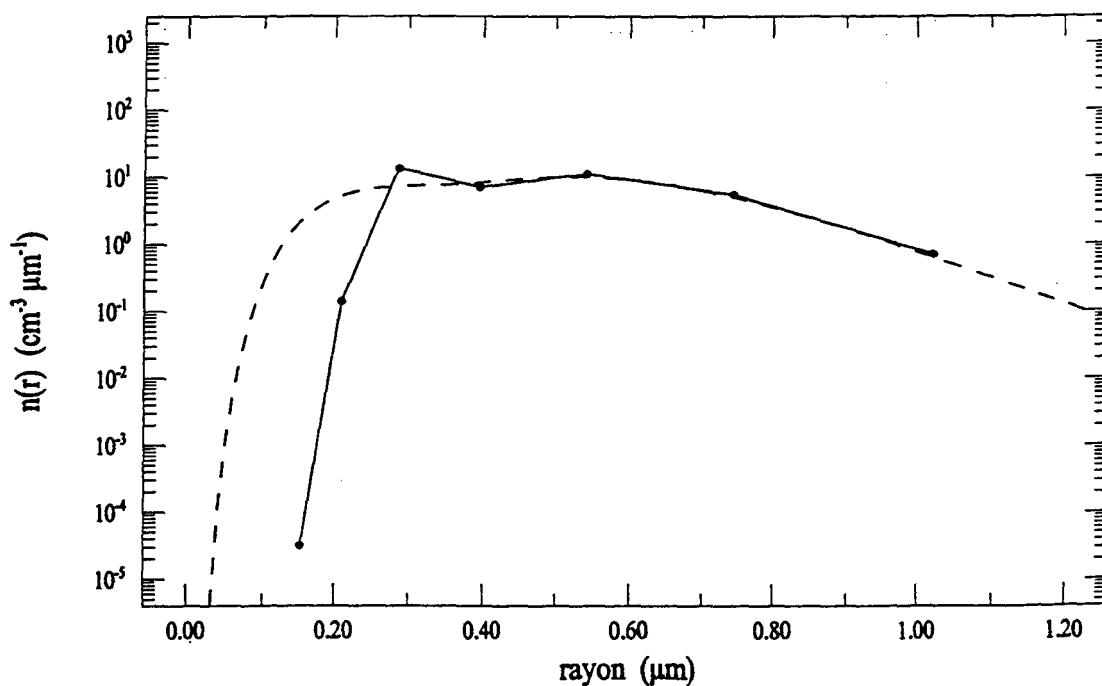


figure 3.6.2. (—) Inversion du modèle 8 (- - -). Mêmes conditions que pour la figure 3.6.1.

compromis trouvé pour rendre compte de l'ensemble des granulométries. Le chapitre suivant va proposer une caractérisation des aérosols à partir de mesures simulées pour SAGE III.

**CHAPITRE 4: CARACTERISATION DES
AEROSOLS A PARTIR DE MESURES
SIMULEES POUR SAGE III**

Nous présenterons les résultats de l'inversion linéaire contrainte dans l'intervalle de rayons [0.13, 1.20 μm] avec, sauf contre-indication, l'usage d'un indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde. L'intervalle de rayons [rayon minimal r_{\min} et rayon maximal r_{\max}] a été choisi pour être le mieux adapté pour les 10 modèles (voir section 3.5.). Est-il nécessaire de rappeler qu'il peut exister des intervalles de rayon meilleurs que [0.13, 1.20 μm] pour un type de modèle particulier? L'annexe A présente un certain nombre de résultats qui complètent cette analyse et effectue une comparaison avec une autre technique d'inversion, probablement moins populaire mais toute aussi performante, la RMST (*Randomized Minimization Search Technique*) [Heintzenberg et al., 1981, Saxena et al., (1995), Wang et al., (1996), Anderson et Saxena, (1996a)]. Les résultats de l'annexe B présentent une autre méthode d'inversion (*Least Squares Fit Method: LSM*) [Brogniez et Lenoble (1988)] effectuant un ajustement sur les variations spectrales d'extinction et proposent également une comparaison avec l'inversion linéaire contrainte. Les première, deuxième et troisième parties de ce chapitre présentent respectivement les résultats concernant des inversions effectuées à partir des huit, de sept et des six plus grandes longueurs d'onde de SAGE III. La quatrième partie est consacrée à la détermination de coefficients d'extinction.

4.1. Inversion à partir des huit longueurs d'onde de SAGE III.

4.1.1. Inversion avec sept classes de particules.

L'ensemble des résultats présentés ci-dessous provient d'inversions effectuées avec sept classes de particules par l'inversion linéaire contrainte. Ce choix semble judicieux au vu des résultats et analyses présentés dans les sections 4.1.2. et 4.1.3. pour respectivement des

inversions faites avec huit (voir l'équation 2.2.5 où $q=p$) et six (voir l'équation 2.2.5 où $q=p-2$) classes de particules.

Dans un premier temps nous nous sommes attachés à inverser des coefficients d'extinction des aérosols simulés aux canaux aérosols qui seront disponibles sur SAGE III (voir tableau 3.1.2). Les figures 3.5.8 et 3.5.9 du chapitre précédent représentent les coefficients d'extinction restitués à partir de la distribution granulométrique inversée et ceux simulés (avec leurs incertitudes associées) pour respectivement les modèles 2 et 10. Ces figures indiquent clairement que la restitution des coefficients d'extinction est satisfaisante (avec respectivement un écart quadratique résiduel ω égal (éq. 2.2.11) à 3.7 et 3.2%) pour ces 2 modèles comme elle l'est d'ailleurs pour les 8 autres.

En outre la distribution granulométrique moyenne ainsi que la déviation standard correspondante obtenues à partir des 1000 simulations pour les modèles 2 et 10 sont également représentées sur les figures 4.1.1 et 4.1.2. Pour le modèle 2 qui correspond à une distribution bimodale, le second mode est bien restitué alors qu'il est difficile de quantifier le premier mode même si ce dernier apparaît clairement, la restitution de la variation spectrale des coefficients d'extinction avait pourtant été jugée satisfaisante (figures 3.5.8 et 3.5.9). Il a été vu (section 3.5.) que la contribution des particules dont le rayon n'excède pas $0.13 \mu\text{m}$ est inférieure à 0.5% et pourrait expliquer la difficile représentation du premier mode. Steele et Turco (1997) avaient souligné la difficulté d'inversion des petites particules à partir des mesures de SAGE II car le premier mode se situe en dessous de la contrainte externe r_{min} . Le changement de pente qui apparaît pour le modèle 10 aux alentours de $0.7\text{-}0.8 \mu\text{m}$ peut s'expliquer par le fait que la contribution relative des particules dans l'intervalle $[1.0; 10 \mu\text{m}]$ à l'extinction totale est inférieure à 1% pour l'ensemble des longueurs d'onde de SAGE III. Il faut en outre noter les importantes barres d'erreurs liées au premier mode (hormis le premier

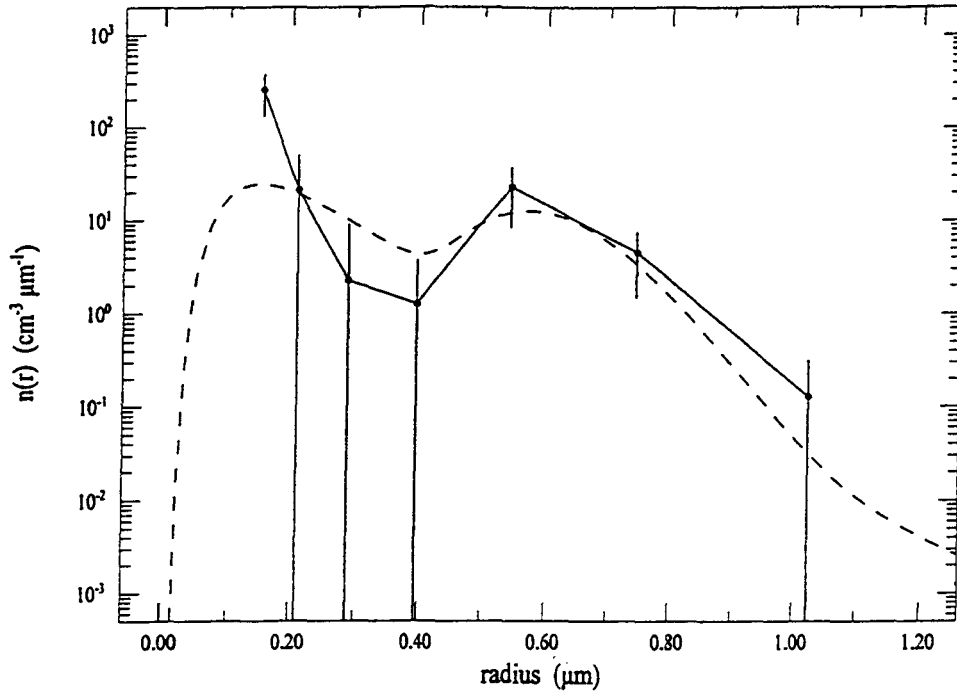


figure 4.1.1. (—●—) Inversion du modèle 2 (---) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir des 8 canaux de SAGE III pour une fonction poids combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7 . 7 classes de particules. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$. Les barres d'erreurs représentent les erreurs aléatoires.

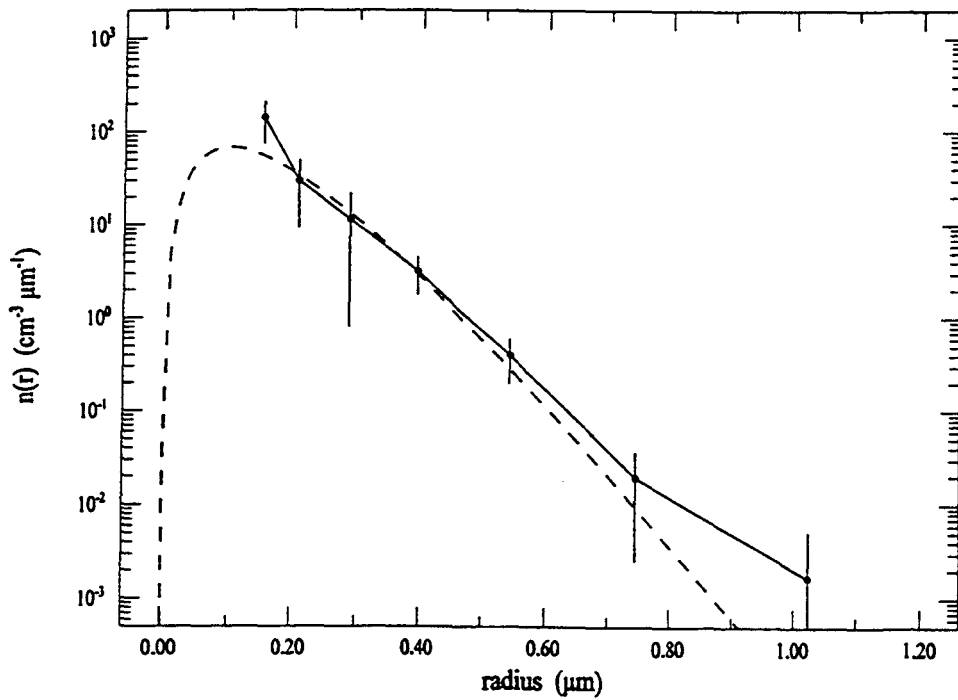


figure 4.1.2. Idem que pour la figure 4.1.1. mais pour le modèle 10.

point) ainsi qu'au minimum entre les deux modes. Chacun pourra s'étonner de la faible barre d'erreur de la première classe, ce qu'on retrouve dans la plupart des distributions granulométriques bimodales inversées. En fait celle-ci peut s'expliquer par la chute brutale du nombre de particules qu'il y a du premier mode au minimum entre les deux modes qui existe pour chaque jeu de données à inverser. On remarque que la méthode de King impose un nombre de particules élevé dans la première classe pour compenser cette chute et pour avoir une restitution des coefficients d'extinction satisfaisante, nombre qui ne varie pas beaucoup d'une inversion à l'autre pour les ψ jeux de données d'où la faible barre de dispersion.

S'il est intéressant d'avoir une bonne représentation de la distribution granulométrique, le plus important reste la détermination de l'ensemble des caractéristiques des aérosols. Le tableau 4.1.1 résume les résultats sur les erreurs estimées de la surface S , du volume V et du rayon effectif r_{eff} obtenues par la CLI. Ainsi l'erreur quadratique moyenne R^* sur S , V et r_{eff} (qu'on devrait d'ailleurs rigoureusement noter R_S^* , R_V^* et $R_{r_{\text{eff}}}^*$ d'après l'équation 3.4.2) est respectivement évaluée à environ 26.6, 11.0 et 19.1%. Pour le rayon effectif qui est le rapport entre le volume et la surface (éq. 3.3.3), nous ne pouvons pas dire qu'il y a compensation ou propagation d'erreur. Les moins bons résultats sont obtenus pour les modèles 3, 4 et 7 avec une erreur quadratique moyenne sur S supérieure à 30%. Pour les modèles 3 et 4, cela est en fait dû au choix de r_{min} et à la localisation du plus petit mode de la distribution granulométrique. Les résultats du tableau 4.1.2 indiquent une forte contribution relative des particules dans l'intervalle $[0.001, 0.13 \mu\text{m}]$ à la surface et au volume quand ces deux caractéristiques sont calculés entre 0.001 et $10 \mu\text{m}$ pour les modèles 3 et 4. Ainsi la valeur du r_{min} n'est pas suffisamment faible pour obtenir une bonne inversion de ce premier mode ou pour avoir une bonne estimation du rôle des particules dont le rayon est inférieur à r_{min} , particules qui contribuent au calcul des caractéristiques des aérosols (voir tableau 3.1.1). En outre la localisation du plus petit mode se situe en dessous du domaine de

Modèle	Surface			Volume			Rayon Effectif		
	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta S}{S}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta V}{V}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$
1	9.9	13.1	23.0	2.1	5.1	7.2	-7.3	10.7	18.0
2	14.1	9.8	23.9	2.3	4.9	7.2	-12.9	8.8	21.6
3	-14.4	17.1	31.4	-3.5	8.8	12.3	10.9	9.5	20.4
4	15.1	19.0	34.1	6.7	9.6	16.3	-7.4	12.9	20.3
5	12.3	7.1	19.4	1.0	5.2	6.3	-12.5	6.0	18.5
6	7.3	15.9	23.2	1.9	6.3	8.2	-4.0	11.1	15.1
7	20.6	16.2	36.9	5.7	6.3	12.0	-16.7	11.6	28.3
8	12.4	4.4	16.8	-0.1	5.9	6.0	-14.2	5.2	19.4
9	4.8	23.4	28.2	3.3	13.5	16.8	1.2	12.2	13.4
10	6.4	15.5	21.9	3.2	7.8	11.0	-2.2	8.3	10.5
R*			26.6			11.0			19.1

R* définit l'erreur quadratique moyenne pour chaque caractéristique des aérosols (éq. 3.4.2).

Tableau 4.1.1. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III (sept classes de particules). Intervalle d'inversion [0.13, 1.20 μm].

		Contribution Relative à S ou V (%)		
Caractéristiq.	Intervalle	Modèle 3	Modèle 4	Modèle 7
Surface S	10 ⁻³ à 0.13 μm	52.2	28.4	<0.9
Volume V	idem	25.7	10.4	<0.3
Caractéristiq.	Intervalle	Modèle 3	Modèle 4	Modèle 7
Surface S	1.20 à 10 μm	<0.1	<0.1	<0.1
Volume V	idem	<0.5	<0.1	<0.1

Tableau 4.1.2. Contribution relative des particules dans une certaine gamme de rayons (intervalle) à la surface S et au volume V quand ces deux caractéristiques sont calculés entre 0.001 et 10 μm pour les modèles 3, 4 et 7 (i. e. contribution relative pour la surface = (surface(intervalle)-surface(totale))/surface(totale)]*100).

sensibilité de l'instrument SAGE III. Pour le modèle 7, on remarque que la valeur du nombre de particules dans la première classe est surévaluée.

Nous avons déjà signalé dans la section 3.5. que la sélection de l'intervalle de rayons $[r_{\min}, r_{\max}]$ est fondamentale et que des intervalles de rayons plus appropriés auraient pu être choisis pour chacun des 10 modèles de cette étude. Aussi l'exemple des figures 4.1.3 et 4.1.4 présente les distributions granulométriques du modèle 3 pour deux intervalles de rayons différents: $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$ utilisé jusqu'à maintenant et $[0.12, 1.25 \mu\text{m}]$. Les erreurs quadratiques moyennes R^* pour la surface, le volume et le rayon effectif sont respectivement de 31.4, 12.3 et 20.4 % pour le premier intervalle et de 24.2, 9.9 et 17.0 % pour le second. Le fait qu'il n'est pas facile de distinguer les deux courbes des figures 4.1.3 et 4.1.4 rend compte des difficultés rencontrées pour choisir une gamme de rayons judicieuse. Bien que la qualité de l'inversion relève de l'intervalle de rayons considéré, le choix optimum de cet intervalle est lié également à la forme de la distribution granulométrique non connue *a priori*. Par exemple on pourra réduire l'erreur totale de quelques dixièmes de pour-cent sur les caractéristiques des aérosols en ayant la chance d'avoir un centre de classes situé au niveau du minimum entre les deux modes (voir l'exemple du modèle 8 dans la section 4.2.).

Jusqu'à maintenant nous nous sommes concentrés sur la détermination des surfaces, volumes et rayons effectifs. Intéressons-nous maintenant à la variance effective v_{eff} et au moment d'ordre quatre M_4 . Les valeurs théoriques des variances effectives correspondant aux dix modèles sont données par le tableau 4.1.3.

Le tableau 4.1.4 présente les erreurs estimées (section 3.4) sur ce moment d'ordre quatre et sur la variance effective obtenus par l'application de l'inversion linéaire contrainte. Si les valeurs du moment d'ordre quatre déterminées après inversion sont satisfaisantes avec

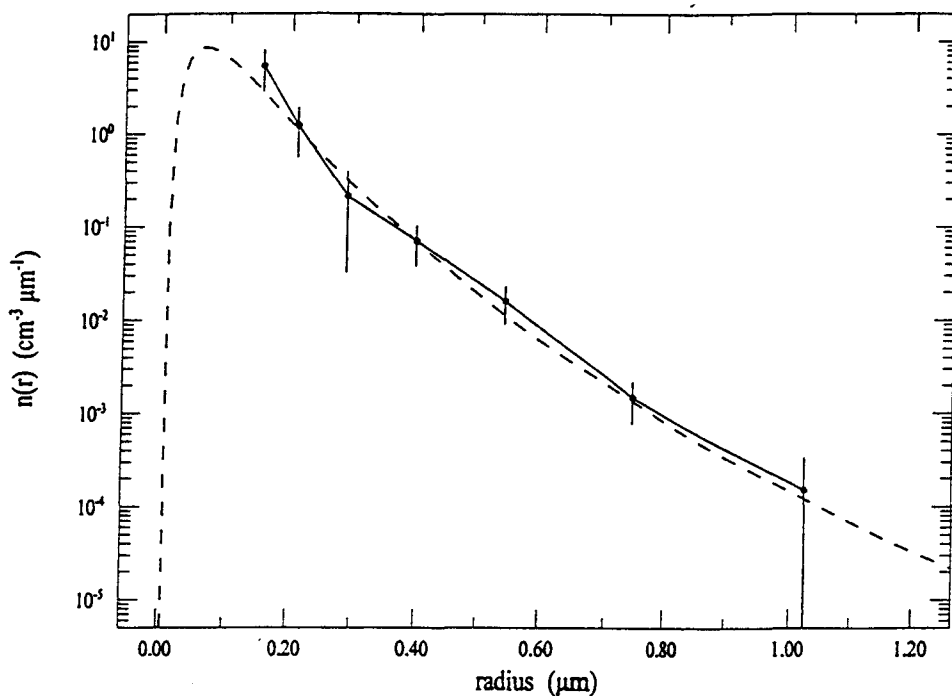


figure 4.1.3. (—●—) Inversion du modèle 3 (- - -) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir des 8 canaux de SAGE III pour une fonction poids combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7. 7 classes de particules. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \approx 10^{-3}$. Les barres d'erreurs représentent les erreurs aléatoires.

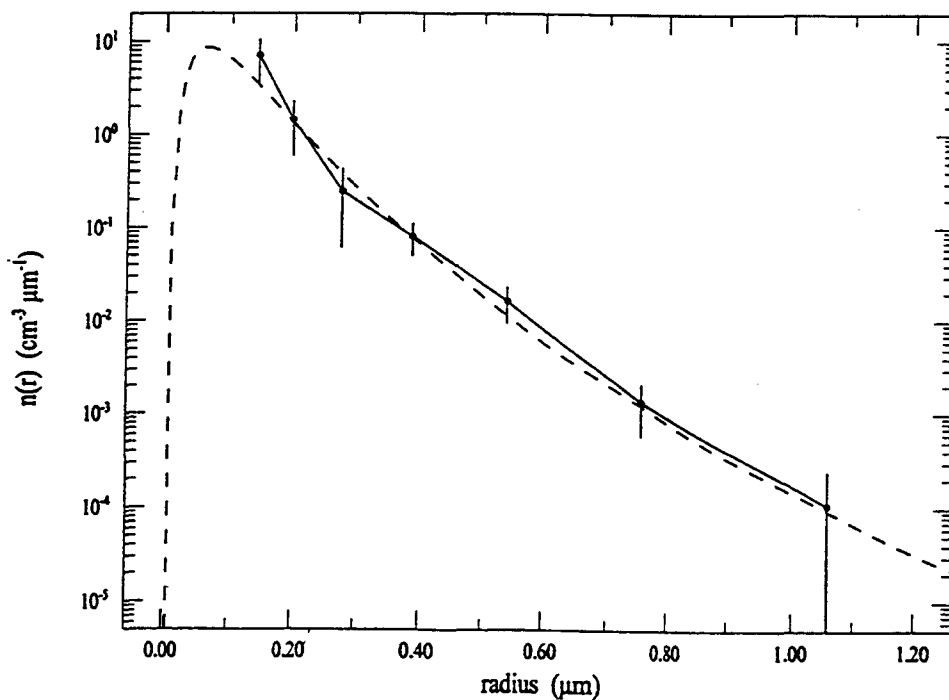


figure 4.1.4. Idem que pour la figure 4.1.3. mais pour l'intervalle [0.12, 1.25 μm]

	Modèle 1	Modèle 2	Modèle 3	Modèle 4	Modèle 5
variance effective	0.19	0.09	0.41	0.23	0.09
	Modèle 6	Modèle 7	Modèle 8	Modèle 9	Modèle 10
variance effective	0.28	0.14	0.10	0.25	0.20

Tableau 4.1.3. Valeurs "réelles" de la variance effective correspondant aux dix modèles.

Modèle	M_4			Variance effective		
	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta M_4}{M_4}$	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	1.6	8.3	9.8	31.5	29.5	61.0
2	2.0	8.7	10.7	60.4	28.8	89.2
3	-0.6	6.1	6.8	-35.5	18.3	53.8
4	5.1	6.0	11.1	26.7	23.9	50.5
5	0.2	9.9	10.1	58.9	25.3	84.3
6	1.2	6.6	7.8	16.0	24.6	40.7
7	2.6	6.7	9.3	52.8	29.2	82.0
8	-2.8	12.5	15.4	54.2	26.6	80.8
9	3.4	7.2	10.6	1.6	24.4	26.1
10	2.8	5.3	8.1	12.9	24.0	36.9
R*			10.2			64.2

Tableau 4.1.4. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur le moment M_4 et la variance effective pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III (sept classes de particules). Intervalle d'inversion [0.13, 1.20 μm]. R* représente l'erreur quadratique moyenne (éq. 3.4.2).

une valeur R^* proche de 10%, il n'en va pas de même pour le calcul de la variance effective où les erreurs pour les différents moments d'ordre 2, 3 et 4 tendent à se propager. On atteint ainsi des valeurs inutilisables avec une valeur de R^* supérieure à 60%. Ces résultats ne sont pas propres à la CLI [voir annexe A, Anderson et al., (1998)]. Pourtant Livingston et Russell (1989) avec la méthode PCA (*Principal Component Analysis*) et supposant une distribution lognormale dans leur inversion furent capables de déterminer des valeurs raisonnables pour les variances effectives à partir de mesures SAGE II simulées, qui étaient engendrées à partir de modèles lognormaux. C'est toujours avec la méthode PCA appliquée aux mesures SAGE II que Thomason et Poole (1993) notèrent que les moments d'ordre supérieur ou égal à 4 étaient fortement dépendants des suppositions faites sur les modèles (c'est-à-dire les *first guess*) des distributions granulométriques. Ben-David et al., (1998) allèrent même jusqu'à affirmer que ces caractéristiques étaient plus sensibles aux suppositions effectuées qu'aux données mêmes! Pour notre cas le choix de l'intervalle de rayons ainsi que le fait que l'inversion linéaire contrainte, tout comme la RMST d'ailleurs, n'a aucun *a priori* sur le modèle de distribution granulométrique inversé, empêchent toute caractérisation correcte et utilisable des variances effectives des données SAGE III.

4.1.1.1. Influence de l'indice de réfraction pour l'inversion linéaire contrainte (CLI).

La sensibilité de l'inversion vis à vis d'un indice de réfraction constant a été étudiée. En effet, pour l'inversion des données SAGE III, les indices de réfraction ne seront pas connus. Ce sont toujours les mêmes 1000 jeux de données qui sont utilisés (ils étaient simulés, rappelons-le avec un indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde) mais cette fois-ci la CLI se fait avec un indice de réfraction constant. Celle-ci a pu être effectuée en calculant les sections efficaces d'extinction (éq. 2.2.1) par la théorie de Mie en prenant un

indice (éq. 2.1.2) dont la partie réelle est égale à 1.45 et la partie imaginaire est nulle, valeur compatible avec 75% de solution d'acide sulfurique à des températures stratosphériques typiques [Russell et al., (1996)]. Les tableaux 4.1.5 et 4.1.6 (à comparer aux tableaux 4.1.1 et 4.1.4) présentent l'ensemble des résultats concernant les erreurs estimées sur la surface, le volume, le rayon effectif, la variance effective et le moment d'ordre quatre.

Si le volume est retrouvé avec la même précision (11% d'erreur quadratique moyenne) en comparaison avec un indice dépendant de la longueur d'onde, les résultats concernant la détermination de la surface et du rayon effectif sont moins satisfaisants avec respectivement R^* égal à 28.1 et 23% contre 26.6 et 19.1 %. Il en est de même pour le moment d'ordre quatre et la variance effective où R^* perd respectivement 3.3% et 2.7%. Cette dégradation se traduit principalement par l'augmentation de l'erreur systématique.

Ces résultats sont néanmoins satisfaisants et l'ensemble des caractéristiques des aérosols pourra être déterminé avec un indice de réfraction constant à partir des données SAGE III.

4.1.1.2. Comparaison avec la Least Squares Fit Method (LSFM).

La méthode des moindres carrés (LSFM) [Brogniez et Lenoble, (1988)] (voir annexe B) consiste à effectuer un ajustement sur les mesures spectrales d'extinction $\sigma(\lambda)$ données par les huit différents canaux de SAGE III. Ce sont là encore les mêmes 1000 jeux de données pour chacun des dix modèles qui seront utilisés afin de pouvoir comparer cette technique avec l'inversion linéaire contrainte. Ces 1000 jeux de données seront tous inversés. La loi d'évolution spectrale a été modélisée par l'expression analytique suivante:

$$\ln \sigma(\lambda) = \ln \sigma(1.550) - a \cdot \ln(\lambda / 1.550) - b \cdot \ln^2(\lambda / 1.550) \quad (4.1.1)$$

$r_{\min}=0.13 \mu\text{m}, r_{\max}=1.20 \mu\text{m}$									
Modèle	Surface			Volume			Rayon effectif		
	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta S}{S}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta V}{V}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$
1	13.0	13.6	26.6	-0.7	5.2	5.9	-14.2	10.6	24.9
2	14.7	12.8	27.5	-1.2	5.5	6.6	-17.1	10.5	27.5
3	-13.1	17.4	30.4	-4.2	9.3	13.5	9.2	9.0	18.1
4	16.9	18.2	35.1	6.2	9.5	15.7	-10.6	11.7	22.3
5	14.9	8.9	23.8	-2.4	5.2	7.6	-19.7	6.9	26.6
6	7.5	15.5	23.0	-0.4	6.6	7.0	-6.9	10.4	17.2
7	22.0	15.7	37.7	3.9	6.1	10.0	-21.1	11.2	32.4
8	13.9	5.4	19.3	-4.5	5.5	10.0	-21.1	6.1	27.2
9	5.3	24.6	30.0	2.8	14.6	17.3	0.3	11.9	12.2
10	6.5	15.6	22.1	2.1	8.2	10.3	-3.4	8.0	11.4
R*			28.1			11.0			23.0

Tableau 4.1.5. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III (sept classes de particules). Indice de réfraction constant égal à 1.45.

$r_{\min}=0.13 \mu\text{m}, r_{\max}=1.20 \mu\text{m}$						
Modèle	Systémat.	\overline{M}_4		Variance effective		
		Aléatoire	$\frac{\Delta M_4}{M_4}$	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	-6.9	6.9	13.8	34.4	29.9	64.3
2	-5.1	7.9	13.0	61.4	33.5	95.0
3	-6.3	6.2	12.4	-53.9	20.6	74.5
4	-0.1	5.8	5.8	20.4	24.1	44.5
5	-8.4	8.7	17.1	62.1	25.5	87.6
6	-5.3	5.9	11.2	10.6	23.9	34.5
7	-3.4	6.0	9.4	51.8	28.5	80.3
8	-13.2	11.8	25.0	56.0	23.9	79.9
9	-1.2	7.8	8.9	-14.6	27.3	41.9
10	-2.0	5.4	7.4	-0.5	25.6	26.0
R*			13.5			66.9

Tableau 4.1.6. Idem que pour le tableau 4.1.5 mais pour \overline{M}_4 et la variance effective.

où les paramètres a et b sont obtenus par la méthode des moindres carrés. La longueur d'onde 1.550 μm est choisie comme référence car c'est le canal qui fournira probablement la plus petite erreur sur la mesure du coefficient d'extinction en comparaison avec les autres canaux de SAGE III. Par ailleurs un jeu de 100 valeurs de rayons effectifs (0.01, 0.02, ..., 0.99, 1.00 μm) et un jeu de 100 valeurs de variances effectives (0.01, 0.02, ..., 0.99, 1.00) ont permis de donner 10000 modèles lognormaux unimodaux pour lesquels des valeurs de (a,b) ont été déterminées. On est ainsi capable de d'effectuer un ajustement sur la variation spectrale des coefficients d'extinction simulés (ou mesurés) et de calculer les valeurs de a et b. La comparaison des valeurs de (a,b) obtenues pour la simulation (ou pour les mesures) avec les valeurs de (a,b) obtenues pour les 10000 modèles unimodaux permet la détermination du modèle le mieux adapté et par conséquent du rayon effectif et de la variance effective (voir annexe B).

Les tableaux 4.1.8 et 4.1.7 présentent respectivement pour la LSFM les erreurs estimées sur le rayon effectif r_{eff} , la variance effective v_{eff} , la surface S et le volume V. S et V sont tous les deux, comme pour la CLI, déterminés à partir de la granulométrie inversée. Pour une particule cela revient à calculer:

$$S = \frac{4 \cdot \pi \cdot r_{\text{eff}}^2}{(v_{\text{eff}} + 1)^3} \quad (4.1.2)$$

$$V = \frac{4}{3} \cdot \pi \cdot \frac{r_{\text{eff}}^3}{(v_{\text{eff}} + 1)^3}. \quad (4.1.3)$$

En premier lieu, il est impératif de s'attarder sur la restitution des coefficients d'extinction des aérosols pour la LSFM comme nous l'avons effectué pour la CLI (voir la section 3.5. avec la figure 3.5.8 pour le modèle 2). Dans l'annexe B sont représentées

Modèle	Systémat.	<u>Surface</u>		Systémat.	<u>Volume</u>	
		Aléatoire	$\frac{\Delta S}{S}$		Aléatoire	$\frac{\Delta V}{V}$
1	-12.6	5.7	18.3	-1.0	4.5	5.5
2	-4.2	6.5	10.6	1.0	5.9	6.9
3	9.9	38.3	48.2	2.0	14.4	16.4
4	-12.4	26.5	38.9	-3.4	10.3	13.7
5	-2.6	6.6	9.1	2.0	7.5	9.5
6	-18.1	12.0	30.1	-4.5	5.6	10.0
7	-1.6	9.0	10.6	0.1	4.7	4.8
8	0.1	6.0	6.1	4.9	11.9	16.8
9	4.0	57.0	61.0	-0.7	20.8	21.5
10	-3.3	25.8	29.1	-1.5	10.4	11.9
R*			31.6*			12.8**

Tableau 4.1.7. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume pour la LSFM à partir des huit canaux de SAGE III. Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde (voir tableau 3.1.2).

* R* = 26.0 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 11.3 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

Modèle	Systémat.	<u>Rayon effectif</u>		Systémat.	<u>Variance effective</u>	
		Aléatoire	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$		Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	10.4	4.0	14.4	-35.0	45.5	80.5
2	5.1	4.7	9.7	14.1	83.1	97.1
3	-0.4	21.1	21.5	11.8	52.2	64.1
4	11.2	13.4	24.6	-44.1	83.4	127.6
5	4.5	5.5	10.0	16.7	100.2	116.9
6	12.2	6.9	19.1	-29.6	45.4	75.0
7	2.1	5.3	7.3	11.4	46.5	57.8
8	4.7	8.6	13.3	37.6	102.6	140.2
9	8.2	23.5	31.7	-6.6	93.3	99.9
10	4.9	13.1	18.0	-11.0	63.0	74.0
R*			18.4*			97.0**

Tableau 4.1.8. Idem que pour le tableau 4.1.7 mais pour r_{eff} et v_{eff} .

* R* = 16.1 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 99.1 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

figures 3 et 4 les coefficients d'extinction en aérosol simulés par la théorie de Mie pour deux situations volcaniques correspondant à nos modèles 2 et 8 avec les incertitudes correspondantes ainsi que les coefficients d'extinction obtenus en inversant ces mêmes données. Les résultats sont un peu moins satisfaisants avec la LSFM qu'avec la CLI avec pour écart quadratique résiduel ω égal à 8.5 et 6.3% pour respectivement les modèles 2 et 8. Pour la CLI ω a pour valeur 3.7 et 4.3% pour respectivement les modèles 2 et 8.

En deuxième lieu, pour le rayon effectif, en comparaison avec la CLI (voir tableaux 4.1.1 et 4.1.4), il s'avère que la LSFM est légèrement plus efficace avec une erreur quadratique moyenne R^* égale à 18.4 contre 19.1%. Par contre la valeur pour R^* de la variance effective avoisine les 100%! Par ailleurs les résultats pour la surface et le volume sont moins satisfaisants avec la LSFM avec un R^* respectivement égal à 31.6 et 12.8% contre 26.6 et 11.0% pour la CLI. Il faut souligner, sans raison évidente, que les deux modèles gamma modifiés 9 et 10 ne sont pas identifiés de façon précise et contribuent fortement à la dégradation des résultats. Ainsi sans la considération de ces deux modèles, le R^* pour la surface et le volume tombe respectivement à 26.0 et 11.3% pour la LSFM. Pour la CLI, toujours sans la considération des modèles 9 et 10, le R^* pour la surface et le volume restent pratiquement inchangés avec une valeur respective de 26.9 et de 10%.

En troisième lieu, l'erreur aléatoire est nettement prépondérante par rapport à l'erreur systématique, ce qui apparaît moins nettement pour l'inversion linéaire contrainte. Ainsi par exemple pour le volume, l'erreur systématique est inférieure à 5% pour chaque modèle alors que l'erreur aléatoire est supérieure à 5% pour neuf des dix modèles. Cette erreur aléatoire est essentiellement élevée pour les modèles 3, 4, 9 et 10. En fait le problème qui se crée et qui revient inexorablement pour la majorité des méthodes d'inversion est le suivant: elles rencontrent toutes des difficultés pour déterminer la variance effective. Ce sont surtout les variances effectives élevées qui posent problème pour la LSFM. Or de grandes valeurs de

variance effective correspondent aux modèles précités (voir tableau 4.1.3). Ainsi par exemple pour le modèle 9 où la valeur théorique de v_{eff} est égale à 0.25, pour les 1000 jeux de données la variance effective oscille entre 0.01 et 1.00 après inversion avec 117 jeux où elle est supérieure à 0.50! Comme la variance effective intervient de manière explicite dans le calcul de la surface S (éq. 4.1.2) et du volume V (éq. 4.1.3) (voir également le tableau 3.1.1), la pléthore de ces 117 valeurs ne favorise pas une bonne détermination de S et de V et fait augmenter par la même occasion l'erreur aléatoire. Par contre pour le modèle 2 où la valeur théorique de v_{eff} est égale à 0.09, seuls 10 jeux de données sur 1000 fournissent une valeur de la variance effective supérieure à 0.50, la valeur maximum étant 0.61. Faut-il alors s'étonner d'une meilleure caractérisation de la surface, du volume et du rayon effectif pour ce genre de modèles? En conséquence les complications liées à la détermination de la variance effective expliquent une restitution moins satisfaisante des coefficients d'extinction pour la LSFM par rapport à la CLI.

En quatrième lieu, enfin, il est intéressant de constater que la LSFM a une erreur systématique plus faible que la CLI. En effet en calculant l'erreur quadratique moyenne $R^{* \text{ sys.}}$ correspondant aux erreurs systématiques pour la surface pour les deux méthodes, on s'aperçoit que pour la CLI, $R^{* \text{ sys.}}$ est égal à 12.6% alors que pour la LSFM, $R^{* \text{ sys.}}$ est inférieure à 9%. Cependant si on détermine parallèlement l'erreur quadratique moyenne $R^{* \text{ ran.}}$ correspondant aux erreurs aléatoires pour la surface pour les deux méthodes, on remarque que $R^{* \text{ ran.}}$ est égal à 15.1% pour la CLI alors que ce paramètre est supérieur à 25% pour la LSFM! Ainsi si la LSFM présente une meilleure valeur des caractéristiques des aérosols par rapport à la CLI, l'erreur aléatoire, est nettement plus importante. Une explication séduisante aurait pu se trouver dans le fait que le nombre de jeux de mesures inversés (ψ pour la CLI et 1000 pour la LSFM) est différent. Seulement si on inverse les ψ jeux de mesures, valables pour la CLI, par la LSFM, il s'avère que le $R^{* \text{ ran.}}$ est toujours de l'ordre de 25% pour l'ensemble des 10 modèles. Par ailleurs, pour les structures bimodales,

il est intéressant de constater que les résultats sont aussi satisfaisants avec la LSFM qu'avec la CLI.

4.1.1.3. Influence de l'indice de réfraction pour la LSFM.

Comme pour l'inversion linéaire contrainte, la sensibilité de l'inversion par la LSFM vis à vis d'un indice de réfraction a été testée. Ce sont toujours les mêmes 1000 jeux de données qui sont utilisés (ils étaient simulés, rappelons-le avec un indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde) mais cette fois-ci l'inversion par la LSFM se fait avec un indice de réfraction (éq. 2.1.2) toujours réel et pris constant à 1.45. Les tableaux 4.1.9 et 4.1.10 présentent l'ensemble des résultats concernant les erreurs estimées sur la surface, le volume, le rayon effectif et la variance effective.

Le rayon effectif reste pratiquement stable quant à sa détermination avec pour erreur quadratique moyenne R^* une valeur proche de 18% (voir avec tableaux 4.1.7 et 4.1.8). Pour la variance effective, R^* culmine à près de 125%! Enfin, comme pour la CLI, la surface est déterminée avec moins de précision en comparaison avec un indice dépendant de la longueur d'onde, R^* passant de 31.6 à 34.2%. Le volume perd en précision également (15.1 contre 12.8%). Si la dégradation se traduit principalement par l'augmentation de l'erreur systématique pour le volume, il n'en va pas de même pour la surface où l'augmentation de l'erreur aléatoire est aussi importante que pour l'erreur systématique.

4.1.2. Inversion avec huit classes de particules.

Modèle	Systémat.	<u>Surface</u>		Systémat.	<u>Volume</u>	
		Aléatoire	$\frac{\Delta S}{S}$		Aléatoire	$\frac{\Delta V}{V}$
1	-14.6	5.6	20.3	-6.2	4.4	10.6
2	-5.6	6.4	12.0	-4.3	5.6	9.9
3	7.3	43.0	50.3	-0.1	16.2	16.3
4	-17.7	26.8	44.4	-7.4	10.7	18.1
5	-4.0	6.6	10.6	-3.3	7.1	10.4
6	-21.7	12.1	33.8	-8.9	5.7	14.6
7	-4.5	9.0	13.5	-4.4	4.8	9.1
8	-1.2	6.1	7.3	-0.4	11.3	11.7
9	-0.1	62.1	62.2	-3.5	22.5	26.0
10	-9.4	26.1	35.5	-5.2	10.9	16.1
R*			34.2*			15.1**

Tableau 4.1.9. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume pour la LSM à partir des huit canaux de SAGE III. Indice de réfraction constant égal à 1.45.

* R* = 28.6 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 13.0 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

Modèle	Systémat.	<u>Rayon effectif</u>		Systémat.	<u>Variance effective</u>	
		Aléatoire	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$		Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	7.5	3.8	11.2	-65.0	47.8	112.8
2	1.4	4.5	6.0	5.4	77.8	83.2
3	1.5	21.7	23.2	-8.5	60.8	69.4
4	11.7	13.0	24.7	-103.1	100.2	203.2
5	0.8	5.3	6.0	11.3	92.6	103.8
6	11.2	6.7	17.9	-67.5	50.9	118.4
7	0.6	5.1	5.7	-17.7	54.5	72.3
8	0.7	8.1	8.7	34.2	96.9	131.1
9	9.9	22.7	32.6	-42.7	112.0	154.7
10	6.9	12.6	19.5	-60.3	77.8	138.1
R*			17.9*			124.9**

Tableau 4.1.10. Idem que pour le tableau 4.1.9 mais pour r_{eff} et v_{eff} .

* R* = 14.9 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 118.8 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

L'inversion se fait toujours à partir de huit longueurs d'onde et l'intervalle de rayons [0.13; 1.20 μm] est le même que précédemment.

En premier lieu, la restitution des coefficients d'extinction est moins satisfaisante qu'avec une inversion avec sept classes de particules. En effet, par exemple pour les modèles 1, 5 et 8, l'écart quadratique résiduel ω est respectivement égal à 2.3, 6.5 et 6.7% contre 2.1, 5.8 et 4.3% pour une inversion avec sept classes.

En second lieu, le tableau 4.1.11 (à comparer au tableau 4.1.1) présente les erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III. Pour la surface, le volume et le rayon effectif, l'erreur quadratique moyenne R^* vaut respectivement 33.4, 30.3, 22.5% (contre 26.6, 11.0, 19.1% pour une inversion avec sept classes). Cette dégradation des résultats s'explique par le fait que la valeur de la distribution granulométrique inversée pour la première classe est surévaluée. Pour une inversion avec 7 classes, la première classe [0.13, 0.179 μm] a pour "centre" 0.152 μm . Pour une inversion avec 8 classes, la première classe [0.13, 0.171 μm] nécessairement plus étroite que la précédente a pour "centre" 0.149 μm . On constate qu'il est plus difficile de déterminer la valeur de la distribution granulométrique inversée pour la première classe à 0.149 μm qu'à 0.152 μm . L'intervalle [0.13, 1.20 μm] est probablement mal adapté.

4.1.3. Inversion avec six classes de particules.

L'inversion se fait toujours à partir de huit longueurs d'onde et l'intervalle de rayons [0.13; 1.20 μm] est le même que précédemment.

En premier lieu, la restitution des coefficients d'extinction est moins satisfaisante qu'avec une inversion avec sept classes de particules mais est meilleure en comparaison avec

Modèle	Surface			Volume			Rayon effectif		
	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta S}{S}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta V}{V}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$
1	11.6	12.4	24.0	8.6	13.6	22.3	-2.3	14.9	17.2
2	20.2	11.4	31.6	9.2	14.6	23.8	-13.3	11.9	25.2
3	-9.5	16.0	25.4	1.6	9.7	11.3	11.6	13.6	25.2
4	22.7	15.4	38.0	14.4	17.7	32.1	-9.0	18.5	27.5
5	22.6	15.0	37.6	15.8	24.5	40.3	-9.7	11.4	21.2
6	11.5	15.3	26.8	8.6	14.8	23.4	-1.5	18.3	19.7
7	25.2	14.8	39.9	11.7	16.3	28.0	-16.3	16.8	33.1
8	25.9	18.7	44.6	21.9	30.0	51.9	-7.2	11.1	18.3
9	10.5	21.9	32.4	7.8	12.7	20.4	-0.2	14.1	14.3
10	11.4	15.3	26.7	7.7	11.5	19.2	-2.7	14.3	17.0
R*			33.4			30.3			22.5

Tableau 4.1.11. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III (huit classes de particules). Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde (voir tableau 3.1.2). Intervalle d'inversion [0.13, 1.20 μm]. R* représente l'erreur quadratique moyenne (éq. 3.4.2).

une inversion avec huit classes. En effet, par exemple pour les modèles 1, 5 et 8, l'écart quadratique résiduel ω est respectivement égal à 1.9, 5.9 et 5.5% contre 2.1, 5.8 et 4.3% pour une inversion avec sept classes.

En second lieu, le tableau 4.1.12 (à comparer aux tableaux 4.1.1 et 4.1.11) présente les erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III. Les résultats sont moins satisfaisants en comparaison avec les inversions avec sept classes de particules. En effet, pour la surface, le volume et le rayon effectif, l'erreur quadratique moyenne R^* vaut respectivement 32.2, 59.7, 24.2% (contre 26.6, 11.0, 19.1%). Cette dégradation des résultats s'explique par le fait que la valeur du nombre de particules de la dernière classe est surévaluée seulement sur quelques cas des ψ (voir sections 3.1. et 3.4.) cas convergents. Par exemple pour le modèle 4, sur les 1000 jeux de données, on a 495 cas convergents qui ont été moyennés pour fournir les résultats du tableau 4.1.12. Les valeurs théoriques de la surface S et du volume V pour ce modèle sont respectivement $6.57 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ et $0.62 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$. Sur les 495 cas ci-dessus on a en fait 11 cas où la valeur de S est supérieure à $10 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ et 13 cas où la valeur de V est supérieure à $2 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$. Le cas le plus désastreux est celui où S est égale à $25.02 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ et V est égale à $8.02 \mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$. La figure 4.1.5 représente les coefficients d'extinction restitués à partir de la distribution granulométrique inversée et ceux simulés (avec leurs incertitudes associées) pour ce cas particulier du modèle 4. Si la restitution du coefficient d'extinction n'est pas excellente, force est de constater qu'aucun coefficient restitué ne se situe à l'extérieur des barres d'incertitudes. Il n'y avait donc pas moyen d'éliminer ce cas difficile. Cette dégradation des résultats se manifeste par une hausse sensible de l'erreur aléatoire surtout au niveau de la détermination du volume. L'intervalle $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$ est là encore probablement mal adapté.

Modèle	Surface			Volume			Rayon effectif		
	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta S}{S}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta V}{V}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$
1	10.5	19.4	29.9	12.2	47.3	59.5	0.3	18.0	18.3
2	12.4	9.6	21.9	3.3	10.7	14.0	-9.8	9.6	19.4
3	-15.2	17.0	32.1	-2.4	9.0	11.4	12.5	10.7	23.2
4	13.4	22.3	35.7	17.8	77.4	95.2	2.4	32.3	34.6
5	12.0	12.4	24.5	4.5	16.5	21.0	-8.8	7.0	15.8
6	6.1	21.7	27.8	9.9	66.9	76.9	2.5	22.5	25.0
7	21.4	31.3	52.6	15.4	96.5	111.9	-10.6	21.8	32.4
8	20.7	18.8	39.5	17.2	32.1	49.3	-6.2	11.4	17.6
9	-1.7	24.5	26.2	1.6	15.2	16.7	6.4	16.6	23.1
10	2.5	15.2	17.7	5.6	27.6	33.2	3.9	21.2	25.1
R*			32.2			59.7			24.2

Tableau 4.1.12. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir des huit canaux de SAGE III (six classes de particules). Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde (voir tableau 3.1.2). Intervalle d'inversion [0.13, 1.20 μm]. R* représente l'erreur quadratique moyenne (éq. 3.4.2).

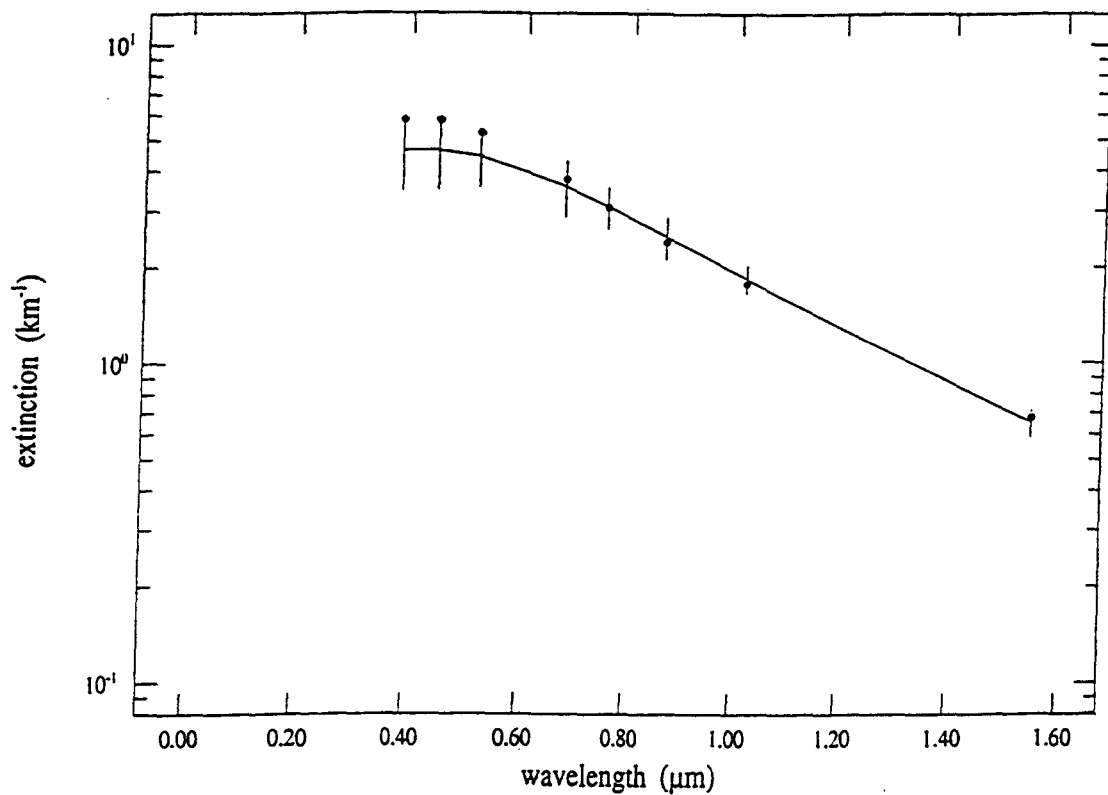


figure 4.1.5. Coefficients d'extinction simulés pour le modèle 4 avec les incertitudes correspondantes (barres verticales) et coefficients d'extinction restitués (points) à partir de la granulométrie inversée d'un cas particulier du modèle 4. Conditions d'inversion: intervalle [0.13, 1.20 μm], fonction poids combinaison de 2 lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7, 6 classes de particules, valeur de $\gamma_{rel} \cong 10^{-3}$.

4.2. Inversion à partir de sept longueurs d'onde de SAGE III.

Dans cette partie nous nous sommes attachés à définir quel type d'information était susceptible d'être fourni par chaque canal spécifique. Nous avons donc éliminé un des huit coefficients d'extinction et procédé aux inversions toujours par la même méthode linéaire contrainte en tenant compte des sept autres canaux restants. Pour pouvoir effectuer une étude comparative les inversions ont été accomplies à partir du même jeu de 1000 (qui se ramène en fait à un nombre ψ) mesures simulées pour chaque modèle pour avoir une estimation des incertitudes pour tous les paramètres calculés. Les inversions se font toutes avec six classes de particules, c'est-à-dire le nombre de longueurs d'onde moins l'unité. En premier lieu, dans la mesure où la diffusion Rayleigh augmente avec les courtes longueurs d'onde, on ne tient pas en compte de la valeur erronée de l'extinction à $0.385 \mu\text{m}$ aux altitudes comprises entre 10 et 13 km. Il est intéressant de noter que les résultats obtenus en éliminant ce canal reviennent à voir si l'algorithme d'inversion est capable de fournir des informations jusqu'à des altitudes inférieures à 10 km. En effet la donnée d'extinction à $0.385 \mu\text{m}$ en dessous de cette altitude, si elle est disponible, sera entachée d'une forte incertitude et, par conséquent, ne sera peut-être pas exploitable. Les longueurs d'onde extrêmes (0.385 et $1.55 \mu\text{m}$) sont considérées séparément dans la mesure où elles sont censées fournir des informations sur les plus petites et plus grandes particules. L'ensemble des résultats se situe dans les tableaux 4.2.1 et 4.2.2 (à comparer au tableau 4.1.1 pour huit longueurs d'onde).

Force est de constater que la suppression du canal $0.385 \mu\text{m}$ dégrade l'inversion d'environ 5 à 9% pour l'ensemble des trois caractéristiques (S , V et r_{eff}). Ces différences sont probablement dues à l'intervalle de rayon choisi [0.13 - $1.20 \mu\text{m}$] pour l'inversion. La détermination de la surface est améliorée de 1 à 3% quand la longueur d'onde $1.550 \mu\text{m}$ est enlevée. Cependant le rayon effectif perd en précision (2%) tout comme le volume (8%). De par ces résultats on se rend compte que, dans la majorité des cas, les canaux extrêmes 0.385

Inversion Linéaire Contrainte												
6 classes de particules,												
$r_{\min} = 0.13 \mu\text{m}$, $r_{\max} = 1.20 \mu\text{m}$												
<u>Canal Exclu</u>												
Modèle	0.385 μm			0.450 μm			0.521 μm			0.676 μm		
	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	34.6	11.5	25.9	17.0	6.3	12.2	18.0	6.2	13.6	17.1	5.9	13.0
2	29.3	8.3	25.5	22.7	6.1	22.7	22.3	7.3	18.3	20.9	5.7	18.8
3	33.5	14.0	22.1	34.7	13.6	23.4	34.5	13.8	22.0	34.9	14.0	22.6
4	47.4	25.2	26.7	30.4	15.6	16.7	26.4	13.3	14.6	26.9	13.0	16.1
5	30.7	8.5	32.6	17.6	6.0	17.2	22.3	9.9	17.3	17.3	7.5	16.5
6	32.0	13.8	17.3	18.3	7.4	10.4	17.4	6.6	11.2	17.4	6.5	11.2
7	44.9	16.9	30.6	33.2	11.3	23.7	31.0	10.5	23.8	31.9	10.6	24.6
8	32.3	6.7	36.6	17.2	6.2	21.7	16.8	15.4	20.0	14.9	7.5	18.2
9	38.1	24.2	16.6	28.5	18.1	18.6	25.3	15.0	16.8	23.5	14.6	17.0
10	32.4	17.8	13.5	20.1	10.8	10.7	17.1	9.2	9.6	17.8	9.3	9.4
R*	36.0	15.9	25.2	24.9	11.0	18.4	23.8	10.4	17.3	23.2	10.0	17.3

Tableau 4.2.1. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume et le rayon effectif à partir de sept canaux de SAGE III.

Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde.

Inversion Linéaire Contrainte
6 classes de particules,
 $r_{\min} = 0.13 \mu\text{m}$, $r_{\max} = 1.20 \mu\text{m}$
Canal Exclu

<u>Model</u>	<u>0.756 μm</u>			<u>0.869 μm</u>			<u>1.0195 μm</u>			<u>1.550 μm</u>		
	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	17.4	6.1	13.4	17.3	5.9	13.3	17.2	6.1	12.9	16.6	18.2	15.9
2	20.8	5.2	19.3	21.0	5.3	19.3	21.4	5.6	19.4	21.7	15.7	18.8
3	33.4	13.1	21.5	34.3	13.5	22.0	34.3	13.6	21.7	32.9	12.0	22.8
4	28.8	13.7	16.8	26.5	12.8	15.9	25.3	12.3	14.9	30.4	24.6	13.8
5	18.1	8.1	17.7	18.1	7.9	17.4	18.1	7.3	17.2	19.4	16.5	23.2
6	17.8	6.6	11.4	17.0	6.4	10.9	16.3	6.2	10.6	16.3	15.2	17.0
7	32.1	10.7	24.8	31.7	10.5	24.4	31.3	10.8	24.2	32.1	20.8	24.0
8	15.2	8.1	18.6	15.0	8.2	18.5	15.3	6.8	17.8	16.3	21.1	31.5
9	26.4	14.3	17.7	26.9	14.2	18.1	25.5	14.3	17.9	29.3	22.4	22.7
10	18.6	9.3	9.5	17.4	9.1	9.9	16.7	8.8	10.4	21.7	15.9	14.0
R*	23.7	10.0	17.6	23.4	9.9	17.5	23.0	9.7	17.3	24.5	18.6	21.0

Tableau 4.2.2. Idem que pour le tableau 4.2.1.

et $1.550 \mu\text{m}$ sont nécessaires à l'inversion linéaire contrainte pour une bonne détermination des caractéristiques des aérosols. A noter également l'amélioration des résultats quand un canal intermédiaire est supprimé. Ceci peut s'expliquer par le fait que les classes de particules s'élargissent et que par conséquent le nombre de particules à l'intérieur de ces classes s'accroît lors du passage de 8 à 7 canaux. Dans la plupart des cas l'amélioration est relativement importante pour la surface et le rayon effectif. Par contre si on passe à 6 voire à 5 canaux les classes de particules deviennent trop grandes si on conserve le même intervalle d'inversion $[0.13; 1.20 \mu\text{m}]$. Il faudrait alors restreindre cet intervalle pour avoir des résultats convenables mais ignorer des mesures disponibles dans deux ou trois canaux n'est pas cohérent.

Par ailleurs, le moment d'ordre quatre et la variance effective (tableau 4.2.3), pour une inversion à partir de 7 longueurs d'onde (le canal $1.0195 \mu\text{m}$ ayant été éliminé), n'ont pas subi de réelles modifications en comparaison avec une inversion à partir des huit canaux de SAGE III. En effet l'erreur quadratique moyenne R^* augmente de 0.4% passant de 10.2 à 10.6% pour M_4 alors que v_{eff} reste toujours difficile à définir avec une erreur pour R^* toujours supérieure à 60% .

La figure 4.2.1 présente les résultats de l'inversion à partir de huit et sept (le canal $1.0195 \mu\text{m}$ étant exclu à cet effet) longueurs d'onde pour le modèle 8 qui n'est pas nettement bimodal. Le plus large mode est bien déterminé. Comme il a été vu d'après la figure 4.1.1, il est difficile de caractériser le premier mode qui correspond à une gamme de rayon inférieur à r_{min} . Il y a toujours aussi une ambiguïté liée à la caractérisation du minimum qui se situe entre les deux modes. Il est intéressant de constater par l'étude de ce modèle que les résultats sont plus satisfaisants avec une inversion à partir de 7 longueurs d'onde (sans $1.0195 \mu\text{m}$) qu'à partir de 8. Ainsi la surface et le rayon effectif ont vu respectivement l'erreur totale R^* diminuer faiblement de 1.5 et 1.6% alors que pour le volume les résultats subissent moins de

Modèle	M_4			Variance effective		
	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta M_4}{M_4}$	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	1.2	7.7	8.9	23.4	27.0	50.5
2	-0.5	7.1	7.5	54.7	34.1	88.8
3	-0.5	6.4	6.9	-35.4	20.9	56.4
4	4.5	6.2	10.6	20.0	27.2	47.2
5	-3.7	9.9	13.6	51.4	34.8	86.2
6	1.3	7.2	8.5	9.4	23.6	33.0
7	2.8	7.7	10.5	50.0	27.2	77.2
8	-6.2	10.6	16.8	44.3	31.5	75.8
9	2.6	7.3	9.9	-5.6	29.3	34.9
10	2.4	6.4	8.8	0.7	16.0	16.7
R^*			10.6			61.2

Tableau 4.2.3. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur le moment M_4 et la variance effective pour la CLI à partir de sept canaux de SAGE III (la longueur d'onde $1.0195 \mu\text{m}$ ayant été éliminée, six classes de particules). Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde (voir tableau 3.1.2). Intervalle d'inversion $[0.13, 1.20 \mu\text{m}]$. R^* représente l'erreur quadratique moyenne (éq. 3.4.2).

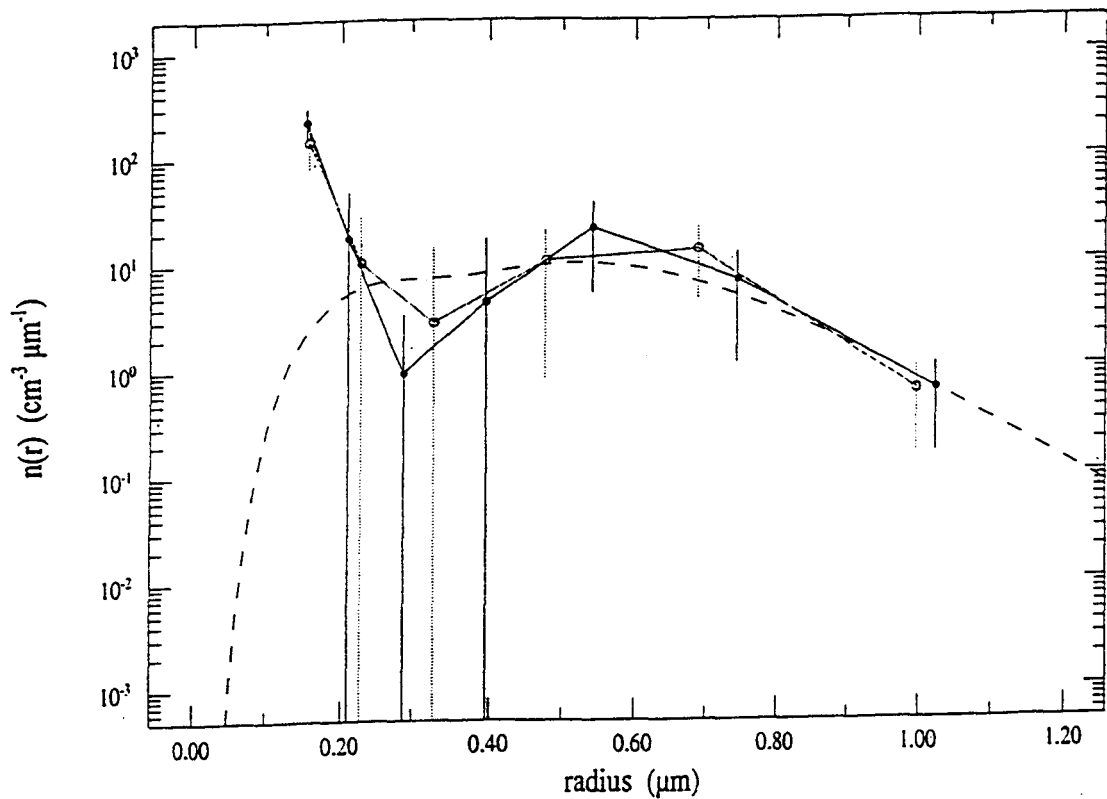


figure 4.2.1. (—●—) courbe (a): inversion du modèle 8 (- - -) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir des 8 canaux de SAGE III pour une fonction poids combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7. 7 classes de particules. Valeur de $\gamma_{rel} \cong 10^{-3}$. Les barres d'erreurs représentent les erreurs aléatoires.

(—○—) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais pour une inversion à partir de 7 canaux de SAGE III (la longueur d'onde 1.0195 μm ayant été éliminée). 6 classes de particules.

modifications avec une augmentation de R^* de 0.8%. Apparaît sur la figure 4.2.1 le minimum entre les deux modes comme étant le centre de la troisième classe pour une inversion à partir de 7 longueurs d'onde. Par contre ce même minimum ne correspond à aucun centre de classe pour une inversion à partir de 8 longueurs d'onde. Cette difficulté de définir avec précision le creux entre les deux modes peut expliquer une erreur totale plus élevée quant à la détermination des caractéristiques des aérosols.

Comparaison avec la Least Squares Fit Method (LSFM).

Comme précédemment il semble judicieux de comparer la CLI avec la LSFM. Les tableaux 4.2.4 et 4.2.5 présentent les erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) sur la surface, le volume, le rayon effectif et la variance effective pour la LSFM à partir de sept canaux de SAGE III (la longueur d'onde 1.0195 μm ayant été éliminée). L'indice de réfraction est dépendant de la longueur d'onde.

On note une altération des résultats par rapport à un ajustement effectué à partir des huit canaux de SAGE III. En effet les R^* de la surface et du volume passent respectivement de 31.6 (voir tableau 4.1.5) à 34.6% et de 12.8 à 14.4%. Il en est de même pour le rayon effectif où R^* approche les 20% alors que R^* frise les 110% pour la variance effective. Les mêmes conclusions qu'au paragraphe 4.1.1 s'imposent avec une nette amélioration des résultats quand ne sont pas pris en compte les modèles 9 et 10 et des erreurs aléatoires élevées pour les modèles 3, 4, 9 et 10. La détérioration des résultats qui survient lors du passage à sept longueurs d'onde peut se justifier par le fait qu'il est plus difficile d'effectuer un moindre carré avec sept points plutôt que huit. Les résultats sont dans l'ensemble moins satisfaisants avec cette technique qu'avec la CLI.

Modèle	Systémat.	Surface		Systémat.	Volume	
		Aléatoire	$\frac{\Delta S}{S}$		Aléatoire	$\frac{\Delta V}{V}$
1	-12.5	5.9	18.4	-0.9	4.7	5.6
2	-4.1	6.6	10.8	1.7	6.9	8.6
3	11.4	40.0	51.4	2.4	14.8	17.2
4	-10.2	29.4	39.6	-2.9	10.8	13.6
5	-2.2	6.7	8.9	3.4	10.2	13.6
6	-16.8	13.2	30.0	-4.2	5.8	9.9
7	-1.0	9.5	10.5	0.2	4.8	5.0
8	0.6	6.1	6.7	7.6	15.4	22.9
9	8.5	62.6	71.0	0.4	22.2	22.6
10	-1.7	28.4	30.1	-1.1	10.8	11.9
R*			34.3*			14.4**

Tableau 4.2.4. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume pour la LSFM à partir de sept canaux de SAGE III (la longueur d'onde 1.0195 μm ayant été éliminée). Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde.

* R* = 26.9 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 13.3 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

Modèle	Systémat.	Rayon effectif		Systémat.	Variance effective	
		Aléatoire	Δr_{eff}		Aléatoire	Δv_{eff}
			r_{eff}			v_{eff}
1	10.4	4.0	14.5	-25.7	51.4	77.0
2	5.7	5.2	10.9	28.4	97.4	125.7
3	-0.7	22.6	23.3	13.5	54.4	67.9
4	10.5	14.8	25.3	-33.5	90.9	124.4
5	5.5	7.6	13.2	32.9	122.1	155.0
6	11.7	7.7	19.3	-21.8	50.5	72.4
7	1.7	5.7	7.5	15.8	51.5	67.3
8	6.8	11.8	18.6	50.0	113.6	163.6
9	7.4	25.7	33.1	1.0	99.9	100.9
10	4.4	14.2	18.5	-6.7	67.8	74.4
R*			19.7*			108.7**

Tableau 4.2.5. Idem que pour le tableau 4.2.4 mais pour r_{eff} et v_{eff} .

* R* = 17.5 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 113.1 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

4.3. Inversion à partir des six plus grandes longueurs d'onde de SAGE

III.

La faculté qu'a l'inversion linéaire contrainte à fournir des informations sur les aérosols à partir des plus grandes longueurs d'onde a été testée, ceci dans la perspective d'étudier les caractéristiques des aérosols dans la basse partie de la stratosphère et même dans la haute troposphère en l'absence de nuages pour des altitudes comprises entre 6 et 10 km. En effet les données SAGE III à ces altitudes ne seront disponibles qu'aux canaux supérieurs ou égaux à 0.521 μm . Ce sont toujours les mêmes 1000 jeux de mesures qui sont utilisés. Les inversions sont effectuées avec cinq classes de particules avec toujours le même intervalle de rayons [0.13, 1.20 μm]. Les tableaux 4.3.1 et 4.3.2 (à comparer aux tableaux 4.1.1, 4.1.4 pour huit longueurs d'onde et aux tableaux 4.2.1, 4.2.2, 4.2.3 pour sept longueurs d'onde) présentent les résultats des erreurs estimées des caractéristiques déterminées après inversion des six canaux par l'inversion linéaire contrainte. Les résultats ne sont pas satisfaisants pour cette technique avec des valeurs de R^* de l'ordre de 47.8, 22.2, 30.8% pour respectivement la surface, le volume et le rayon effectif.

Si pour une distribution bimodale il est toujours difficile de caractériser avec précision le mode des petites particules ainsi que le minimum entre les deux modes (minimum qui peut même se transformer en maximum comme en témoigne la figure 4.3.1), l'inversion d'un modèle ne comportant qu'un seul mode n'est pas meilleure non plus. Comme le laissait pourtant présager la figure 4.3.2 on aurait pu s'attendre à des résultats plus convenables pour ce type de modèle. Cependant, cette fois-ci, les deux plus petits canaux font particulièrement défaut à l'étude de ce modèle 10 pour qui la contribution au coefficient d'extinction à 0.385 et 0.450 μm des particules dont la taille est inférieure à 0.25 μm est respectivement de 50 et 41%.

5 classes de particules, $r_{\min}=0.13 \mu\text{m}$, $r_{\max}=1.20 \mu\text{m}$

Model	<u>Surface</u>			<u>Volume</u>			<u>Rayon Effectif</u>		
	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta S}{S}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta V}{V}$	Systé.	Aléat.	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	24.6	20.6	45.2	8.2	8.2	16.4	-18.4	14.7	33.1
2	24.1	22.4	46.5	6.4	8.8	15.2	-19.2	15.3	34.5
3	-8.7	27.2	35.9	-0.2	15.5	15.7	11.1	13.6	24.7
4	31.7	25.8	57.5	18.8	14.6	33.4	-14.0	16.7	30.7
5	26.9	25.3	52.2	6.6	9.9	16.5	-22.3	17.4	39.7
6	15.0	24.6	39.6	7.1	10.9	18.0	-5.3	16.0	21.3
7	29.0	26.1	55.1	11.4	11.2	22.6	-19.8	16.8	36.6
8	28.0	20.4	48.4	6.4	7.6	14.0	-26.1	15.0	41.1
9	21.1	31.2	52.3	15.0	20.1	35.1	-2.0	17.2	19.2
10	14.2	25.9	40.1	8.6	14.5	23.1	-3.1	12.6	15.7
R*			47.8			22.2			30.8

Tableau 4.3.1. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume et le rayon effectif pour la CLI à partir de six canaux de SAGE III (les longueurs d'onde 0.385 et 0.450 μm ayant été éliminées)

5 classes de particules, $r_{\min}=0.13 \mu\text{m}$, $r_{\max}=1.20 \mu\text{m}$

Modèle	<u>M_4</u>			<u>Variance effective</u>		
	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta M_4}{M_4}$	Systémat.	Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	3.6	8.8	12.4	47.5	37.0	84.5
2	3.9	8.3	12.3	68.7	52.1	120.9
3	1.4	9.2	10.7	-37.2	27.2	64.4
4	11.4	8.7	20.0	26.6	29.5	56.1
5	3.8	9.7	13.5	73.0	56.7	129.7
6	5.5	8.1	13.6	19.8	32.7	52.5
7	7.1	9.6	16.7	56.8	37.1	93.9
8	1.1	8.4	9.5	70.1	47.2	117.3
9	9.4	11.4	20.8	-5.9	31.0	36.9
10	5.5	8.3	13.8	7.9	32.7	40.6
R*			14.8			86.1

Tableau 4.3.2. Idem que pour le tableau 4.3.1 mais pour M_4 et la variance effective.

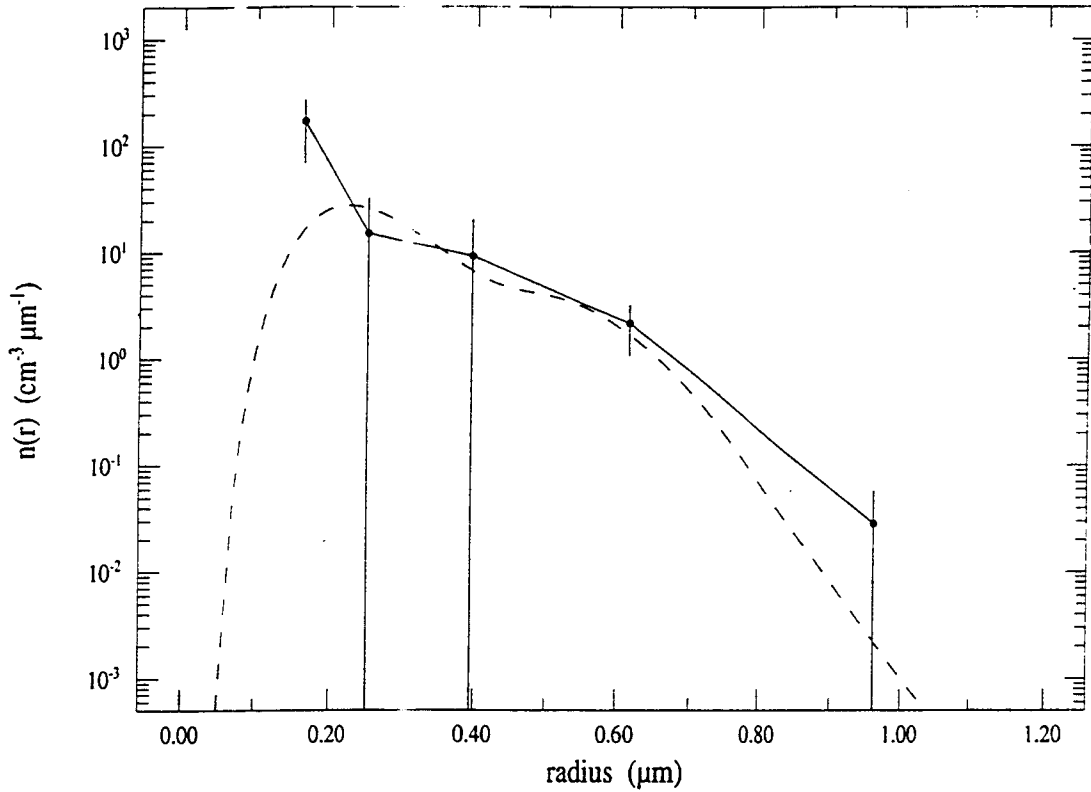


figure 4.3.1. (—●—) inversion du modèle 7 (- - -) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir des 6 canaux de SAGE III (les longueurs d'onde 0.385 et 0.453 μm ayant été éliminées) pour une fonction poids combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7. 5 classes de particules. Valeur de $\gamma_{rel} \cong 10^{-3}$. Les barres d'erreurs représentent les erreurs aléatoires.

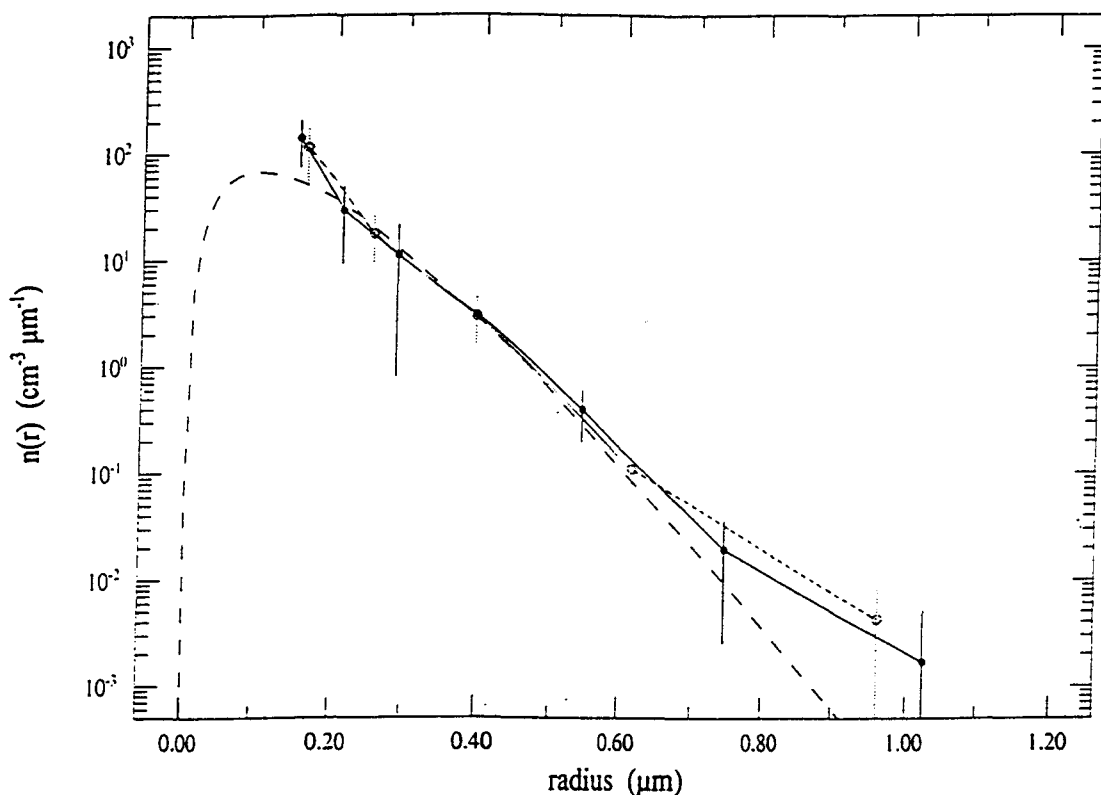


figure 4.3.2. (—●—) courbe (a): inversion du modèle 10 (- - -) pour l'intervalle [0.13, 1.20 μm] à partir des 8 canaux de SAGE III pour une fonction poids combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et 7. 7 classes de particules. Valeur de $\gamma_{\text{rel}} \cong 10^{-3}$. Les barres d'erreurs représentent les erreurs aléatoires.

(—○—) courbe (b): idem que pour courbe (a) mais pour une inversion à partir de 6 canaux de SAGE III (les longueurs d'onde 0.385 et 0.453 μm ayant été éliminée). 5 classes de particules.

Les résultats sont également moins satisfaisants pour M_4 et la variance effective avec respectivement l'erreur quadratique moyenne R^* égale à 14.8 et 86.1 %. Ont ainsi été perdus en précision 4% pour M_4 et environ 20% pour v_{eff} par rapport aux résultats obtenus pour des inversions à partir de huit et sept longueurs d'onde pour respectivement sept et six classes de particules.

Comparaison avec la Least Squares Fit Method (LSFM).

Comme auparavant (voir sections 4.1. et 4.2.) nous nous sommes intéressés à la LSFM pour une inversion à partir des six plus grands canaux de SAGE III. Les tableaux 4.3.3 et 4.3.4 présentent les erreurs estimées (systématiques, aléatoires et totales) pour l'ensemble des caractéristiques des aérosols. L'indice de réfraction est toujours dépendant de la longueur d'onde.

Le passage à six longueurs d'onde a provoqué une nette dégradation des résultats pour l'ensemble des caractéristiques des aérosols dans la mesure où les erreurs quadratiques moyennes R^* de la surface et du volume pointent respectivement à 56.5 et 23.4%. Le rayon effectif est moins bien déterminé également avec un R^* de l'ordre de 23% de même que la variance effective où la valeur de R^* est supérieure à 115%! Par ailleurs le résultat est meilleur pour la LSFM pour le rayon effectif dans la mesure où le R^* de la CLI est supérieur à 30%. Pour la surface et pour le volume, ces chiffres sont moins satisfaisants par rapport à ceux présentés par l'inversion linéaire contrainte. Notons quand même qu'avec la LSFM, si on enlève les modèles gamma modifiés 9 et 10, les résultats sont satisfaisants pour S et V avec un R^* respectivement de l'ordre de 27 et de 13%.

Modèle	Systémat.	Surface		Systémat.	Volume	
		Aléatoire	$\frac{\Delta S}{S}$		Aléatoire	$\frac{\Delta V}{V}$
1	-12.5	5.9	18.4	-0.9	4.7	5.6
2	-4.1	6.6	10.8	1.7	6.9	8.6
3	11.4	40.0	51.4	2.4	14.8	17.2
4	-10.2	29.4	39.6	-2.9	10.8	13.6
5	-2.2	6.7	8.9	3.4	10.2	13.6
6	-16.8	13.2	30.0	-4.2	5.8	9.9
7	-1.0	9.5	10.5	0.2	4.8	5.0
8	0.6	6.1	6.7	7.6	15.4	22.9
9	39.5	92.8	132.3	12.4	42.0	54.4
10	21.7	71.3	92.9	6.1	26.9	33.0
R*			56.5*			23.4**

Tableau 4.3.3. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) sur la surface, le volume pour la LSFM à partir de six canaux de SAGE III (les longueurs d'onde 0.385 et 0.450 μm ayant été éliminées). Indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde.

* R* = 26.9 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 13.3 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

Modèle	Systémat.	Rayon effectif		Systémat.	Variance effective	
		Aléatoire	$\frac{\Delta r_{\text{eff}}}{r_{\text{eff}}}$		Aléatoire	$\frac{\Delta v_{\text{eff}}}{v_{\text{eff}}}$
1	10.4	4.0	14.5	-25.7	51.4	77.0
2	5.7	5.2	10.9	28.4	97.4	125.7
3	-0.7	22.6	23.3	13.5	54.4	67.9
4	10.5	14.8	25.3	-33.5	90.9	124.4
5	5.5	7.6	13.2	32.9	122.1	155.0
6	11.7	7.7	19.3	-21.8	50.5	72.4
7	1.7	5.7	7.5	15.8	51.5	67.3
8	6.8	11.8	18.6	50.0	113.6	163.6
9	5.3	40.7	46.0	22.7	108.0	130.7
10	1.1	27.2	28.2	19.3	99.7	119.0
R*			23.2*			115.6**

Tableau 4.3.4. Idem que pour le tableau 4.3.3 mais pour r_{eff} et v_{eff} .

* R* = 17.5 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

** R* = 113.1 % en l'absence des modèles gamma modifiés 9 et 10.

4.4. Détermination de coefficients d'extinction.

Pour la CLI, l'estimation d'un coefficient d'extinction exclu est effectuée par l'intermédiaire de l'équation 2.2.3 avec la moyenne des distributions granulométriques inversées à partir des sept autres longueurs d'onde restantes. Cet exercice a pour but de rendre compte de la qualité des granulométries inversées. Les erreurs totales estimées entre les coefficients d'extinction du modèle et ceux déterminés avec l'inversion sont listées dans le tableau 4.4.1 ainsi que les valeurs de l'erreur quadratique moyenne R^* pour chaque canal. Les résultats sont satisfaisants pour les longueurs d'onde intermédiaires avec un R^* de l'ordre de 10%. Plus difficile est l'extrapolation du coefficient d'extinction pour l'ensemble des dix modèles pour les canaux extrêmes 0.385 (sauf modèles 3 et 10) et 1.550 μm (sauf modèles 2 et 5). Ces résultats sont dans la lignée de ceux de Spinhirne et King (1985). Ils ont en effet appliqué différentes combinaisons de canaux d'un radiomètre solaire dans le visible et proche infra-rouge dans le but de déterminer les distributions granulométriques intégrées sur une colonne atmosphérique capables de reproduire les mesures d'épaisseur optique des aérosols après l'éruption du volcan El Chichon de 1982 à 1983. Si les interpolations furent concluantes, des difficultés advinrent au niveau de l'extrapolation aux longueurs d'onde extrêmes.

Par ailleurs on a déterminé la valeur de coefficients d'extinction à une longueur d'onde autre que celles des canaux aérosols de SAGE III. Pour cela on utilise la distribution granulométrique inversée et on effectue une comparaison avec le coefficient d'extinction réel déterminé par la théorie de Mie. Ceci est à la fois très important et utile, dans la mesure où pour les expériences comme SAGE III, la contribution en aérosol doit être enlevée de la mesure à des longueurs d'onde spécifiques en vue d'être capable de déterminer de façon la plus précise possible la concentration des différents gaz de l'atmosphère. Pour l'expérience qui nous intéresse, nous avons calculés les coefficients d'extinction des aérosols aux canaux

<u>Modèle</u>	<u>Canal Exclu</u>							
	<u>0.385 μm</u>	<u>0.450 μm</u>	<u>0.521 μm</u>	<u>0.676 μm</u>	<u>0.756 μm</u>	<u>0.869 μm</u>	<u>1.0195 μm</u>	<u>1.550 μm</u>
1	31.0	12.1	16.2	8.7	8.2	6.8	6.7	28.2
2	31.4	16.9	20.6	17.5	14.3	11.7	9.3	19.9
3	18.5	9.5	9.1	8.5	8.3	7.5	6.7	29.6
4	38.5	14.9	17.6	16.7	15.5	13.6	10.9	45.7
5	35.2	16.8	24.0	17.6	13.4	10.7	8.9	22.2
6	27.8	10.6	13.1	9.6	9.7	7.6	7.4	31.3
7	29.4	10.8	13.1	9.9	9.5	7.8	7.0	32.6
8	36.9	11.6	33.5	15.0	10.4	7.6	6.9	30.1
9	31.6	15.5	14.8	14.5	14.2	12.8	10.3	47.8
10	23.6	9.1	9.4	9.7	10.1	9.1	8.1	38.5
R*	30.9	13.1	18.5	13.3	11.7	9.8	8.4	33.7

Tableau 4.4.1. Erreurs totales estimées (en %) entre coefficients d'extinction "réels" et exclus, calculés à partir de la distribution granulométrique inversée provenant de l'inversion de coefficients d'extinction à sept canaux de SAGE III par la CLI.

ozone à 0.600 μm et vapeur d'eau à 0.940 μm . Nous avons enlevé le canal 1.0195 μm en raison de la légère amélioration qui était survenue en son absence au niveau de la détermination des caractéristiques des aérosols (voir section 4.2. et le compromis suivant: les classes de particules à partir d'une inversion avec huit longueurs d'onde sont trop étroites alors qu'elles sont trop larges à partir d'une inversion avec six longueurs d'onde d'où l'utilisation de sept longueurs d'onde) et avons par conséquent utilisé les 7 longueurs d'onde restantes. L'interpolation de ces coefficients d'extinction se fait toujours avec l'équation 2.2.3. Les indices de réfraction sont interpolés de façon linéaire (1.4527 à 0.600 μm et 1.4452 à 0.940 μm avec une composante imaginaire considérée comme négligeable) à partir des données compilées par Russell et al., (1996). Ces résultats sont présentés dans le tableau 4.4.2. On est capable d'estimer plus précisément l'extinction en aérosol au canal de la vapeur d'eau qu'au canal de l'ozone. Ainsi à 0.940 μm les erreurs systématiques sont inférieures à 5%, hormis pour le modèle 4. A 0.600 μm elles ne sont pas supérieures à 6.5% exceptées pour les modèles 2, 4 et 5.

Enfin il est tout aussi intéressant de prendre en considération d'autres expériences telles que LPMA (*Limb Profile Monitor of the Atmosphere*) et ILAS (*Improved Limb Atmospheric Spectrometer*). Cela permettra de tester la fiabilité de la CLI avec des mesures effectuées par ces deux expériences et de voir si les mesures des deux instruments et de SAGE III sont cohérentes. Tout comme pour l'ozone et la vapeur d'eau nous avons déterminé, par l'intermédiaire de la distribution granulométrique inversée, avec l'inversion linéaire contrainte à partir de sept canaux de SAGE III (le canal 1.0195 μm étant éliminé), les coefficients d'extinction aux longueurs d'onde de l'infra-rouge de LPMA et ILAS [Mukai et al., (1994)] (tableau 4.4.3). Une comparaison est alors possible avec les coefficients d'extinction réels calculés par la théorie de Mie. Pour cette étude a été prise en compte l'influence de la partie imaginaire de l'indice de réfraction (tableau 4.4.3) après une interpolation linéaire des résultats présentés par Palmer et Williams (1975). La partie réelle de

CLI					
<u>0.600 μm</u>			<u>0.940 μm</u>		
Sys	Aléat.	Tot	Sys	Aléat.	Tot
-3.5	6.9	10.4	-2.1	5.1	7.2
-7.5	11.0	18.5	-4.5	5.6	10.1
-2.7	5.4	8.1	-1.9	5.3	7.2
-8.5	7.9	16.4	-6.6	5.5	12.1
-8.4	13.7	22.1	-3.6	5.8	9.4
-4.3	5.8	10.1	-3.3	4.6	7.9
-4.2	6.3	10.5	-2.8	5.0	7.8
-6.5	12.8	19.3	-0.8	6.8	7.6
-6.4	8.2	14.6	-5.2	6.2	11.4
-3.9	5.6	9.5	-4.0	4.7	8.7
		14.7			9.1

Tableau 4.4.2. Erreurs estimées (en %) entre coefficients d'extinction simulés et calculés aux canaux ozone et vapeur d'eau.

expérience	longueur d'onde	indice de réfraction
LPMA	2.45 μm	$1.370 - i \cdot 3.09 \cdot 10^{-3}$
	3.36 μm	$1.365 - i \cdot 0.159$
	8.44 μm	$1.370 - i \cdot 0.729$
ILAS	7.12 μm	$1.257 - i \cdot 0.159$
	8.27 μm	$1.257 - i \cdot 0.666$
	10.60 μm	$1.780 - i \cdot 0.274$
	11.76 μm	$1.924 - i \cdot 0.210$

Tableau 4.4.3. Longueurs d'onde et indices de réfraction correspondants pour les expériences LPMA et ILAS.

l'indice est quant à elle aussi interpolée linéairement et déterminée pour une température de 220K. L'ensemble des résultats est présenté dans les tableaux 4.4.4 et 4.4.5 pour respectivement les expériences LPMA et ILAS.

Si l'extrapolation au canal 1.550 μm avait été rendue compliquée (33.7% d'erreur quadratique moyenne R^*), les résultats s'améliorent au fur et à mesure que l'on pénètre dans l'infra-rouge avec une valeur de R^* respectivement égale à 17.6% pour le canal 2.5 μm et à environ 10% pour les autres canaux.

4.5. Organigramme de l'inversion linéaire contrainte.

Le tableau 4.5.1 présente l'organigramme de l'inversion linéaire contrainte avec toutes les indications nécessaires à une "bonne" utilisation.

4.6. Conclusions.

1.) L'inversion linéaire contrainte (CLI) [Twomey, (1963; 1965; 1977); King et al., (1978), King, (1982)] et la méthode de moindres carrés (LSFM) [Brogniez et Lenoble (1988)] sont sensibles au nombre de canaux utilisés dans le but de déterminer les caractéristiques des aérosols après inversion. La CLI est par ailleurs sensible au nombre de classes de particules employées.

2.) Pour une inversion à partir des huit canaux de SAGE III, La CLI présente une meilleure restitution des coefficients d'extinction des aérosols à partir de la distribution granulométrique inversée que la LSFM.

Modèle	2.45 μm			3.36 μm			8.44 μm		
	Systé.	Aléat.	Total	Systé.	Aléat.	Total	Systé.	Aléat.	Total
1	2.3	11.0	13.3	1.2	5.5	6.7	1.2	5.1	6.3
2	0.3	9.7	10.0	0.2	5.3	5.5	0.6	5.1	5.7
3	2.1	11.9	14.0	-3.6	8.0	11.5	-4.3	8.8	13.1
4	10.6	10.0	20.6	5.1	6.8	11.9	4.8	7.3	12.2
5	-4.5	13.2	17.7	-1.7	7.3	8.8	-1.1	6.4	7.5
6	3.5	11.5	15.1	0.7	5.6	6.4	0.4	5.6	6.0
7	5.2	11.9	17.2	4.5	5.7	10.3	5.0	5.9	10.9
8	-7.7	13.6	21.2	-2.8	7.0	9.8	-1.7	5.9	7.6
9	9.8	11.9	21.8	1.4	12.1	13.5	0.9	13.4	14.3
10	8.0	13.1	21.1	1.4	7.3	8.7	0.9	8.1	9.0
R*			17.6			9.6			9.7

Tableau 4.4.4. Erreurs estimées (systématique, aléatoire et totale) (en %) entre coefficients d'extinction simulés aux canaux de l'expérience LPMA et calculés à partir de la distribution granulométrique inversée pour les sept canaux de SAGE III (le canal 1.0195 μm étant éliminé) par application de la CLI.

Mo.	7.12 μm			8.27 μm			10.60 μm			11.76 μm		
	Sys.	Aléa.	Tot.	Sys.	Aléa.	Tot.	Sys.	Aléa.	Tot.	Sys.	Aléa.	Tot.
1	1.4	5.2	6.5	1.1	5.0	6.2	1.7	5.8	7.5	1.9	6.1	8.0
2	0.6	5.2	5.8	0.5	5.0	5.5	0.8	5.8	6.5	0.8	6.0	6.8
3	-4.4	8.8	13.2	-4.4	8.9	13.3	-4.3	8.7	13.0	-4.3	8.7	13.0
4	5.1	7.4	12.5	4.8	7.4	12.2	5.5	7.5	13.1	5.7	7.6	13.3
5	-1.1	7.0	8.2	-0.9	6.3	7.2	-1.5	8.5	10.0	-1.6	9.0	10.6
6	0.5	5.8	6.3	0.3	5.8	6.1	0.9	5.9	6.9	1.1	6.1	7.1
7	5.2	5.7	10.9	5.0	5.6	10.6	5.5	6.1	11.6	5.6	6.3	11.9
8	-2.3	6.5	8.8	-1.4	5.4	6.8	-3.9	8.6	12.5	-4.6	9.3	13.9
9	0.8	13.5	14.3	0.6	13.5	14.2	1.2	13.3	14.6	1.4	13.3	14.7
10	0.9	7.9	8.9	0.7	8.0	8.7	1.3	7.8	9.2	1.5	7.8	9.3
R*			10.0			9.6			10.8			11.2

Tableau 4.4.5. Idem que pour le tableau 4.4.4 mais pour l'expérience ILAS.

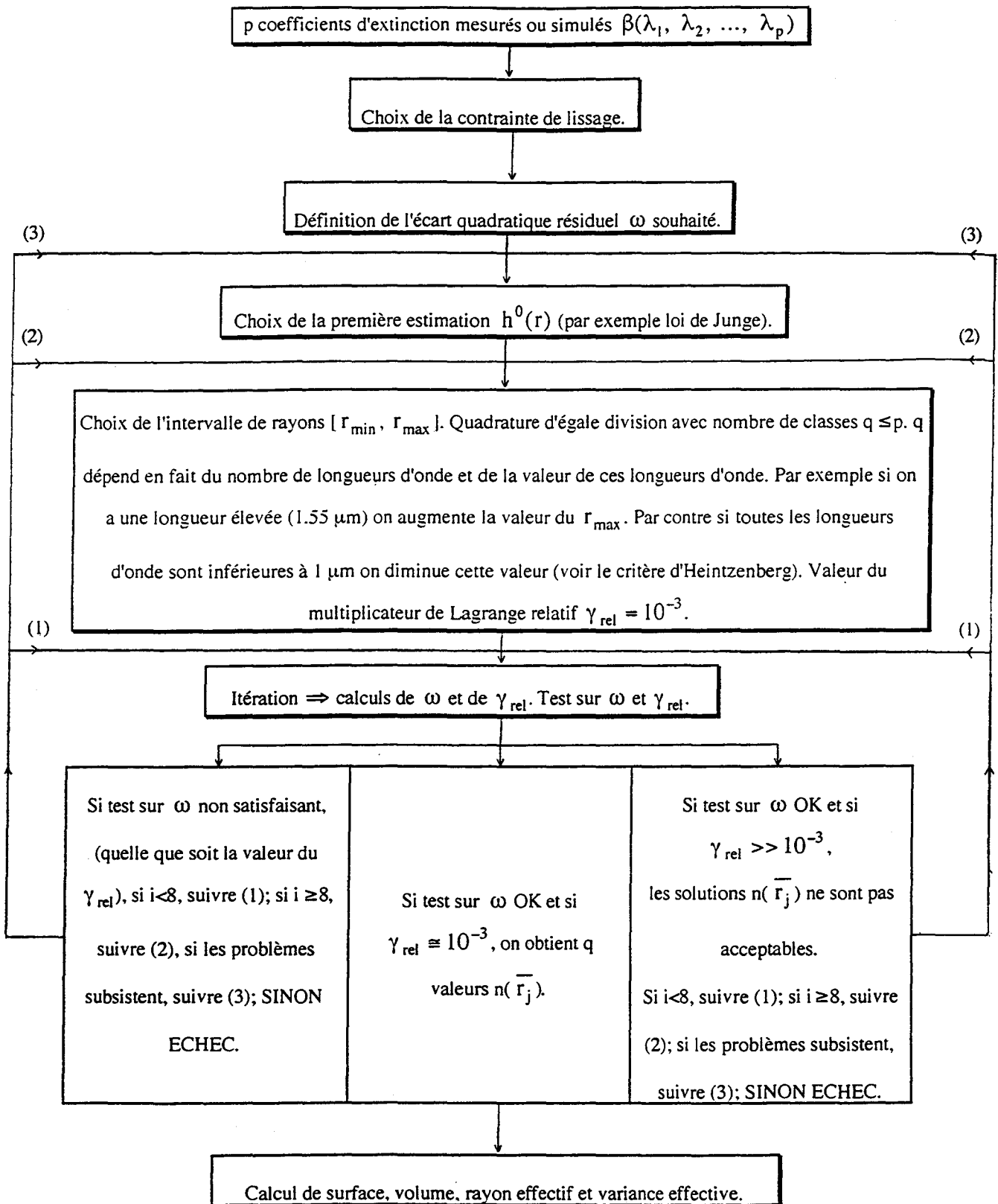


Tableau 4.6.1. Organigramme de l'inversion linéaire contrainte (n représente la distribution granulométrique et i est le nombre d'itérations).

3.) A partir des huit canaux de SAGE III, la LSFM, si on écarte les modèles gamma modifiés reconnaissables par leurs erreurs aléatoires démesurées, peut arriver à des résultats identiques voire meilleurs que la CLI.

4.) Toujours à partir des huit canaux de SAGE III, si on inverse les données avec un indice de réfraction constant, les résultats se dégradent en moyenne respectivement de 2% pour la CLI et de 1.5% pour la LSFM pour l'ensemble des caractéristiques (surface, volume et rayon effectif) en comparaison à une inversion avec un indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde.

5.) A partir de sept canaux (hormis si on enlève 0.385 μm) et pour une inversion avec six classes de particules, la CLI peut obtenir une erreur quadratique moyenne (R^*) de l'ordre de 25% pour la surface, de 12% pour le volume et inférieure à 20% pour le rayon effectif. Les résultats sont meilleurs qu'avec une inversion à partir de huit canaux. Si on enlève le canal 1.0195 μm , la CLI obtient une erreur quadratique moyenne (R^*) de 23% pour la surface, de 9.7% pour le volume et de 17.3% pour le rayon effectif. Pour la LSFM, si on élimine toujours la longueur d'onde 1.0195 μm et si on ne considère pas les modèles gamma modifiés, R^* vaut respectivement 26.9, 13.3 et 17.5% pour la surface, le volume et le rayon effectif.

6.) L'inversion à partir des six canaux de plus grandes longueurs d'onde de SAGE III donne par la CLI, pour erreur quadratique moyenne R^* , des valeurs proches de 48, 22, 31% pour respectivement la surface, le volume et le rayon effectif. Les résultats sont meilleurs pour la LSFM que pour la CLI si on ne considère pas les modèles gamma modifiés (où par exemple l'erreur aléatoire est supérieure à 70% pour la surface) avec pour erreur totale des valeurs avoisinant les 27, 13 et 17.5% pour les trois caractéristiques d'aérosols citées précédemment.

7.) La CLI et la LSM ne sont pas capables de déterminer raisonnablement la variance effective.

8.) La détermination du coefficient d'extinction exclu par la CLI pour les canaux 0.450, 0.521, 0.676, 0.756, 0.869 et 1.0195 μm à partir des distributions granulométriques inversées, elles-mêmes déterminées à partir des coefficients d'extinction restants, est plus que satisfaisante. Cependant l'estimation aux longueurs d'onde 0.385 et 1.550 μm est plus difficile à effectuer. Ces résultats tendent à prouver la bonne qualité de l'ensemble des granulométries inversées.

9.) Les calculs des coefficients d'extinction des aérosols par la CLI aux canaux "ozone" à 0.600 μm et "vapeur d'eau" à 0.940 μm fournissent respectivement des erreurs quadratiques moyennes R^* inférieures à 15 et 10%. Par ailleurs les extinctions calculées aux longueurs d'onde de l'infra-rouge à partir des distributions granulométriques inversées avec les sept canaux de SAGE III (le canal 1.0195 μm étant éliminé) fournissent des résultats satisfaisants (avec R^* égal à 17% pour 2.5 μm et environ à 10% pour les autres canaux 3.4, 7.1, 8.3, 8.5, 10.6 et 11.8 μm).

**CHAPITRE 5: CLIMATOLOGIE DES
CARACTERISTIQUES DES AEROSOLS
STRATOSPHERIQUES ENTRE 1984 ET
1997 A PARTIR DES DONNEES SAGE II**

Durant la période 1984-1997 l'événement le plus marquant a été, sans aucun doute, l'éruption du Mont Pinatubo aux Philippines (15,14°N; 120,35°E) en juin 1991 après une période d'inactivité de 635 années, qui a injecté dans la stratosphère une quantité d'aérosols 30 fois supérieure à la normale [Mc Cormick et Veiga, (1992)]. Il a démontré une plus grande compréhension de l'influence globale des aérosols stratosphériques sur l'atmosphère. Ainsi durant les deux premières années succédant à l'éruption, de nettes diminutions de l'ozone stratosphérique [Herman et Larko, (1994)] et du dioxyde d'azote [Johnston et al., (1992); Koike et al., (1993)] furent observées en corrélation à une augmentation de réactions chimiques hétérogènes se produisant à la surface des aérosols dits volcaniques. Dans la mesure où ces processus hétérogènes participent de manière significative à la chimie de la stratosphère, il est important de développer une climatologie sur les caractéristiques de ces aérosols stratosphériques. Cette climatologie, relative à la densité de surface, la densité de volume, le rayon effectif (et la variance effective), a été développée grâce aux mesures de coefficients d'extinction des aérosols de l'expérience satellitaire SAGE II pour la période disponible 1984-1997. Même si celle-ci a été hautement dominée par d'importants événements volcaniques, la longévité et la fiabilité de l'instrument permettent également l'étude de l'aérosol non volcanique ou aérosol de fond (*Background*) par exemple de 1989 à 1991.

5.1. Méthodologie.

On a vu que l'instrument SAGE II effectue un ensemble de mesures multispectrales de transmissions et permet d'obtenir l'ensemble des coefficients d'extinction à 0.385, 0.453, 0.585 et 1.020 μm pour un événement, c'est-à-dire pour une date, une longitude et une latitude. Les profils d'extinction des aérosols sont fournis en continu depuis 1984 pour une gamme de latitudes variant entre 80°N et 80°S et des altitudes généralement comprises entre

10 et 35 km, avec une résolution verticale de 1 km [Mauldin et al., (1985)]. Si la précision des profils d'extinction est d'environ 30% à 0.385 μm entre 15 et 22 km, elle est meilleure à 1.020 μm où elle vaut environ 10% entre le sommet des nuages et 25 km d'altitude [Chu et al., (1989)]. Les aérosols sont toujours supposés être de petites gouttelettes sphériques d'acide sulfurique aqueux [Thomason et Poole, (1993); Russell et al., (1993)]. Ces hypothèses sont valables pour la stratosphère hormis pour les nuages stratosphériques polaires (*Polar Stratospheric Clouds* - PSC) [Poole et Pitts, (1994)], les cendres volcaniques [Winkler et Osborn, (1992)], ou encore les cirrus, dont la présence a été notée en certaines occasions au-dessus de la tropopause [Kent et al., (1993)].

Dans la climatologie qui va suivre, la méthodologie utilisée pour créer les jeux de données est la même que celle employée pour SAGE III. Ne sont pas inversées les mesures réelles mais un jeu de 50 données (et non 1000 comme pour SAGE III) ($\psi > 20$) correspondant à chaque mesure réelle. On effectue des moyennes zonales, c'est-à-dire quasi-mensuelles en latitude. L'inversion des coefficients d'extinction aux longueurs d'onde de SAGE II s'effectue avec un indice de réfraction constant égal à 1.45. Après différents tests, la CLI a été finalement réalisée pour l'intervalle de rayons [0.10; 1.00 μm] à partir d'une fonction poids combinaison de deux lois de Junge de pentes respectives $\nu=6$ et $\nu=7$. La valeur du multiplicateur de Lagrange est typiquement égale à $\gamma_{\text{rel}}=10^{-3}$. Une comparaison avec la méthode des moindres carrés (LSFM) est également menée. A cet effet la longueur d'onde 1.020 μm est choisie comme référence (voir éq. 4.1.1) au lieu de 1.550 μm .

5.1.1. Choix des intervalles de temps et des gammes de latitudes.

Les moyennes des coefficients d'extinction des aérosols sont effectuées sur une bande de latitudes de 10 degrés et sur une période de quelques jours environ pour une altitude fixée. Ces moyennes sont donc zonales. Il faut savoir que SAGE II effectue, entre autres, un balayage en latitude sur une période d'environ un mois, période qui correspond en fait à l'intervalle de temps entre deux rebroussements successifs (un rebroussement est un changement de sens de variation de la latitude). Est dénombré ainsi un ensemble de 18 bandes de latitudes. L'absence réelle d'information dans les régions polaires nord et sud pour les bandes de latitudes extrêmes notées N85 et S85 fait qu'en réalité ne sont répertoriées que 16 bandes de latitudes. Ainsi la bande 2 (notée S75) est centrée sur 75° Sud et correspond à la bande de latitudes comprises entre 70°S et 80°S. A l'opposé la bande 17 (notée N75) est centrée sur 75° Nord et correspond à la bande de latitudes comprises entre 70°N et 80°N.

5.1.2. Comparaison des profils isolés des aérosols aux levers et couchers de soleil.

Il est nécessaire de comparer des profils isolés des aérosols au lever et coucher de soleil pour savoir si on pourra les intégrer ensemble dans la climatologie. A certaines époques et en un point considéré ont été recherchées des mesures effectuées au lever et coucher de soleil. Stipulons que les mesures ne sont jamais accomplies exactement au même endroit. La différence de localisation des deux événements est au mieux de 1 ou 2° près en latitude (soit de 100 à 200 km approximativement), de 1 à 5° en longitude (soit de 100 à 500 km approximativement). La coïncidence dans le temps est quant à elle de 1 à 36 heures. Les profils isolés sont représentés sur les figures 5.1.2.a-b-c et leur examen indique qu'ils ont des allures similaires. Dans la climatologie qui va suivre, on pourra donc intégrer ensemble les profils des aérosols au lever et coucher de soleil.

5.2. Coefficients d'extinction.

La figure 5.2.1 présente les profils moyens des coefficients d'extinction à 0.525 et 1.020 μm pour la période allant du 19 décembre 1988 au 30 janvier 1989, pour la bande de latitudes 45N. Cela nous permettra de vérifier qu'il est bien possible d'effectuer des moyennes zonales comme d'autres auteurs [Brogniez et Lenoble, (1991); Yue et al., (1995); Thomason et al., (1997)]. En premier lieu, on constate, en échelle semi-logarithmique, une décroissance quasi linéaire du coefficient d'extinction avec l'altitude au dessus de 20 km environ (il a été constaté que cette altitude dépend de l'altitude de la tropopause) et traduit le fait qu'à cette altitude-là la stratosphère n'est pas influencée par les perturbations ayant lieu dans la troposphère et dans la basse stratosphère. En deuxième lieu, on remarque, qu'entre 15 et 21-22 km, les barres de dispersion des coefficients d'extinction sont les plus faibles. Pour cette gamme d'altitude, la couche d'aérosols est bien mélangée autour de la planète. En troisième lieu, les barres de dispersion des coefficients d'extinction aux plus basses et plus hautes altitudes sont acceptables. Il est donc judicieux d'effectuer des moyennes zonales.

5.3. Epaisseur optique.

Cette section a pour but de vérifier la dépendance latitudinale de l'épaisseur optique, phénomène déjà observé par de nombreux auteurs [Brogniez et Lenoble, (1987), (1991); Yue et al., (1991)]. Les épaisseurs optiques $\delta(\lambda)$ (éq. 5.3.1) pour les canaux de SAGE II à 0.385, 0.453, 0.525 et 1.020 μm ont été obtenues après intégration des profils moyens (voir section 5.2.) $\sigma_{\text{ext}}(\lambda, z)$ de coefficients d'extinction des aérosols sur l'altitude z .

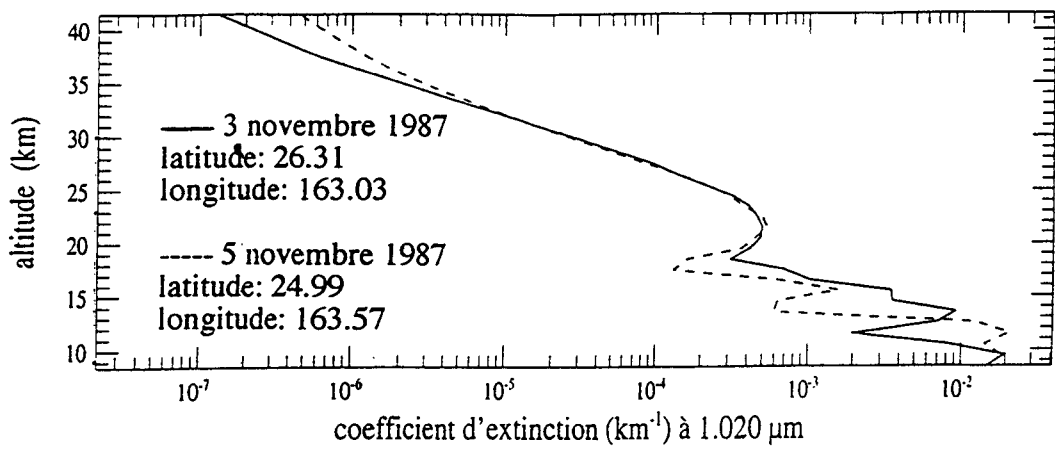


figure 5.1.2.a. Comparaison des profils d'extinction des aérosols au lever (—) et coucher (-----) de soleil.

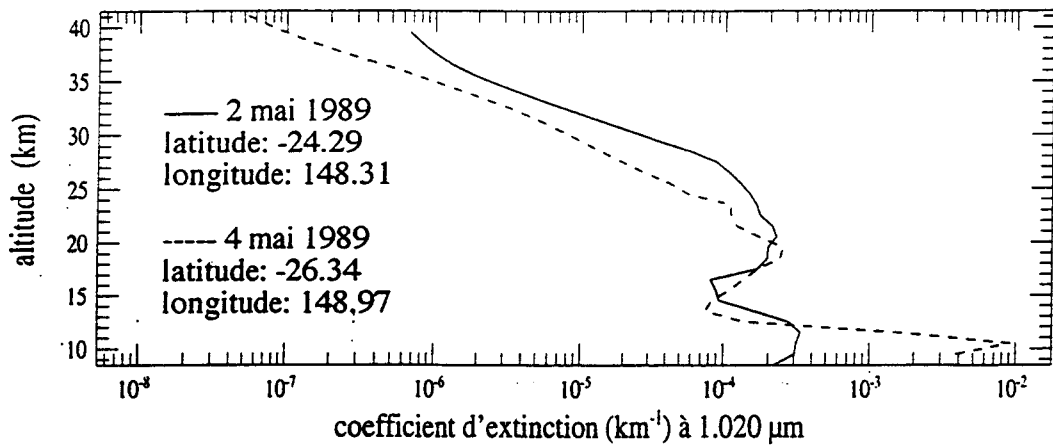


figure 5.1.2.b. Idem que pour la figure 5.1.2.a.

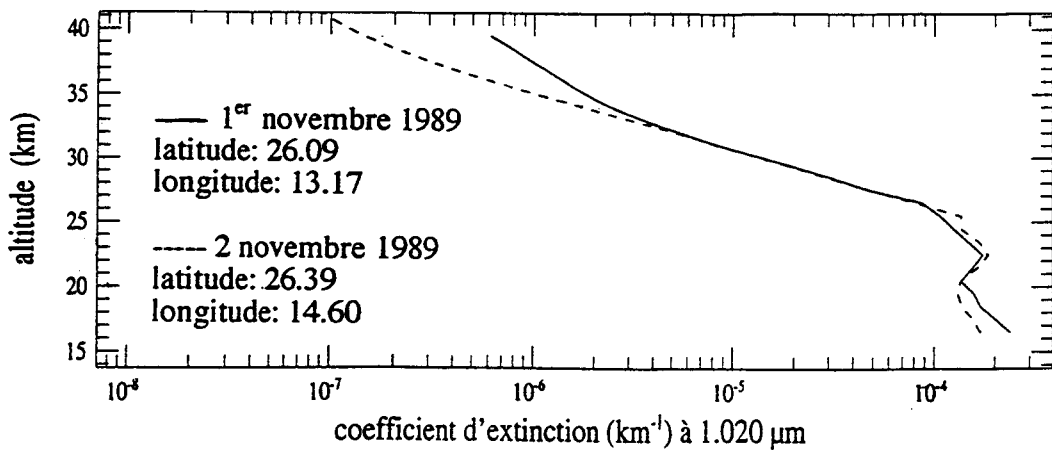


figure 5.1.2.c. Idem que pour la figure 5.1.2.a.

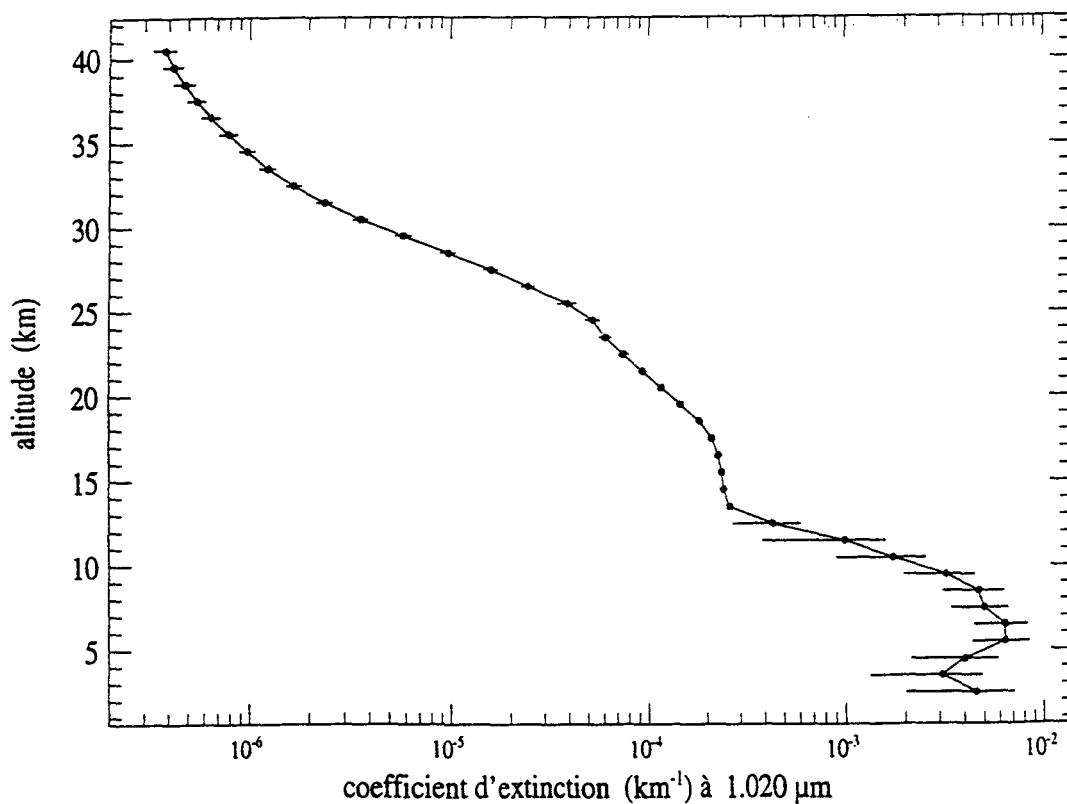
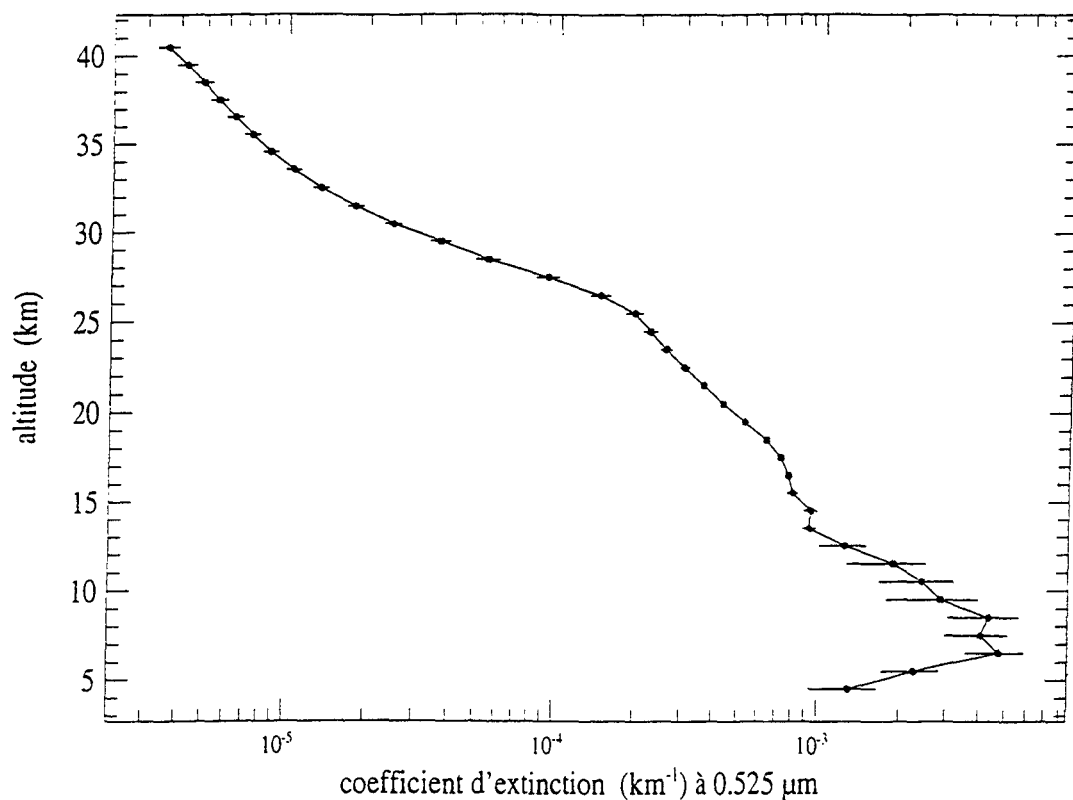


figure 5.2.1. Variations du coefficient d'extinction à 0.525 et $1.020 \mu\text{m}$ et dispersions moyennes correspondantes durant la période allant du 19 décembre 1988 au 30 janvier 1989 pour la bande de latitudes $40\text{-}50^\circ\text{N}$.

$$\delta(\lambda) = \int_{\Delta z} \sigma_{\text{ext}}(\lambda, z) \cdot dz \quad (5.3.1)$$

La figure 5.3.1.a représente la dépendance en latitude de l'épaisseur optique intégrée à partir de 2 km au-dessus de la tropopause moyenne (sur une bande de latitudes) jusqu'à 40 km pour la période allant du 25 août au 15 octobre 1988 pour les canaux 0.525 et 1.020 μm . La figure 5.3.1.b décrit les variations de l'altitude de la tropopause pour cette même période. L'altitude de la tropopause est une donnée annexe de SAGE II, fournie par le *National Weather Service* (NWS) de la *National Oceanic and Atmospheric Administration* (NOAA) [Chu et al., (1989)]. En premier lieu, on constate une symétrie des résultats présentés (aussi bien pour l'épaisseur optique que pour l'altitude de la tropopause) par rapport à l'équateur. En deuxième lieu, on note l'apparition de deux puits autour des tropiques (S25 et N25). En général, plus l'altitude de la tropopause est élevée et plus l'épaisseur optique est faible. La baisse de l'altitude de la tropopause au niveau des tropiques fait qu'il se passe des échanges entre la stratosphère et la troposphère et pourrait expliquer les puits observés ci-dessus [Rosen et al., (1975)]. En effet, Kent et al., (1995) précisent que les modèles actuels de transport à travers la tropopause suggèrent que des mouvements ascendants vers la stratosphère ont lieu, pour l'essentiel, dans les régions équatoriales et tropicales. Les mouvements descendant se font, quant à eux, au niveau des moyennes et hautes latitudes, principalement par foliation (brisure) de la tropopause. Ces échanges peuvent expliquer les puits d'épaisseur optique observés autour des tropiques. Brogniez et Lenoble (1987), (1991) ont souligné, elles aussi que la dépendance en latitude de l'épaisseur optique suit la variation de l'altitude de la tropopause.

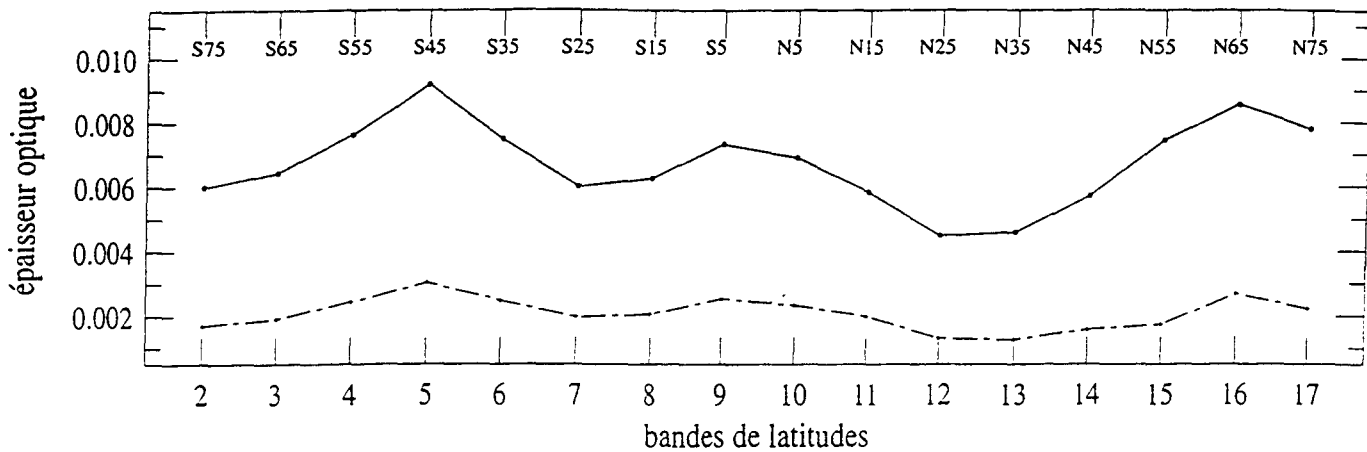


figure 5.3.1.a. Dépendance latitudinale de l'épaisseur optique intégrée à partir de 2 km au-dessus de l'altitude de la tropopause jusqu'à 40 km durant la période allant du 25 août au 15 octobre 1988 pour les canaux 0.525 (—) et à 1.020 μm (-----).

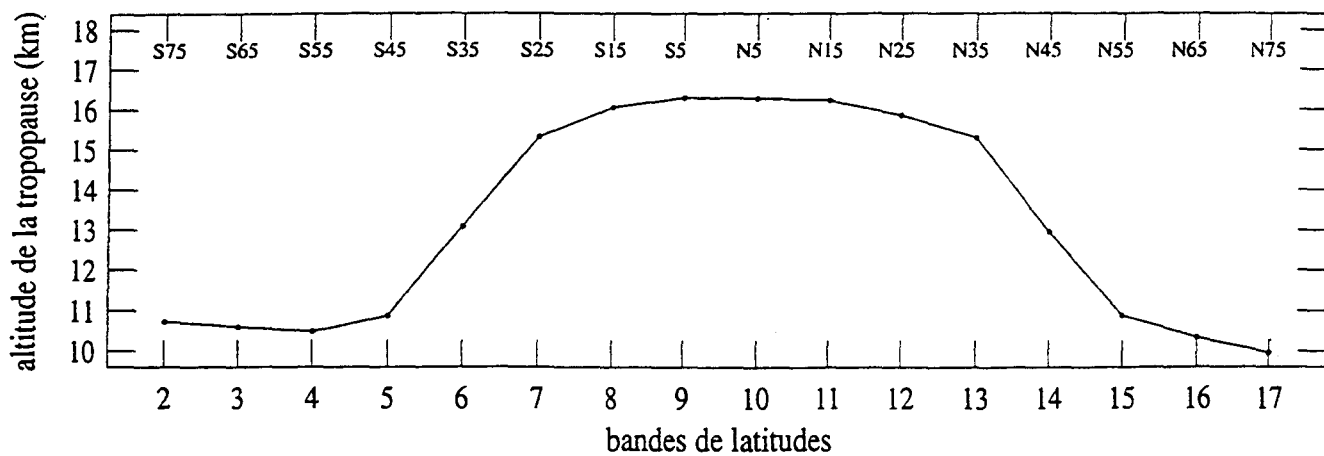


figure 5.3.1.b. Variation de l'altitude de la tropopause pour cette même période.

5.4. Climatologie des caractéristiques des aérosols.

5.4.1. Etude des régions non polaires.

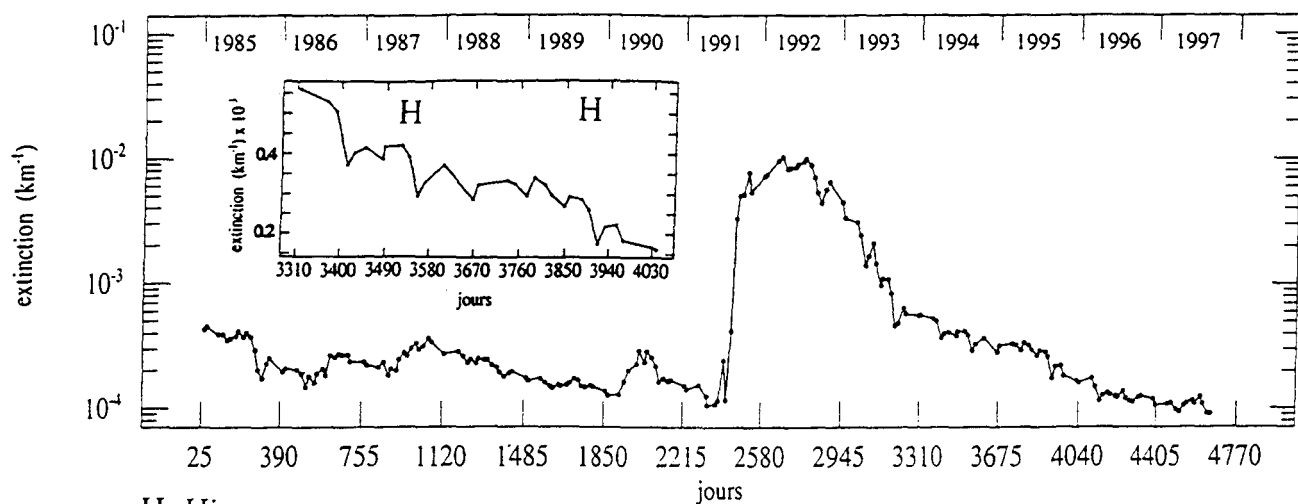
5.4.1.1. Evolution à 20.5 km.

Les figures 5.4.1.a-f présentent l'évolution du coefficient d'extinction à 1.020 μm de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45, S25, S5, N5, N25 et N45 à l'altitude 20.5 km.

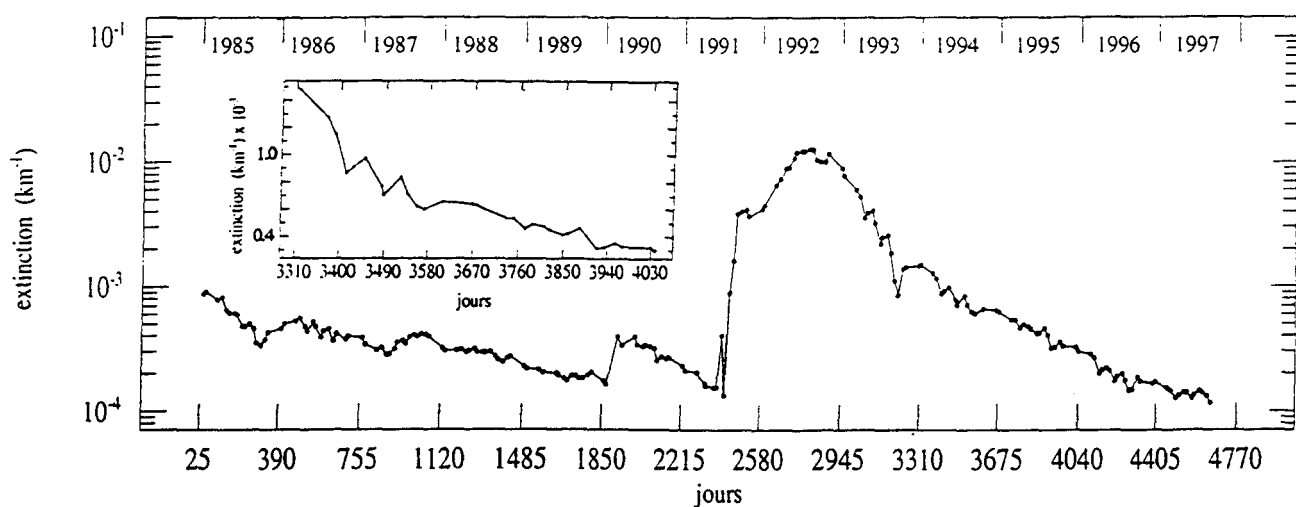
En premier lieu, il faut préciser que pour certaines périodes les données d'extinction ne sont pas exploitables car on a plus de 100% d'erreurs sur les profils individuels des coefficients d'extinction. C'est le cas, par exemple, pour la bande S5 entre mai 1991 et août 1992 (figure 5.4.1.c) ou encore la bande N5 entre juillet 1991 et septembre 1992 (figure 5.4.1.d). Les erreurs importantes sur les coefficients d'extinction sont en fait dues à l'éruption du Mont Pinatubo en 1991.

En deuxième lieu, il est indéniable qu'une augmentation de l'extinction est corrélée à une éruption volcanique majeure. Sont ainsi mises en évidence, par exemple pour la gamme de latitudes N5 (figure 5.4.1.d), les éruptions du Nevado del Ruiz (1) en novembre 1985 (4.89°N, 75.37°W) [Yue et al., (1991)], du Kelut (2) en février 1990 (7.56°S, 112.16°E) et du Mont Pinatubo (3) en juin 1991 (15.14°N, 120.35°E). Les éruptions volcaniques majeures accroissent fortement les quantités des particules stratosphériques [Cadle et al., (1976)]. Par contre, il est très difficile de dissocier les éruptions du Mont Cerro Hudson dans le sud du Chili (49.9°S, 73.0°W) en août 1991 et du Mont Pinatubo. Par ailleurs, sont

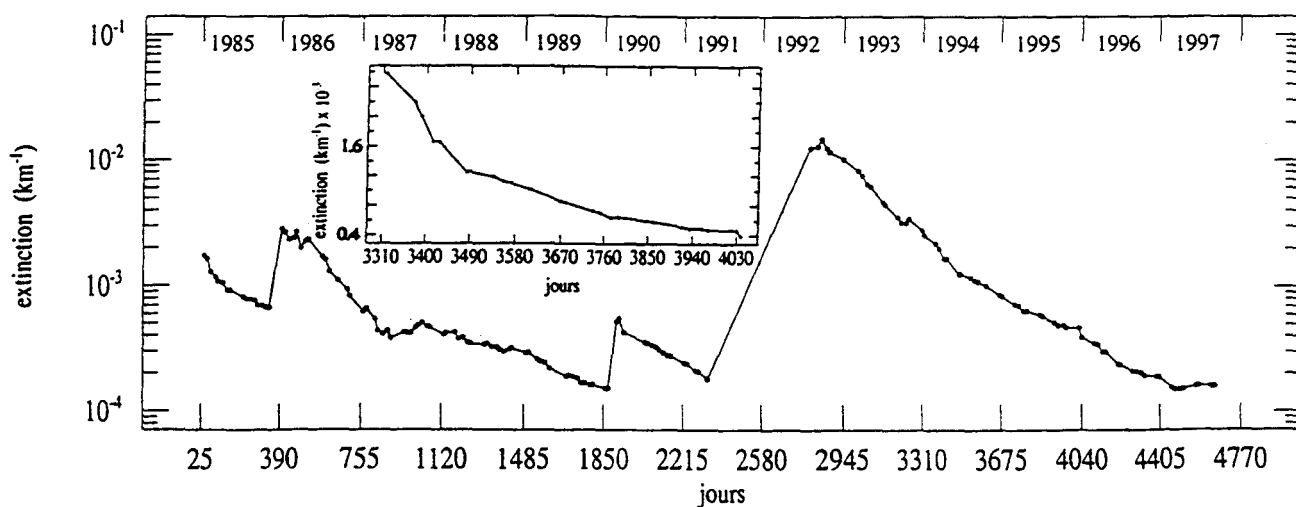
Bande 05: S45



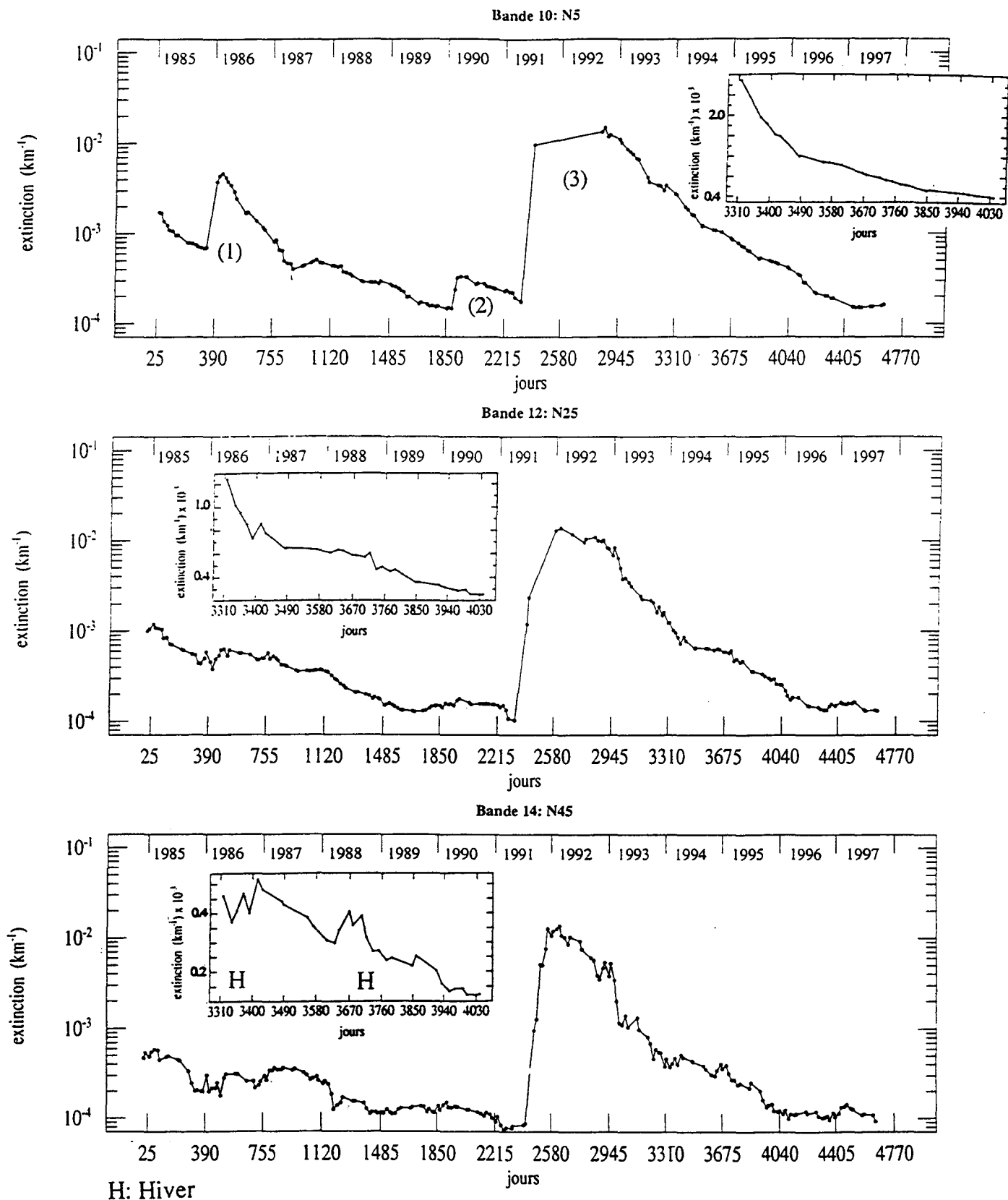
Bande 07: S25



Bande 09: S5



figures 5.4.1.a-c. Evolution du coefficient d'extinction à $1.020 \mu\text{m}$ de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45 (a), S25 (b) et S5 (c) à l'altitude 20.5 km.



figures 5.4.1.d-f. Evolution du coefficient d'extinction à 1.020 μm de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes N5 (d), N25 (e) et N45 (f) à l'altitude 20.5 km.

représentées sur la figure 5.4.2 les épaisseurs optiques à 0.525 et 1.020 μm de janvier 1985 à mai 1987 pour la bande de latitudes 5N. On distingue ainsi qu'il s'écoule environ trois mois pour que les épaisseurs optiques atteignent un maximum à la suite de l'éruption du Ruiz en novembre 1985. Cette étude confirme l'analyse préalable de Turco et al., (1982) qui indiquèrent qu'à la suite d'éruptions volcaniques majeures, l'épaisseur optique de la stratosphère augmente jusqu'à un maximum typiquement en trois mois.

En troisième lieu on remarque, de 1991 à nos jours, une baisse des coefficients d'extinction à 1.020 μm (figures 5.4.1.a-f). Cela correspond à la sédimentation gravitationnelle des aérosols volcaniques issus de l'éruption du Mont Pinatubo en juin 1991 [Thomason et al., (1997)]. Par ailleurs si l'éruption de El Chichon (17.3°N, 93.2°W) en 1982 est antérieure à la mise en route de SAGE II, la sédimentation des aérosols volcaniques issus de cette éruption est observable durant l'année 1985.

En quatrième lieu, est partiellement mise en évidence l'existence d'oscillations saisonnières qui se produisent essentiellement entre 20 et 60° de latitude (voir figures 5.4.1.a-b pour l'hémisphère sud et 5.4.1.e-f pour l'hémisphère nord ainsi que les agrandissements des années 1994 et 1995 correspondant à la période allant du 3310^{ème} au 4030^{ème} jour) avec un maximum prononcé pour les hautes latitudes. On constate qu'entre les tropiques et à l'équateur (figures 5.4.1.c et 5.4.1.d), ces oscillations ne sont pas apparentes. Sont représentées sur la figure 5.4.3.a-d les évolutions temporelles de l'altitude de la tropopause pour les bandes S45, S5, N5, N45. Il apparaît qu'il existe une corrélation entre les oscillations saisonnières et l'altitude de la tropopause. Dans les bandes de latitudes proches de l'équateur, l'altitude de la tropopause varie beaucoup moins en étant pratiquement toujours comprise entre 16 et 17 km et il y a peu d'oscillations saisonnières. En dehors de périodes volcaniques intenses, par exemple de 1987 à 1990, on constate que les coefficients d'extinction sont maximum en hiver pour les bandes de latitudes S45 et S65. Ils décroissent

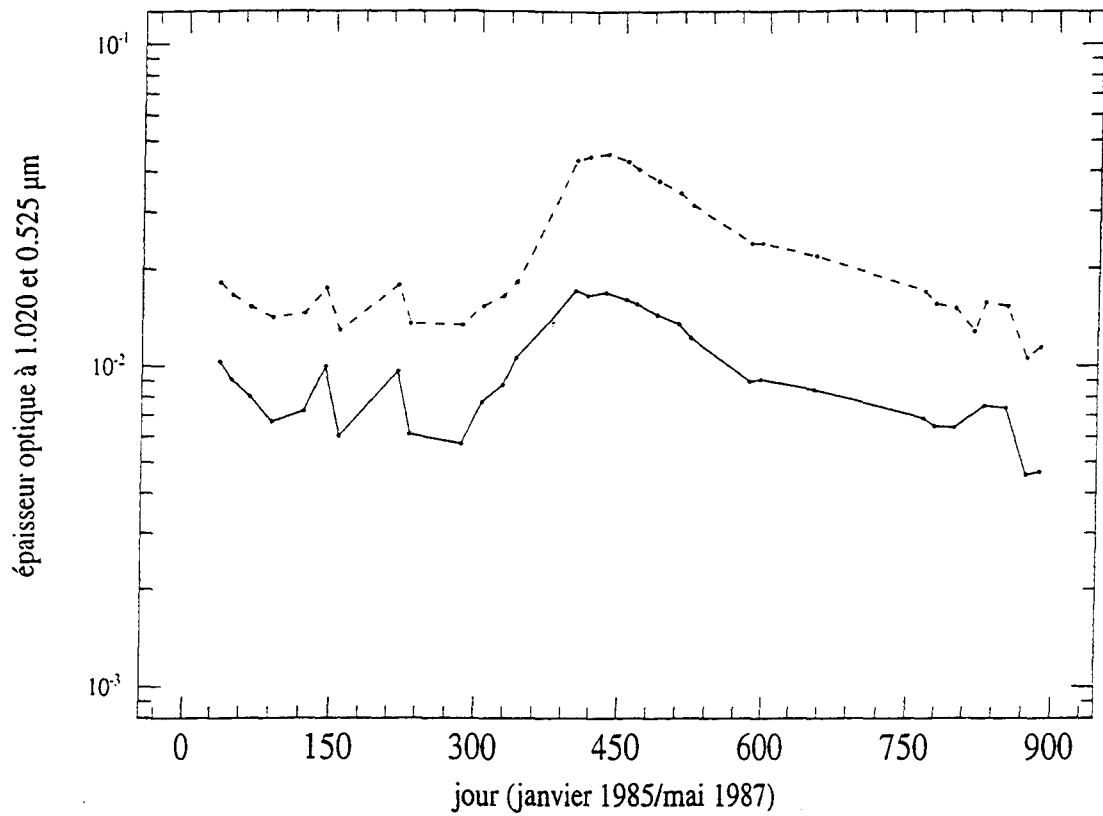


figure 5.4.2. Evolution de l'épaisseur optique (intégrée de 2 km au-dessus de l'altitude de la tropopause à 40 km) à 0.525 μm (-----) et à 1.020 μm (—) pour la bande de latitudes N5 entre janvier 1985 et mai 1987.

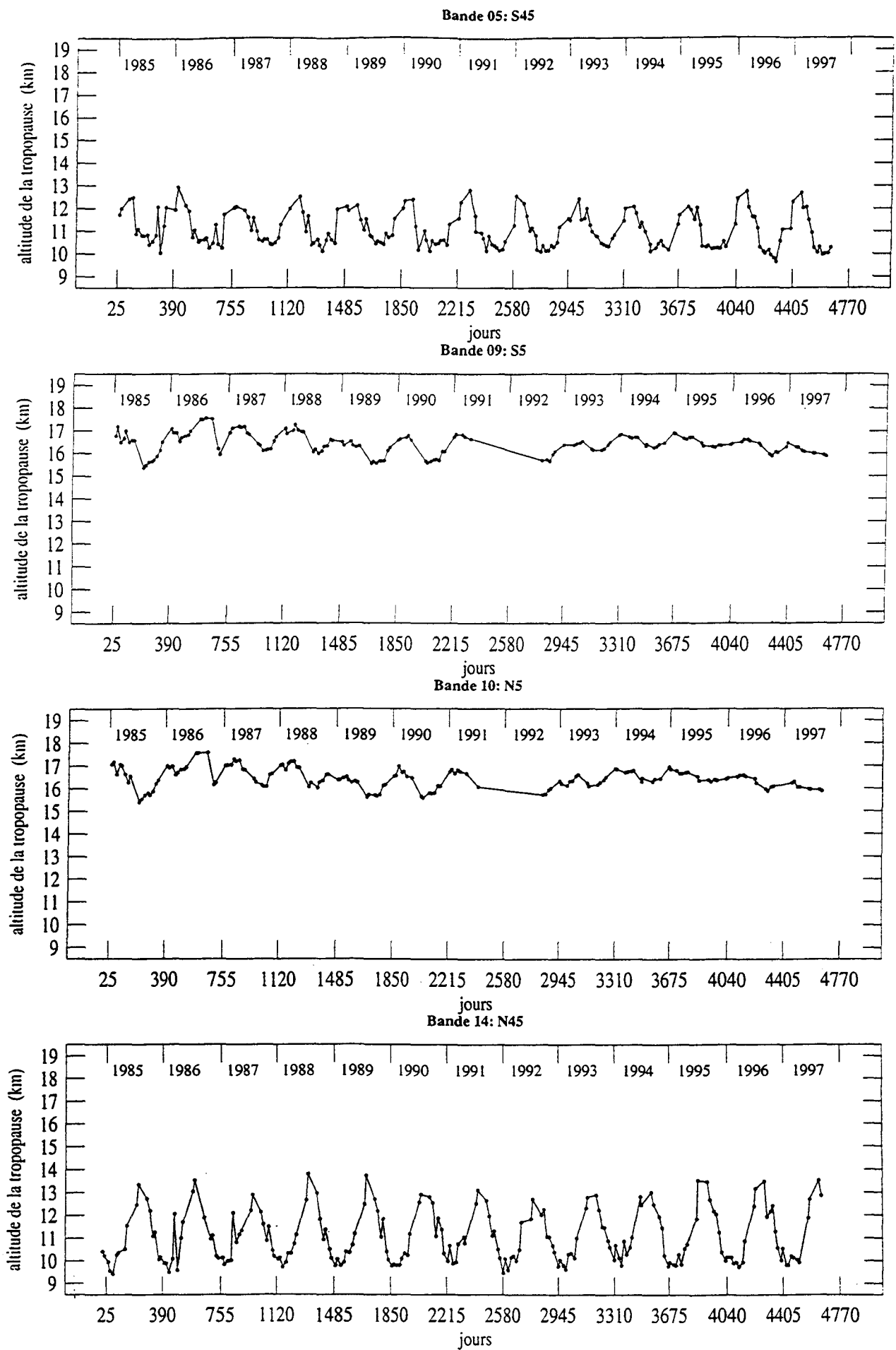
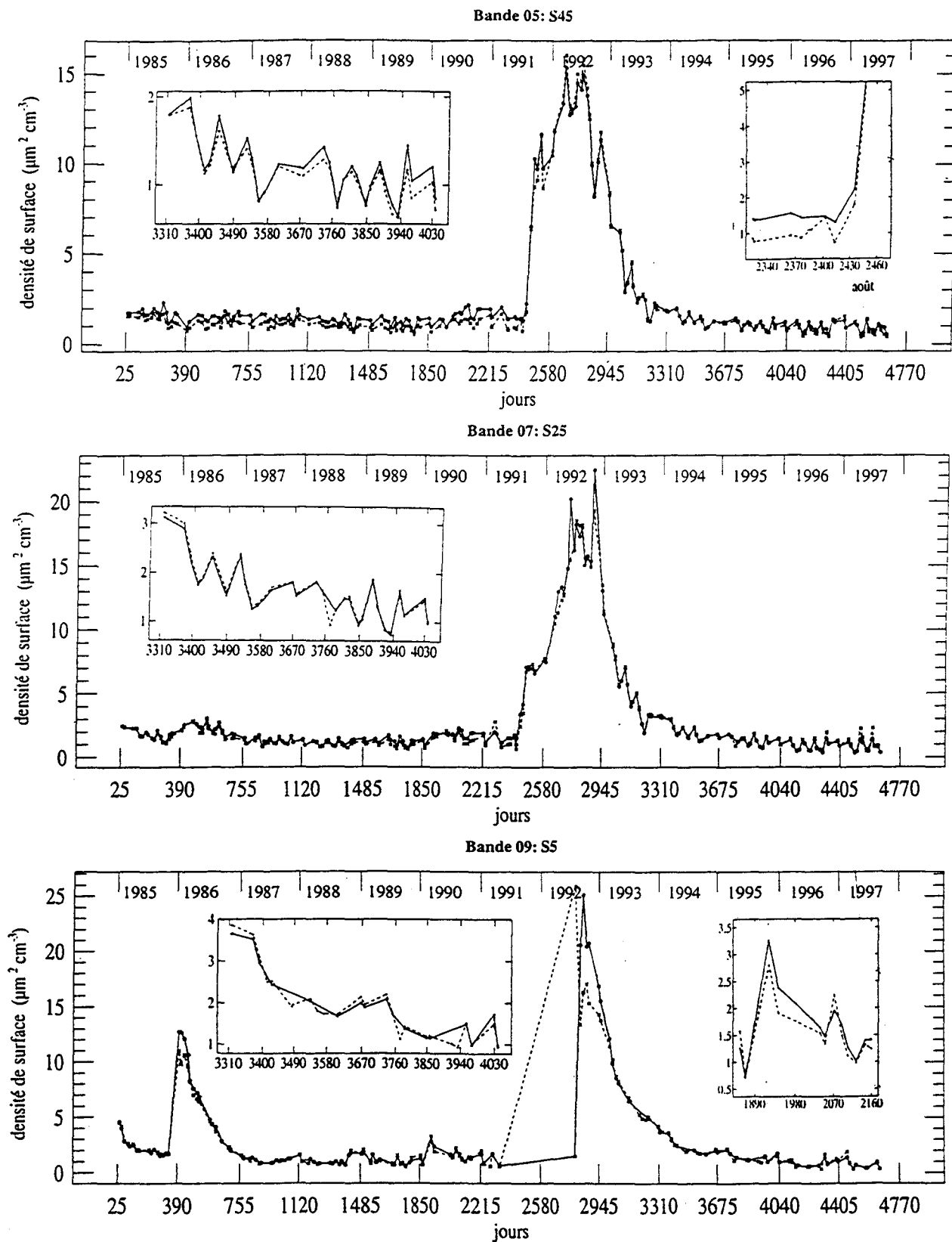


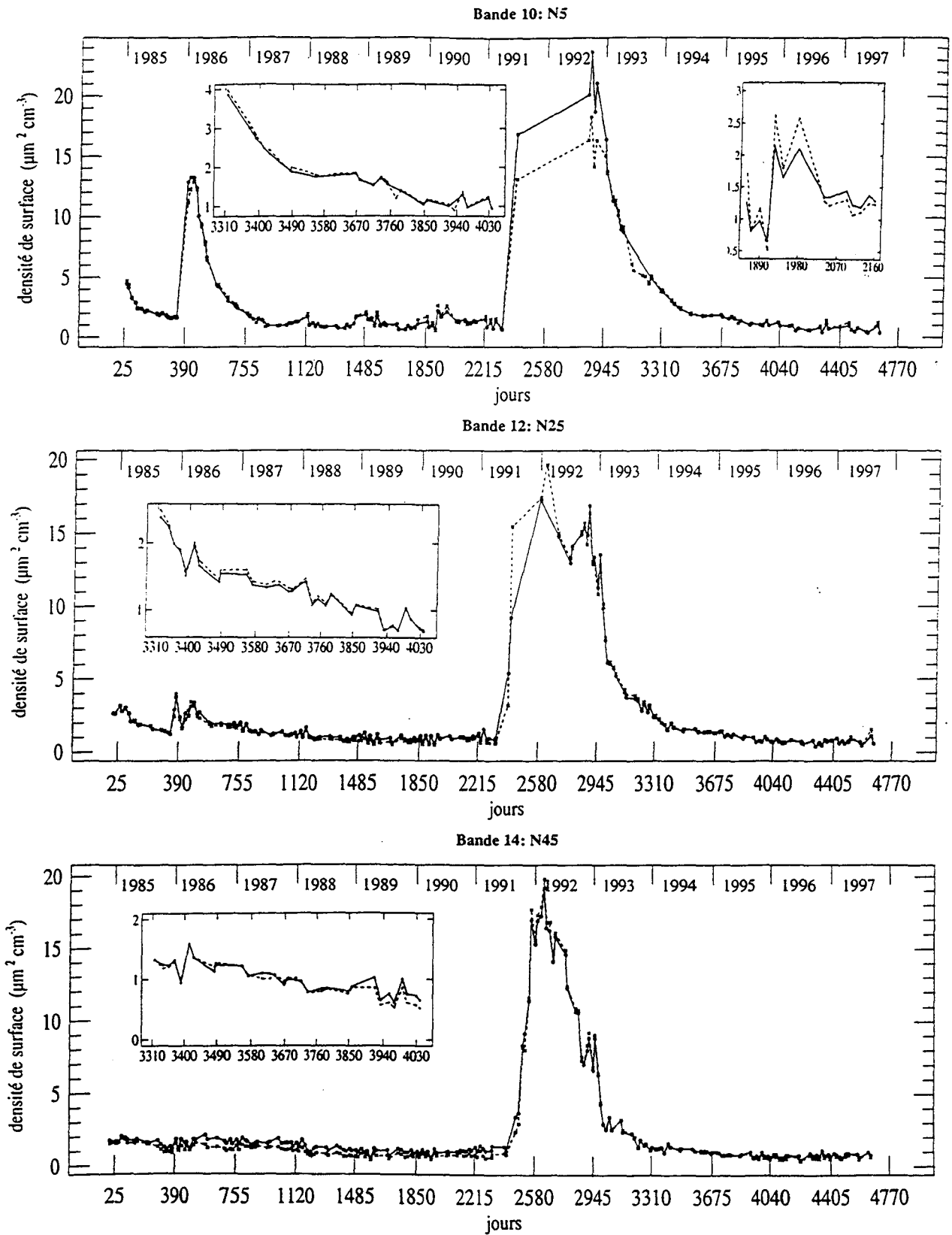
figure 5.4.3. Evolution de l'altitude de la tropopause de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45 (a), S5 (b), N5 (c) et N45 (d).

durant le printemps. Hofmann et al., (1975) aboutissent à des conclusions similaires à partir de mesures ballons effectuées au-dessus du Wyoming (à environ 41°N). En fait la couche d'aérosols est très stable en été, avec une haute troposphère et une basse stratosphère relativement peu chargées de particules. Au cours de l'hiver, l'altitude de la tropopause diminue, la couche devient plus homogène et le nombre d'aérosols dans la basse stratosphère augmente. Hofmann et al., (1975) ont alors déduit que la diminution du nombre de particules dans la stratosphère s'effectue au printemps et en été, en raison des processus d'échanges complexes qu'il y a entre la stratosphère et la troposphère durant cette période.

En cinquième lieu, l'augmentation notable de l'extinction est corrélée à une hausse de la densité de surface et de volume des aérosols. Les figures 5.4.4.a-f et 5.4.5.a-f présentent respectivement l'évolution de la densité de surface et de volume des aérosols obtenus par la CLI et la LSFM dans les mêmes conditions que les figures 5.4.1.a-f. On distingue épisodiquement (voir agrandissement des années 1994 et 1995), quand on s'éloigne de l'équateur, les évolutions saisonnières de la surface et du volume qui ont mêmes allures que celles des coefficients d'extinction avec en général un maximum en hiver et un minimum en été. Cette étude est en accord avec celle de Thomason et al., (1991) qui a estimé, lui aussi, la densité de surface des aérosols stratosphériques à l'aide des mesures SAGE II et par des mesures in-situ avec un compteur optique de particules lâché également au Wyoming. Pour la période juin 1991-décembre 1994 succédant à l'éruption du Pinatubo, la densité de surface diminue régulièrement et présente des oscillations saisonnières avec un minimum en été et un maximum en hiver pour la bande de latitudes 35-45°N [Thomason et al., (1991)]. Par ailleurs les allures similaires des variations de la densité de surface et de la densité de volume rendent crédibles et fiables la CLI et la LSFM. Cependant on peut remarquer les rares difficultés qu'ont les deux méthodes d'inversion pour déterminer de manière identique ces deux caractéristiques peu après l'éruption du Mont Pinatubo. On a l'impression que la LSFM présente des variations moins régulières que la CLI. Les différentes éruptions volcaniques

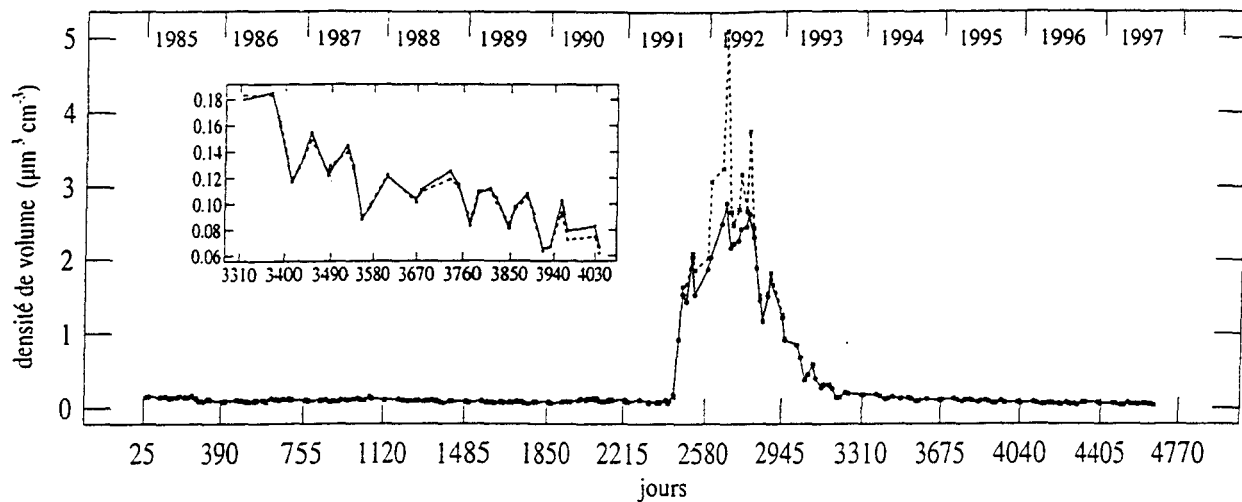


figures 5.4.4.a-c. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—) et la LSFM (---) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45 (a), S25 (b) et S5 (c) à l'altitude 20.5 km.

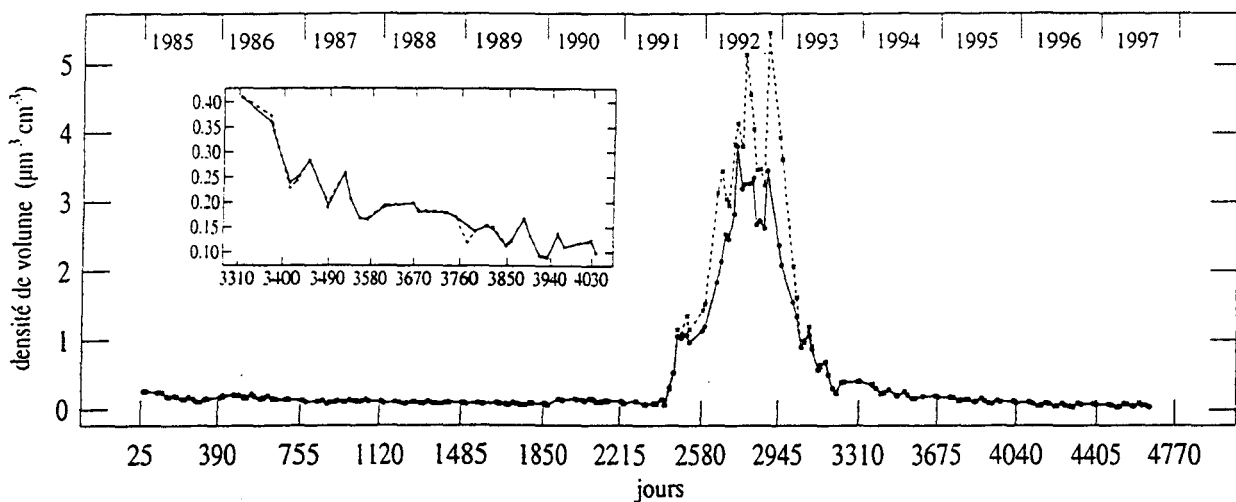


figures 5.4.4.d-f. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LFSM (---x---) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes N5 (d), N25 (e) et N (45) à l'altitude 20.5 km.

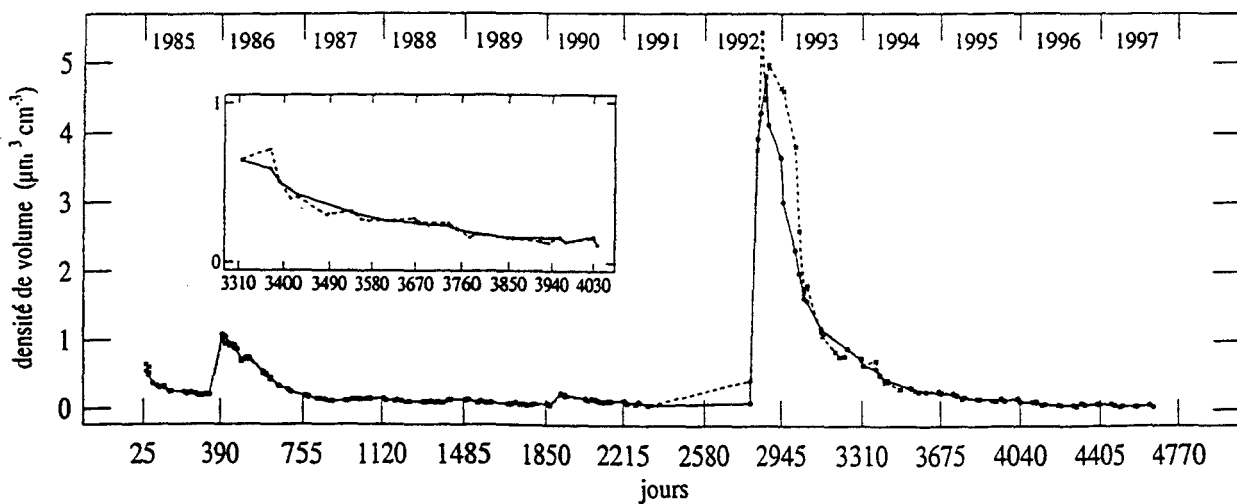
Bande 05: S45



Bande 07: S25

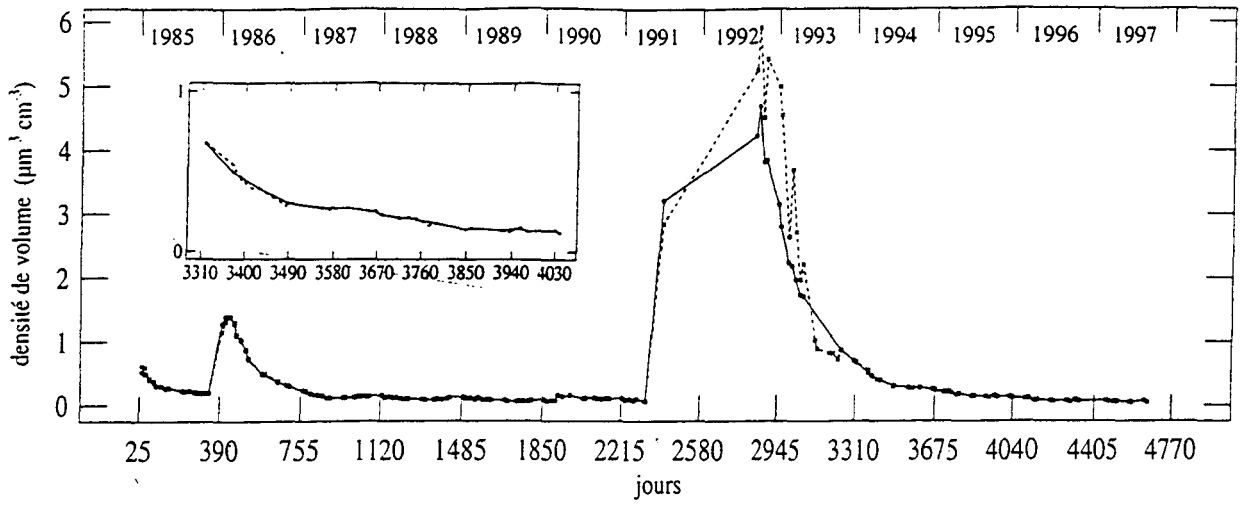


Bande 09: S5

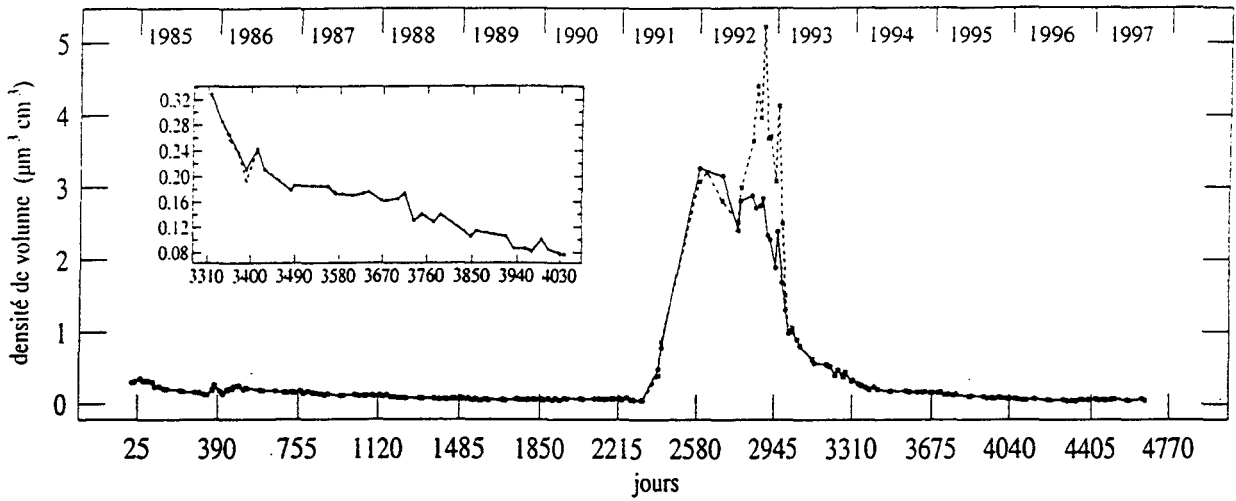


figures 5.4.5.a-c. Idem que pour les figures 5.4.4.a-c mais pour la densité de la volume.

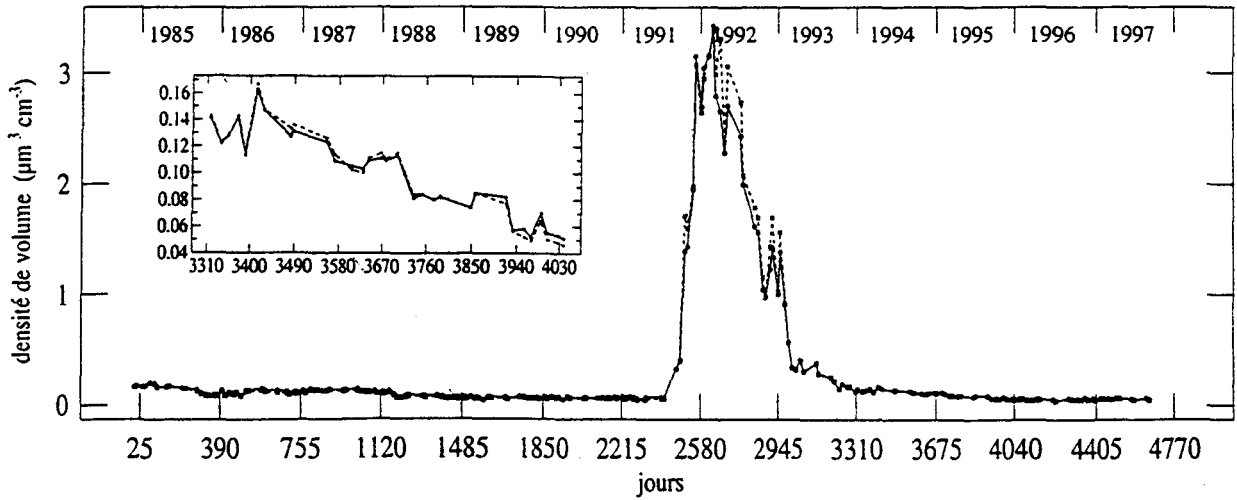
Bande 10: N5



Bande 12: N25



Bande 14: N45



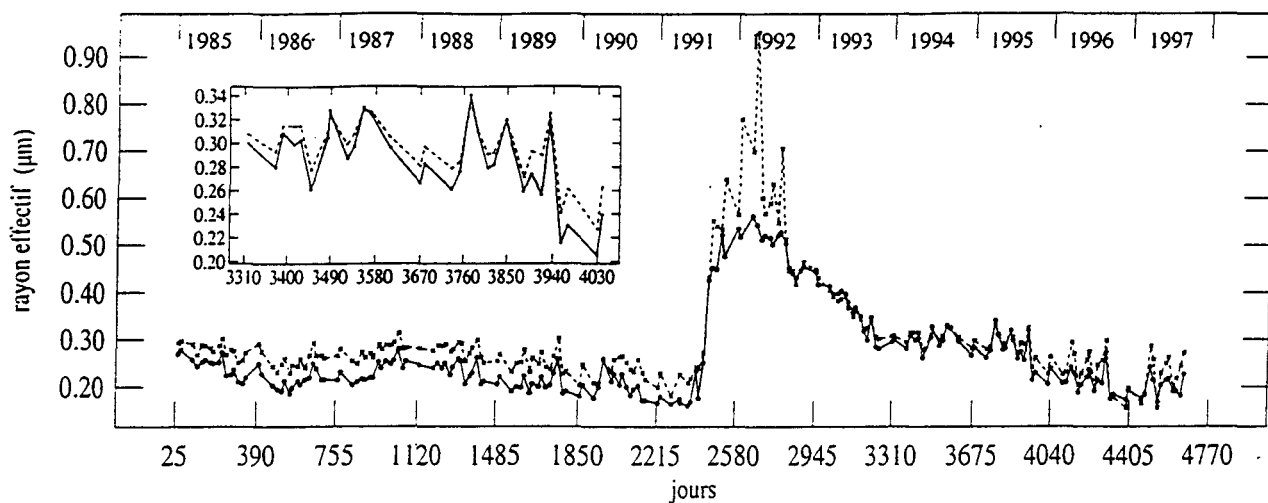
figures 5.4.5.d-f. Idem que pour les figures 5.4.4.d-f mais pour la densité de la volume.

sont mises en évidence. L'éruption du Mont Pinatubo a fait par exemple multiplier la densité de surface par 15 voire par 20 pour les bandes de latitude S25 et N25. On distingue, à l'approche de l'équateur, pour les bandes de latitudes 5S et 5N, l'influence du Nevado del Ruiz au début de l'année 1986 avec une densité de surface égale à $13 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$. L'influence du Kelut est quant à elle moins nette mais on distingue quand même au printemps 1990, surtout dans l'hémisphère sud, une augmentation de la densité de surface de $2 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ (voir zoom sur les figures 5.4.4.c et 5.4.4.d) et un léger accroissement de la densité de volume.

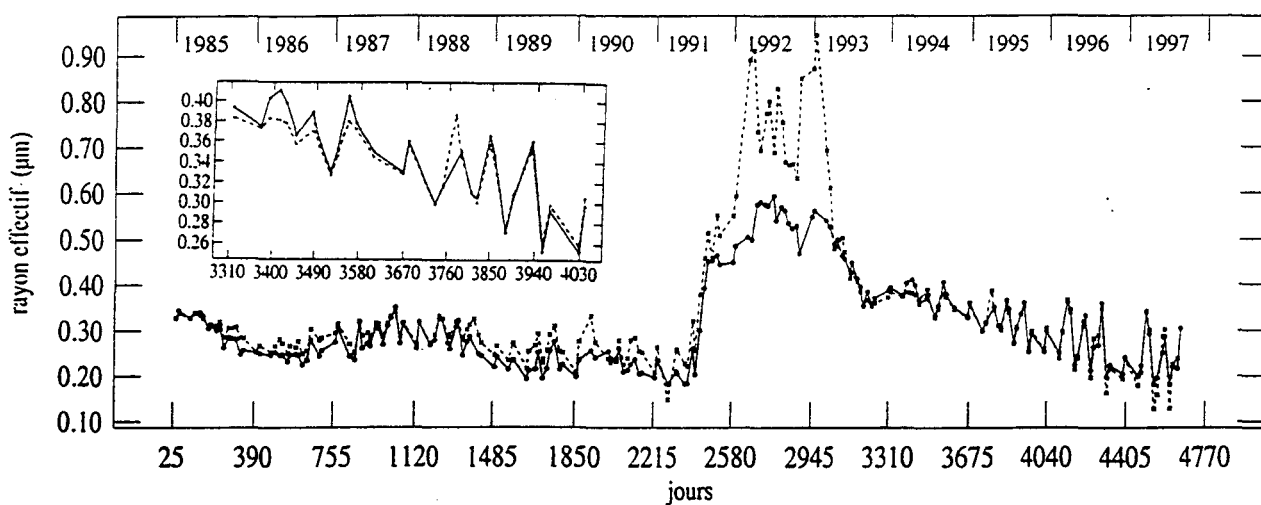
On voit que début août 1991, dans l'hémisphère sud, pour la bande de latitudes S45 la valeur de la surface est de $2.5 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ quelle que soit la méthode d'inversion utilisée alors qu'elle était toujours inférieure à 2 unités jusqu'alors (voir zoom sur la figure 5.4.4.a). Cette valeur indique que les aérosols stratosphériques issus de l'éruption du Pinatubo sont déjà présents dans cette gamme de latitudes. A l'équateur, entre 10°N et 10°S , dans la basse stratosphère, est présente une oscillation, de 27 mois approximativement en moyenne, se traduisant par une rotation progressive des vents qui vont d'est en ouest et inversement. Cette lente oscillation, appelée "*Quasi Biennial Oscillation*" (QBO), affecte non seulement les vents, mais aussi la distribution des aérosols et des autres constituants [Chipperfield et al., (1994)]. La QBO a eu pour conséquence de favoriser l'expansion rapide du nuage d'aérosols du Pinatubo dans l'hémisphère sud au contraire du nuage volcanique du El Chichon qui est resté longtemps confiné dans les régions boréales. En effet les éruptions volcaniques des Monts El Chichon et Pinatubo se produisirent durant des phases différentes de l'oscillation quasi-biennale.

Les figures 5.4.6.a-f montrent l'évolution du rayon effectif toujours dans les mêmes conditions précitées. Il faut premièrement souligner, comme pour les densités de surface et de volume, les quelques difficultés qu'ont la CLI et la LSFM pour déterminer de façon similaire

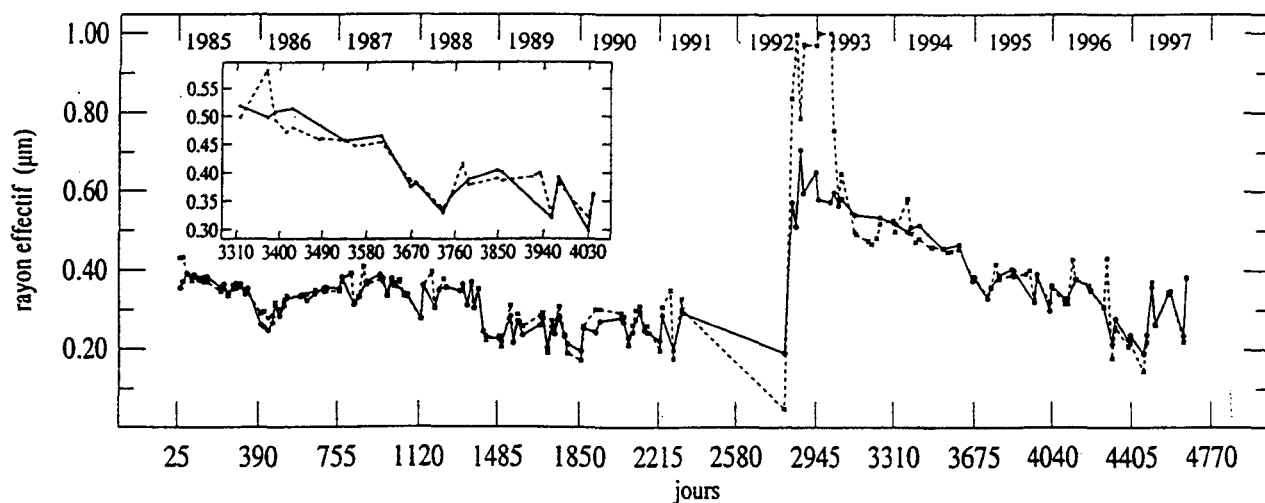
Bande 05: S45



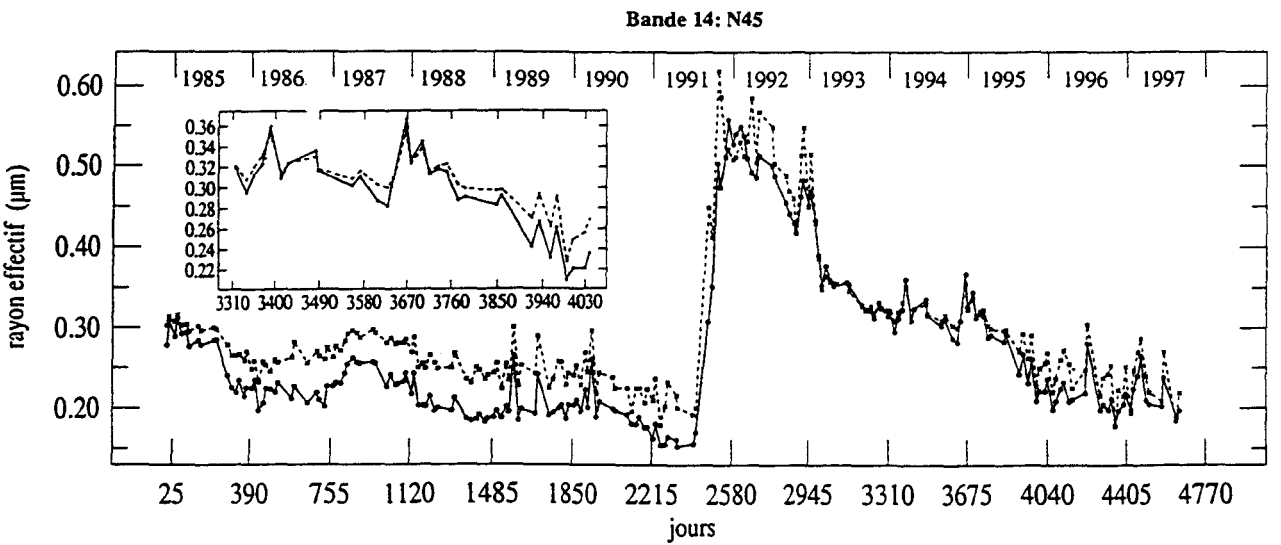
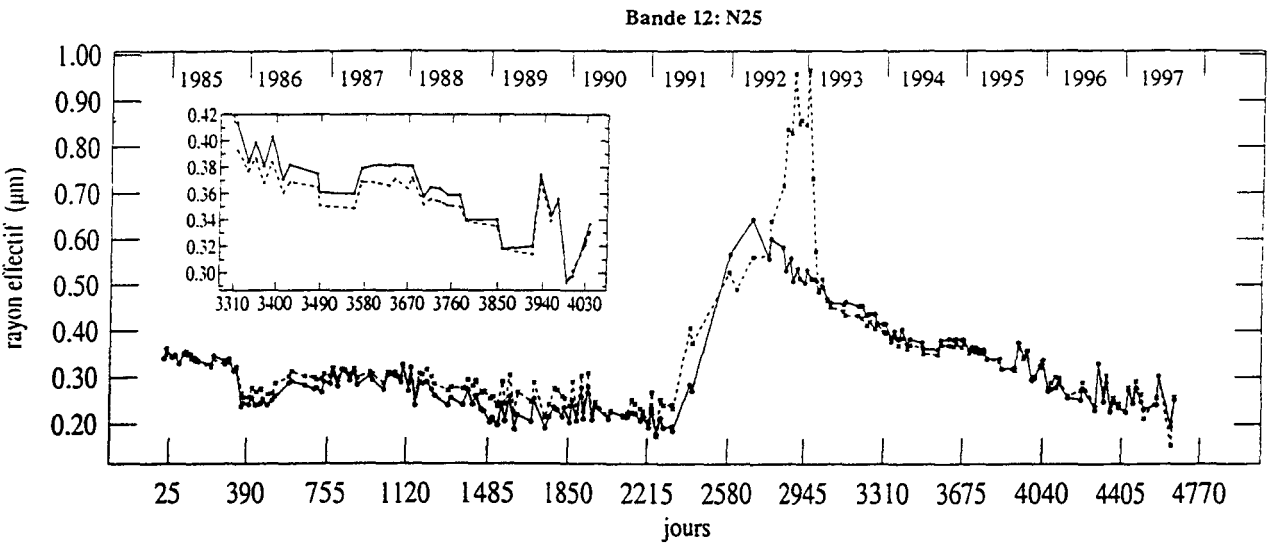
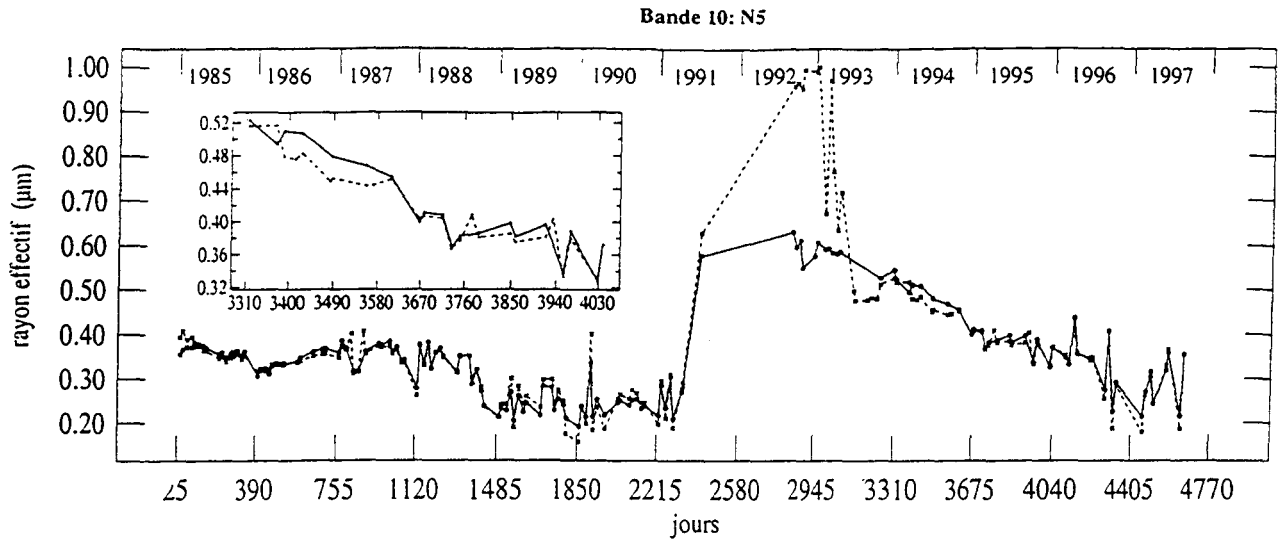
Bande 07: S25



Bande 09: S5



figures 5.4.6.a-c. Idem que pour les figures 5.4.4.a-c mais pour le rayon effectif.



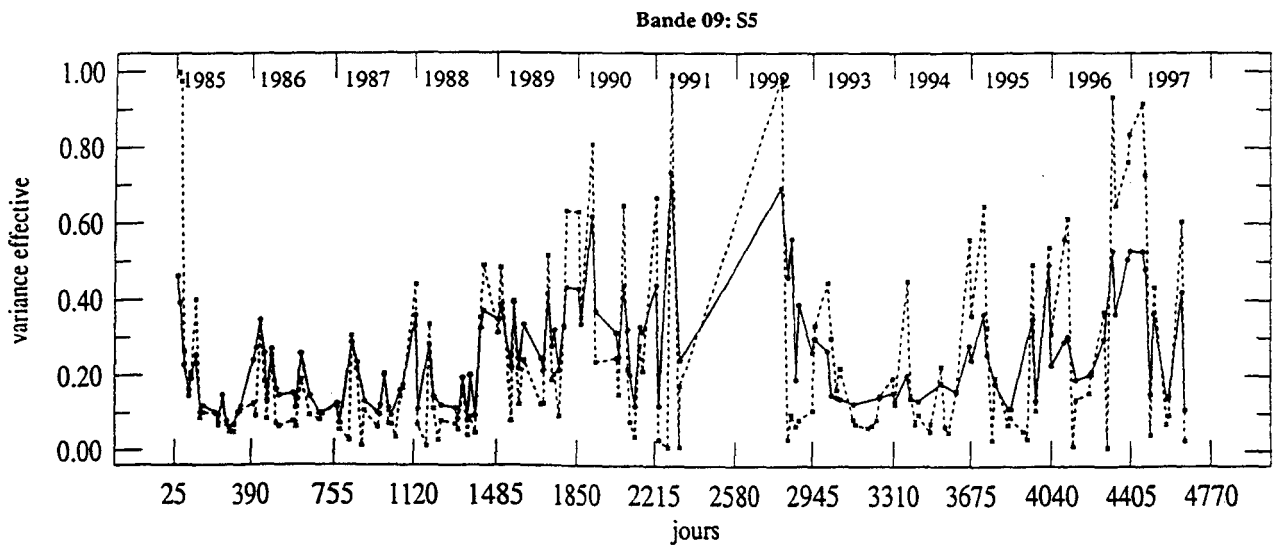
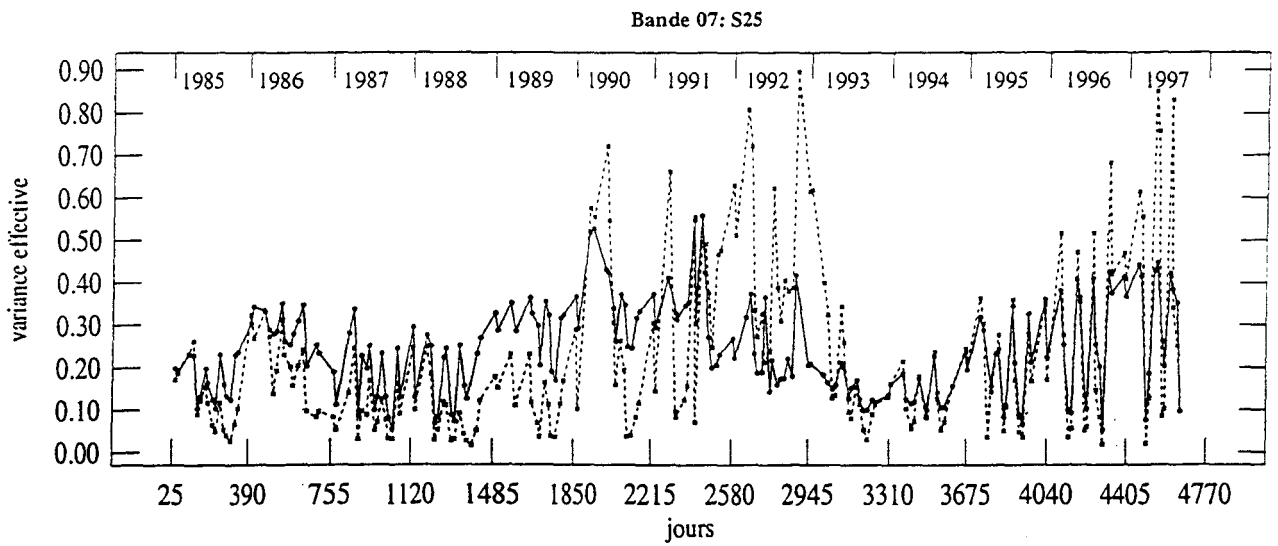
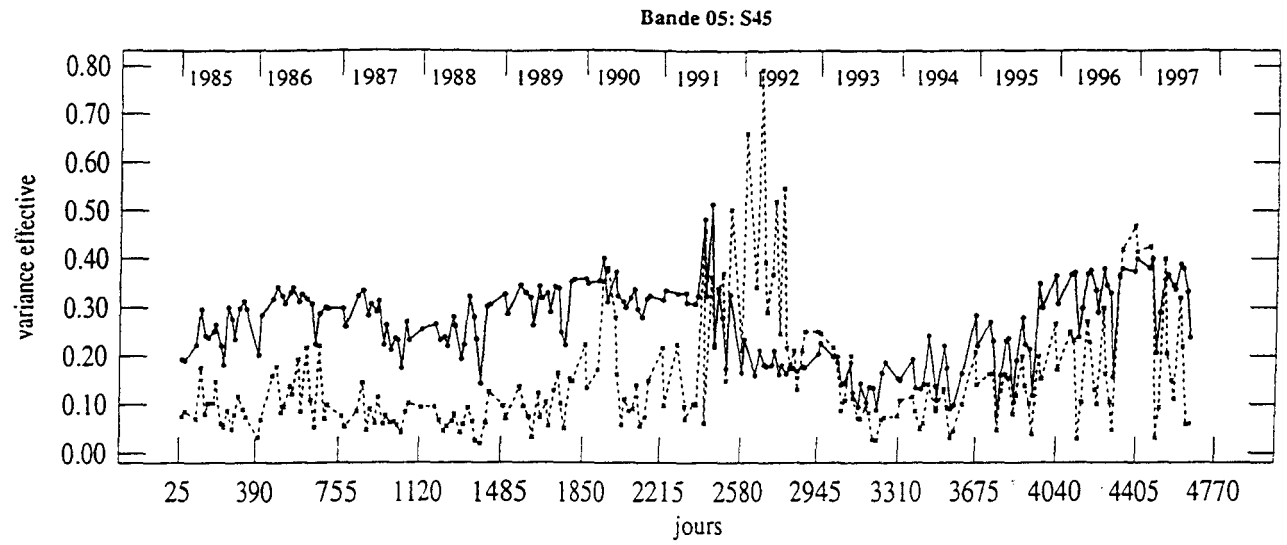
figures 5.4.6.d-f. Idem que pour les figures 5.4.4.d-f mais pour le rayon effectif.

cette caractéristique pour les quelques données disponibles peu de temps après l'éruption du Mont Pinatubo (figure 5.4.6.a-e). Après l'éruption du volcan philippin, le rayon effectif est déterminé de façon identique par les deux techniques d'inversion. Dans la majorité des cas, l'augmentation notable de l'extinction est corrélée à une croissance de la taille des aérosols. C'est exact par exemple pour la bande de latitudes N5 (figures 5.4.1.d et 5.4.6.d) pour le Pinatubo où les aérosols sont très gros avec un rayon effectif de l'ordre de 0.60 μm mais aussi pour le Ruiz où le rayon effectif passe de 0.30 à 0.38 μm (figure 5.4.6.d). On distingue un pic au début de l'année 1990 avec une valeur du rayon effectif proche de 0.40 μm symbolisant l'éruption du Kelut (figure 5.4.6.d). Par contre la caractérisation du rayon effectif ne permet pas de mettre en évidence les évolutions saisonnières évoquées précédemment (voir, entre autres, les agrandissements des années 1994 et 1995).

Par ailleurs, une autre difficulté réside, comme nous l'avions vu dans le chapitre 4, dans la détermination de la variance effective où les deux méthodes présentent figures 5.4.7.a-f des résultats plutôt disparates surtout au fur et à mesure qu'on se rapproche des hautes latitudes. Ainsi pour les bandes de latitudes 45S (figure 5.4.7.a) et 45N (figure 5.4.7.f) on constate qu'il existe une différence de 0.15 entre les deux techniques d'inversion pour la période 1985-1990.

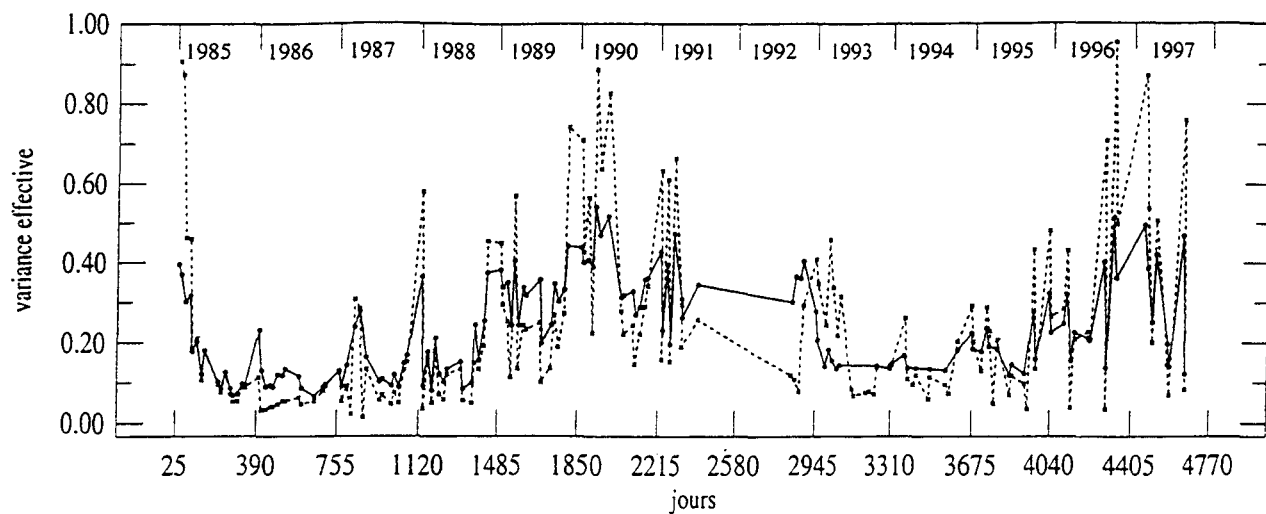
5.4.1.2. Evolution au-dessous de 20.5 km.

Les figures 5.4.8.a-b et 5.4.9.a-b présentent respectivement les évolutions temporelles de la densité de surface et du rayon effectif entre 1984 et 1997 uniquement pour les bandes de latitudes S45 et N45 à l'altitude 15.5 km.

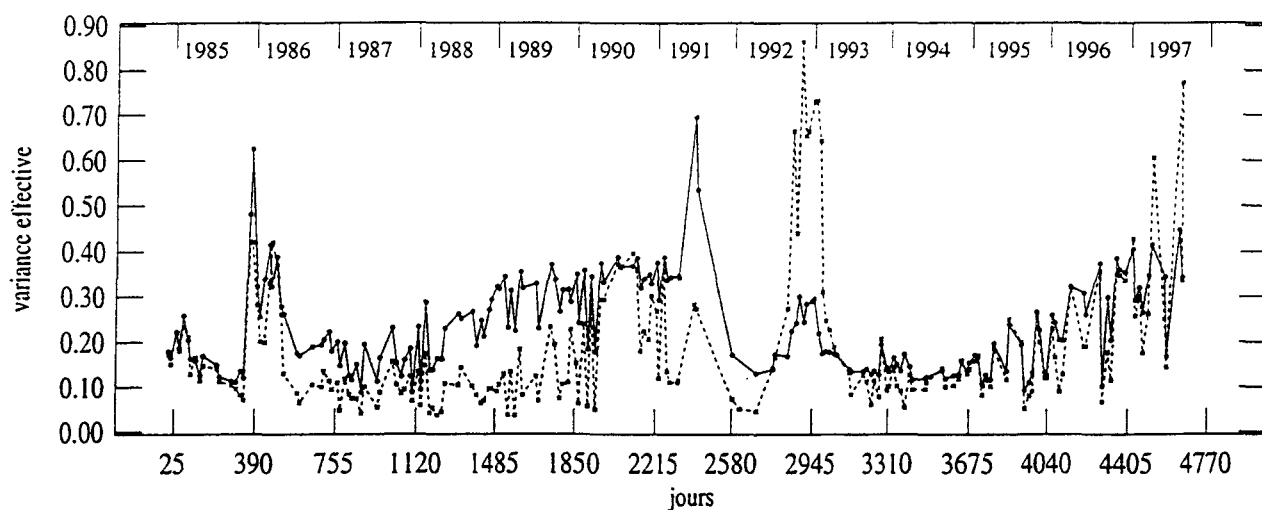


figures 5.4.7.a-c. Idem que pour les figures 5.4.4.a-c mais pour la variance effective.

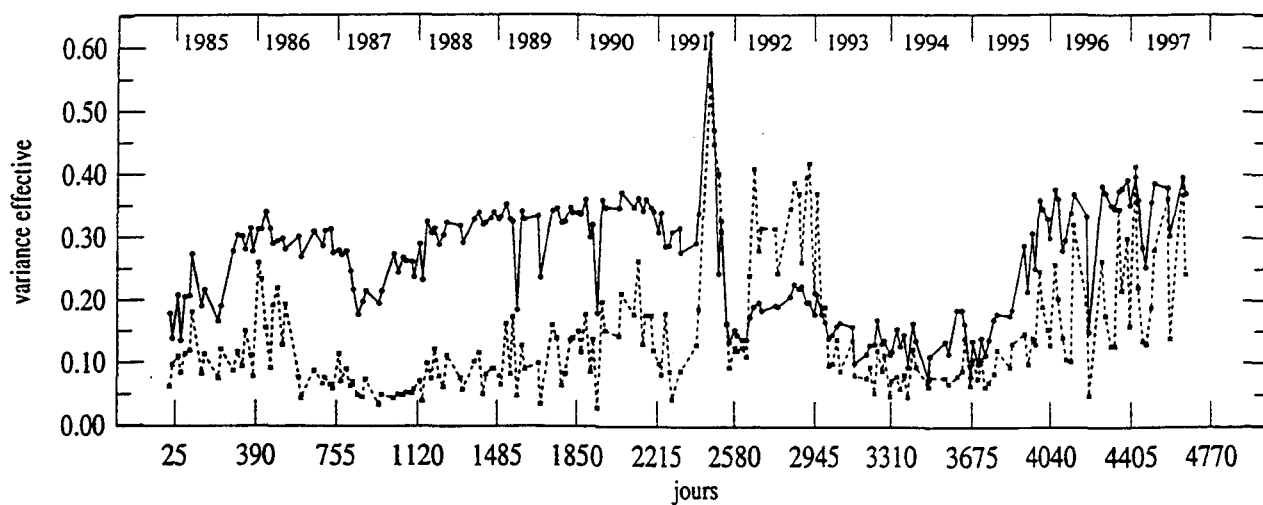
Bande 10: N5



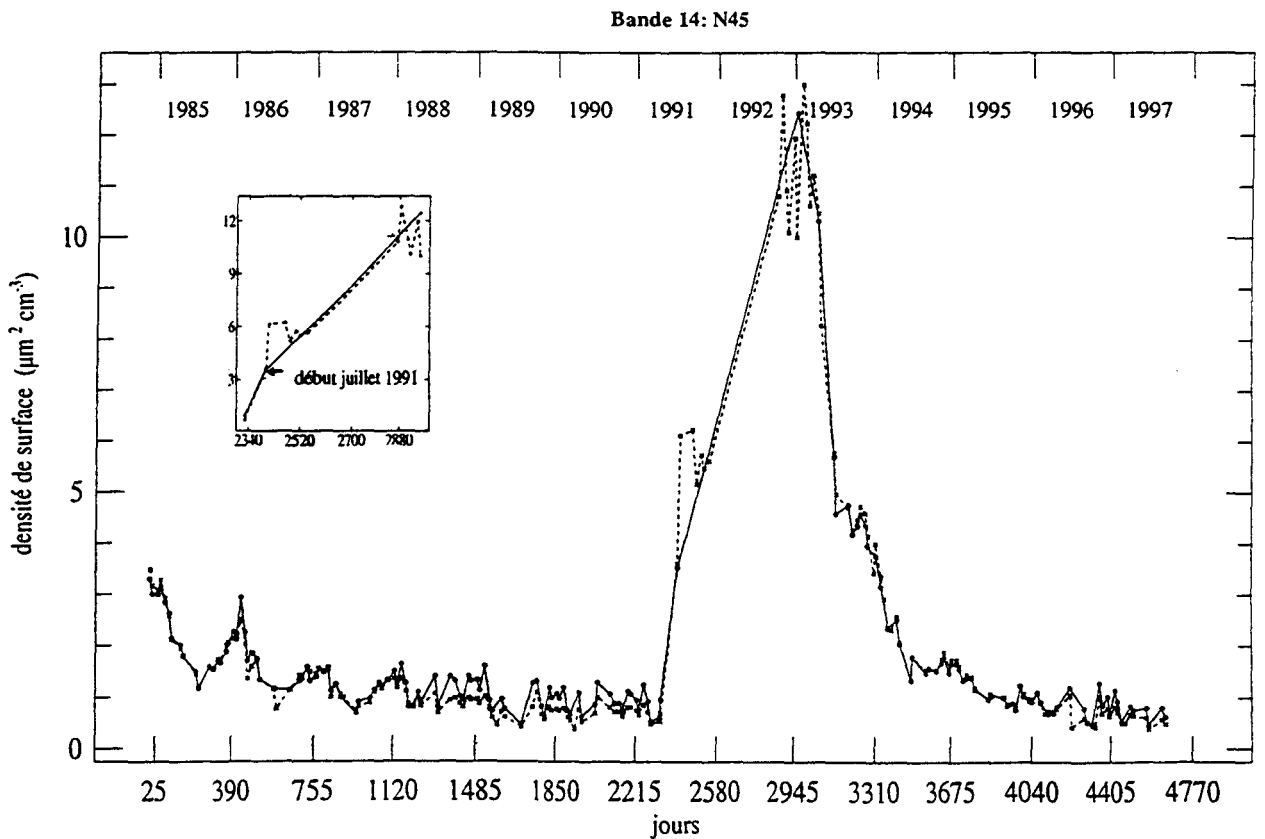
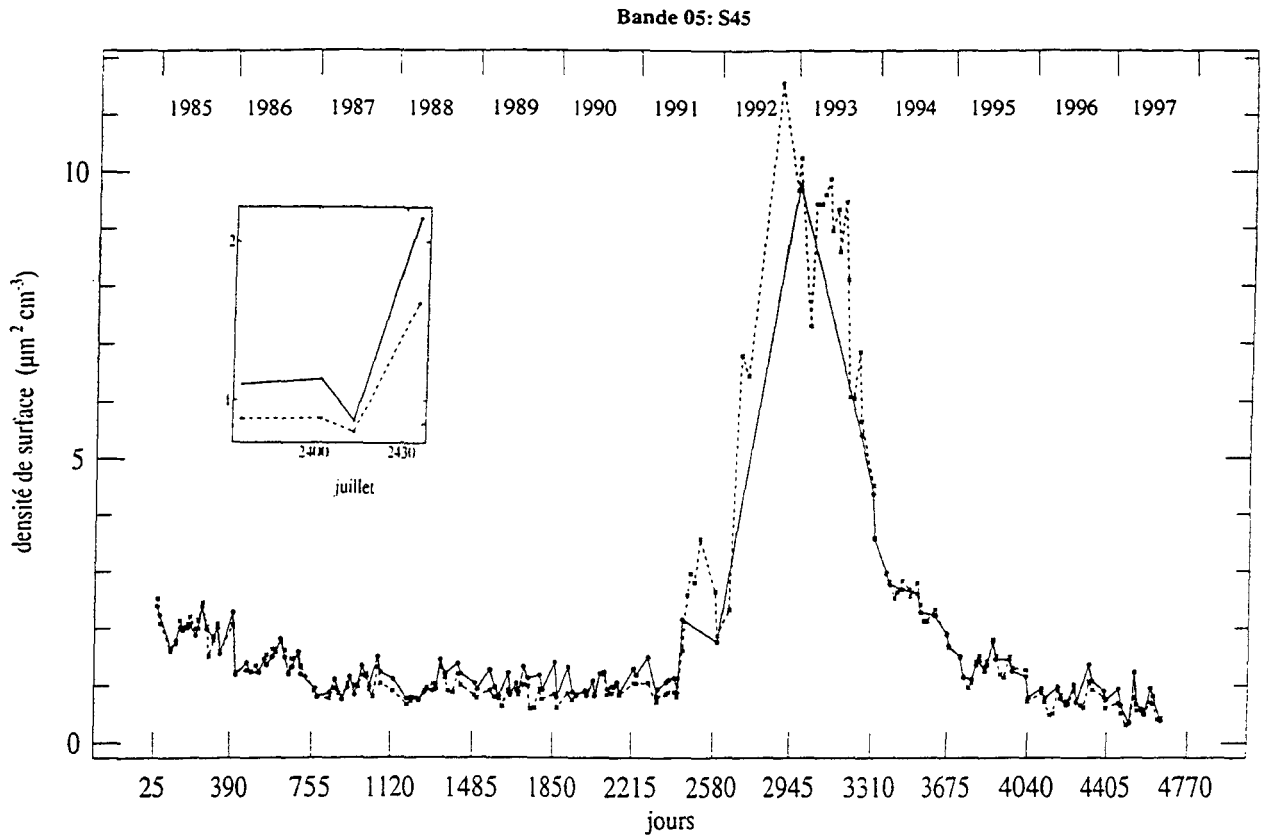
Bande 12: N25



Bande 14: N45

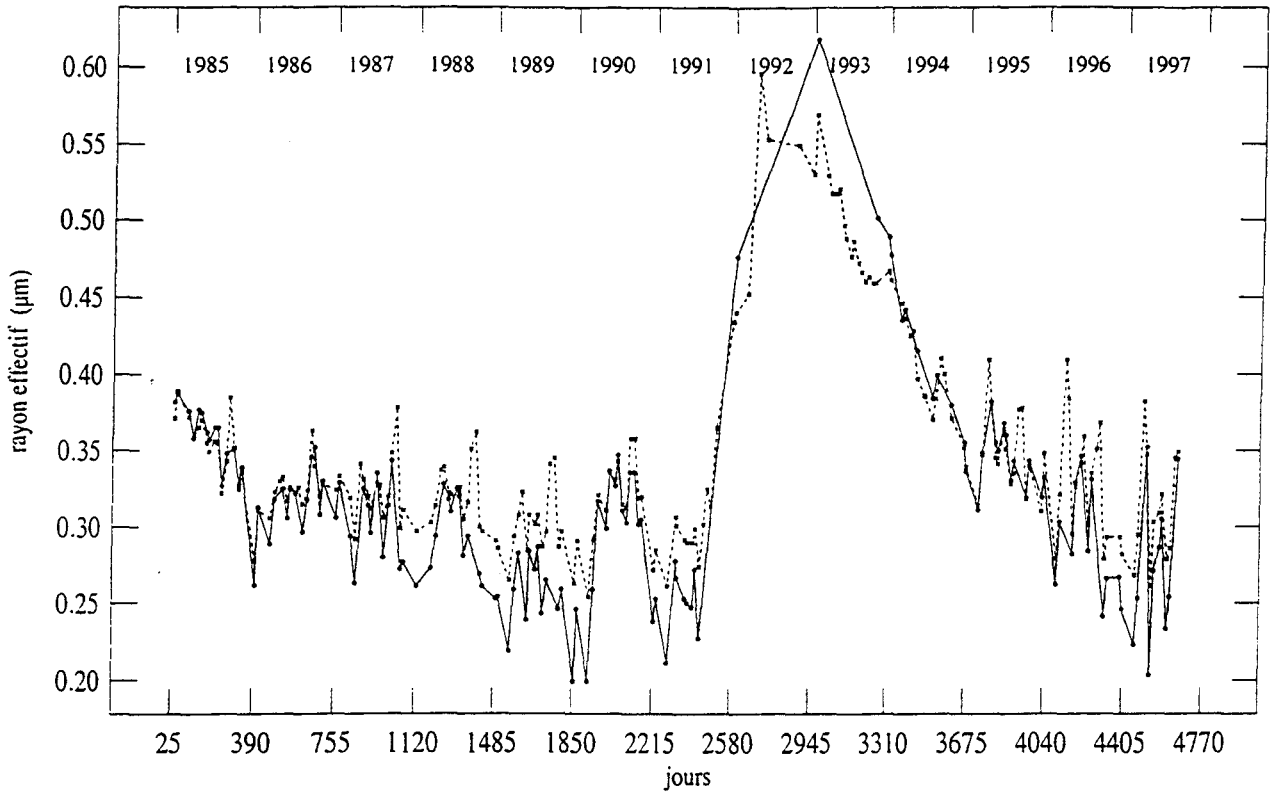


figures 5.4.7.d-f. Idem que pour les figures 5.4.4.d-f mais pour la variance effective.

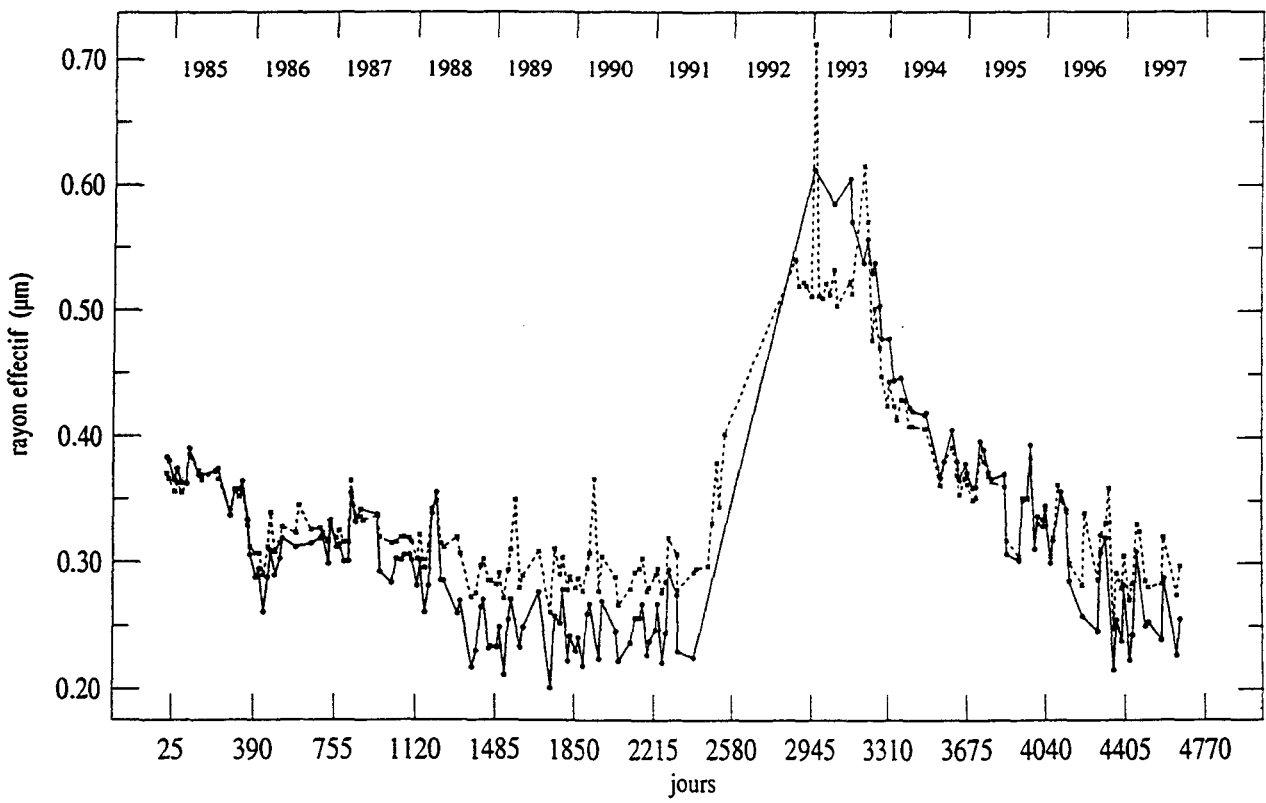


figures 5.4.8.a-b. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LSFM (---*---) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45 (a) et N45 (b) à l'altitude 15.5 km.

Bande 05: S45



Bande 14: N45



figures 5.4.9.a-b. Idem que pour les figures 5.4.8.a-b mais pour le rayon effectif.

L'altitude de la tropopause élevée à l'équateur (plus de 15 km) et aux alentours (proche de 15 km) ne permet pas une caractérisation correcte de la densité de surface et du rayon effectif pour les bandes de latitudes S25, S5, N5 et N25. C'est pour cela que ne sont représentées respectivement sur les figures 5.4.8.a-b et 5.4.9.a-b les évolutions de la densité de surface et du rayon effectif que pour les deux bandes de latitudes S45 et N45.

Dans notre étude, pour la bande de latitudes N45 (voir le zoom de la figure 5.4.8.b), la valeur de la densité de surface est supérieure à $3.5 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ début juillet 1991 alors qu'elle est inférieure à l'unité depuis le printemps 1988. Fin juillet 1991, la majorité de l'hémisphère nord est couverte d'aérosols volcaniques pour une gamme d'altitudes comprises entre 14 et 17 km [Trepte et al., (1993)]. Or l'éruption du Mont Pinatubo (15.14°N, 120.35°E) a eu lieu en juin, pendant la mousson asiatique qui est caractérisée par un fort système de circulation anticyclonique troposphérique, centré au début de l'été boréal sur les hauts plateaux du Tibet [Triplet et Roche, (1986)]. Il y a donc coïncidence entre les deux événements et le transport au-dessous de 20 km des particules volcaniques vers les moyennes et hautes latitudes a pu être assuré par cet échange. Après quelques semaines, les aérosols volcaniques se sont dispersés vers le nord depuis le réservoir équatorial [Hamill et al., (1997)], au dessous de 20 km.

La figure 5.4.8.a indique que dans l'hémisphère sud, pour la bande de latitudes S45, aucun aérosol issu du Pinatubo n'est observé au-dessous de 20.5 km dans les premières semaines suivant l'éruption quelle que soit la méthode d'inversion. En effet mi-juillet 1991, la valeur de la densité de surface est de $0.9 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ (voir zoom sur la figure 5.4.8.a) et confirme l'absence d'aérosols du volcan philippin. Or des systèmes anticycloniques semblables à ceux observés dans l'hémisphère nord existent bien durant l'été austral dans la haute troposphère sur le nord-ouest de l'Australie, l'Amérique du sud et le sud de l'Afrique. Cependant le Mont Pinatubo est entré en éruption durant l'hiver austral. Dans la basse

stratosphère, dans les premières semaines qui suivirent l'éruption, les sources de transport vers les moyennes et hautes latitudes sont donc inefficaces [Mc Cormick et Veiga, (1992)].

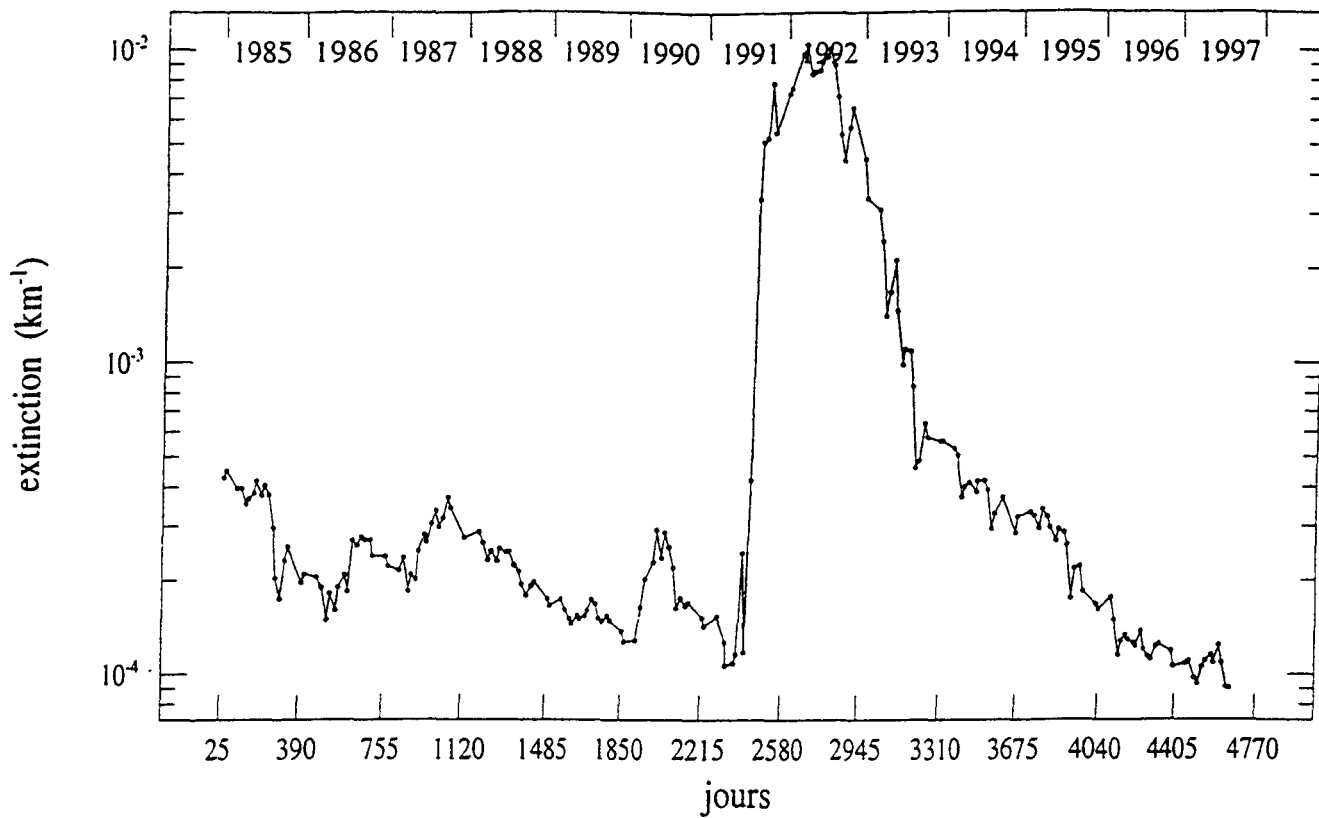
Par ailleurs, on constate qu'en dehors des périodes d'activité volcanique intense, par exemple de 1987 à 1991, pour les bandes de latitudes S45 et N45, les aérosols grossissent en hiver et au début de printemps (figures 5.4.9.a-b) comme l'ont également souligné Thomason et al., (1997). On voit que parallèlement la densité de surface présente des oscillations saisonnières, avec un maximum en hiver et un minimum en été (figures 5.4.8.a-b). Ces oscillations saisonnières ont la même allure que celles du coefficient d'extinction à 1.020 μm représentées sur les figures 5.4.10.a-b pour respectivement les bandes de latitudes S45 et N45 à l'altitude 15.5 km. Ainsi, on peut déduire de ces observations que les particules grossissent en hiver et au début du printemps, essentiellement dans la basse stratosphère.

5.4.1.3. Evolution au-dessus de 20.5 km.

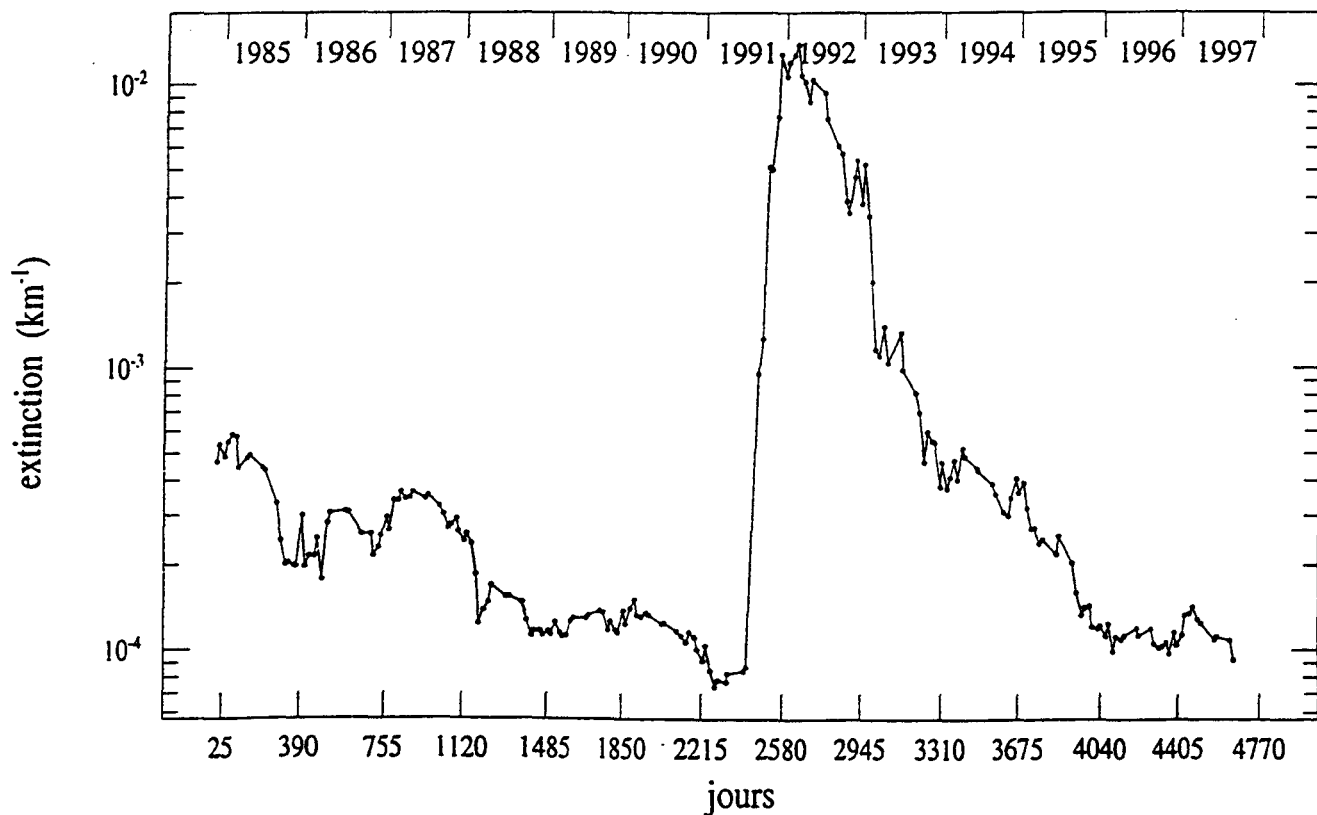
Les figures 5.4.11.a-f et 5.4.12.a-f présentent respectivement les évolutions temporelles de la densité de surface et du rayon effectif entre 1984 et 1997 pour les bandes de latitudes S45, S25, S5, N5, N25 et N45 à l'altitude 25.5 km.

D'après le zoom sur la figure 5.4.11.f, on remarque que les traces de l'éruption du Pinatubo ne sont visibles qu'à partir d'octobre 1991 avec une densité de surface légèrement supérieure à $2 \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$. Entre les mois de juin et d'octobre, les vents sont d'est au-dessus de 20 km dans l'hémisphère nord. Or les ondes planétaires de Rossby ne peuvent pas se propager pendant ces périodes de vent d'est d'été [Triplet et Roche, (1986)]. Ce blocage des particules volcaniques à 30°N , au-dessus de 20 km ne cesse que lorsque le régime des vents

Bande 05: S45

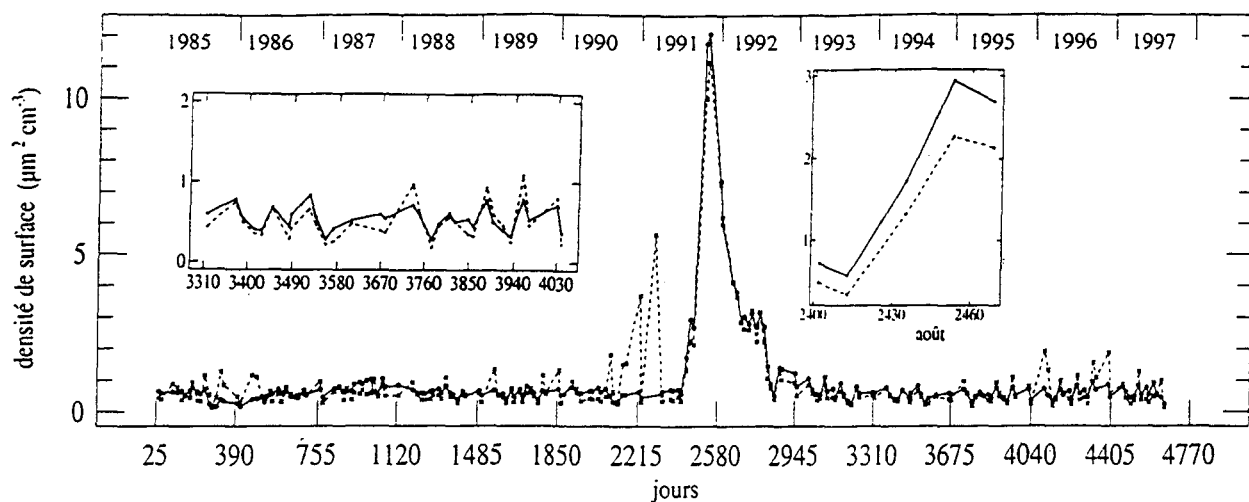


Bande 14: N45

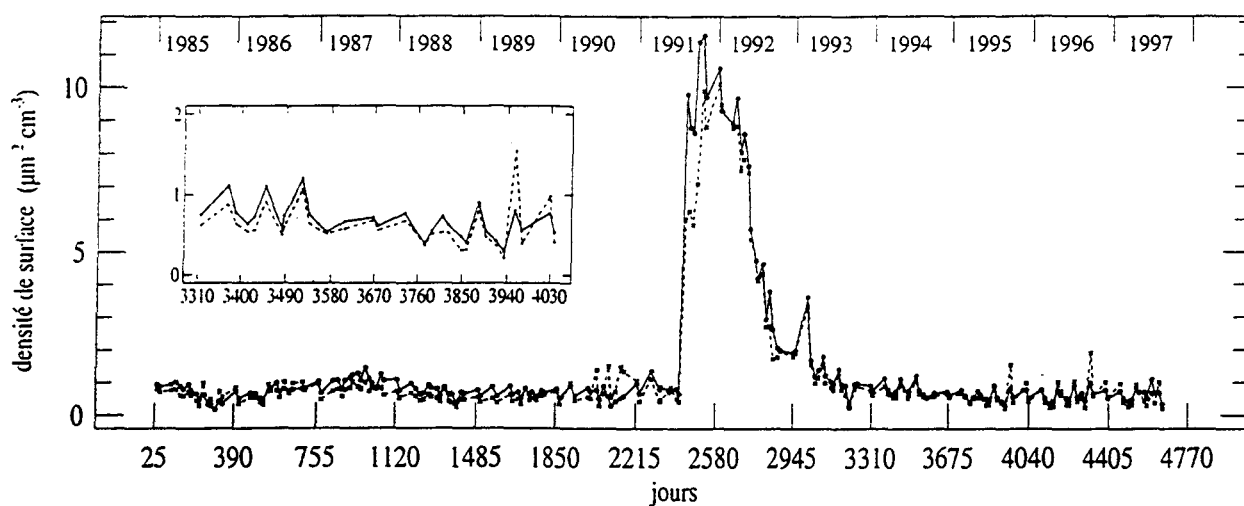


figures 5.4.10.a-b. Evolution du coefficient d'extinction à 1.020 μm de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45 (a) et N45 (b) à l'altitude 15.5 km.

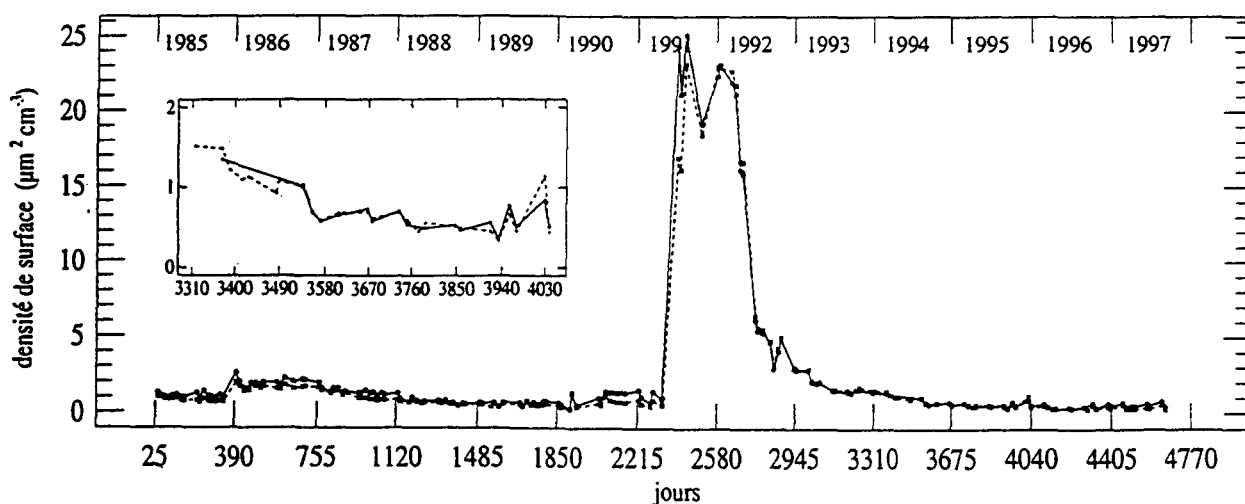
Bande 05: S45



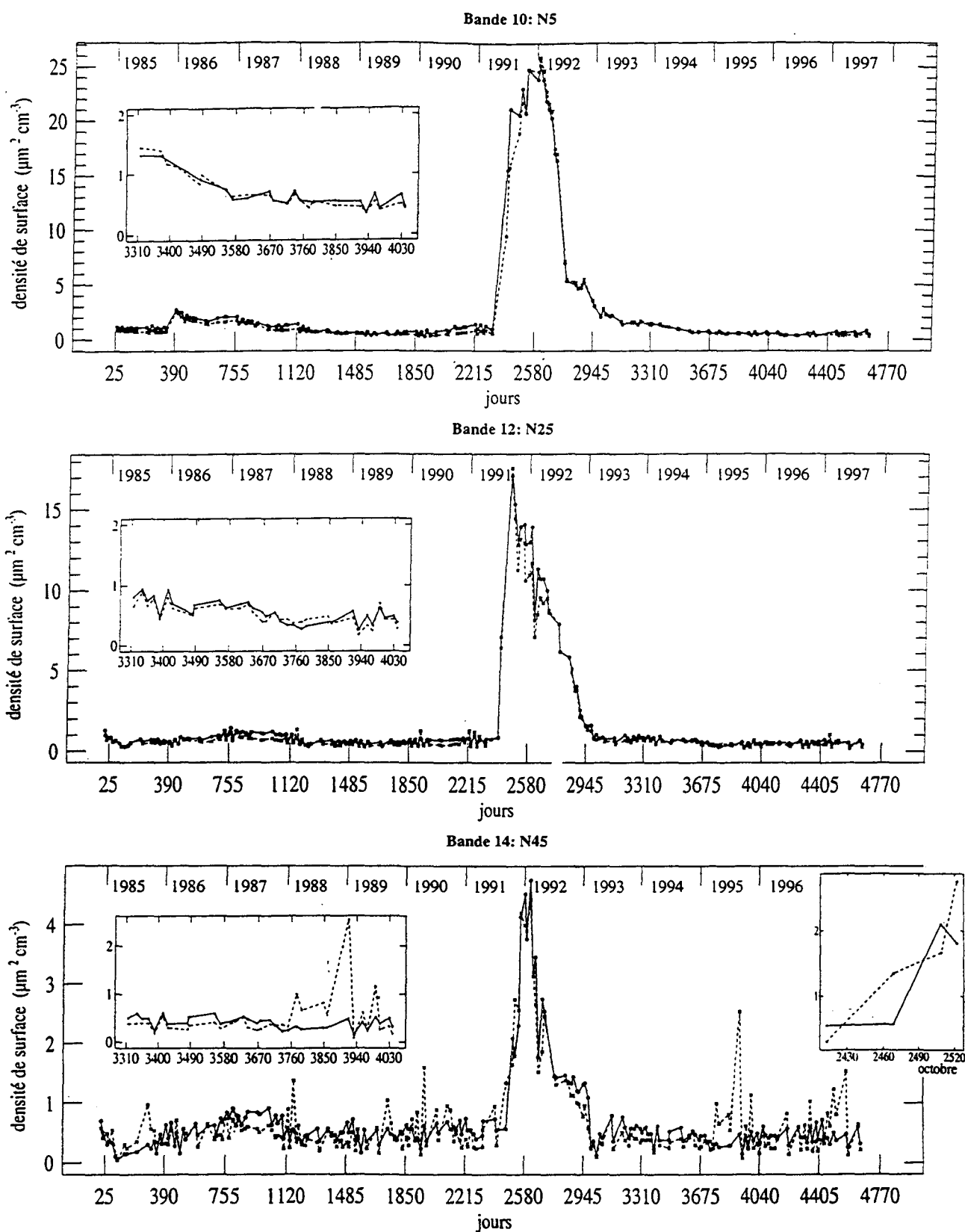
Bande 07: S25



Bande 09: S5

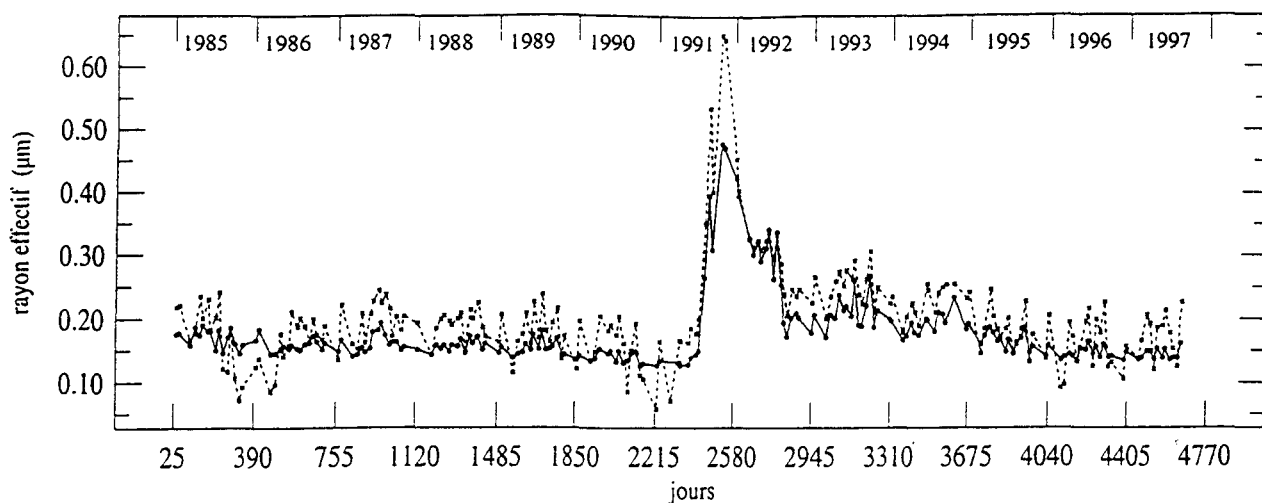


figures 5.4.11.a-c. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LSFM (--x--) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S45 (a), S25 (b) et S5 (c) à l'altitude 25.5 km.

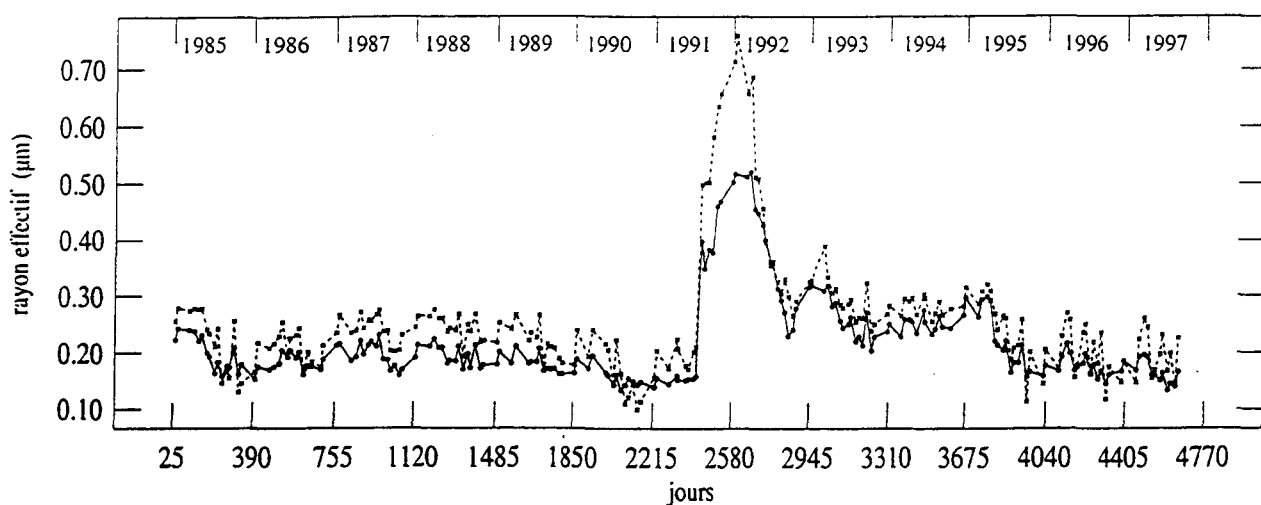


figures 5.4.11.d-f. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LSFM (--x--) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes N5 (d), N25 (e) et N45 (f) à l'altitude 25.5 km.

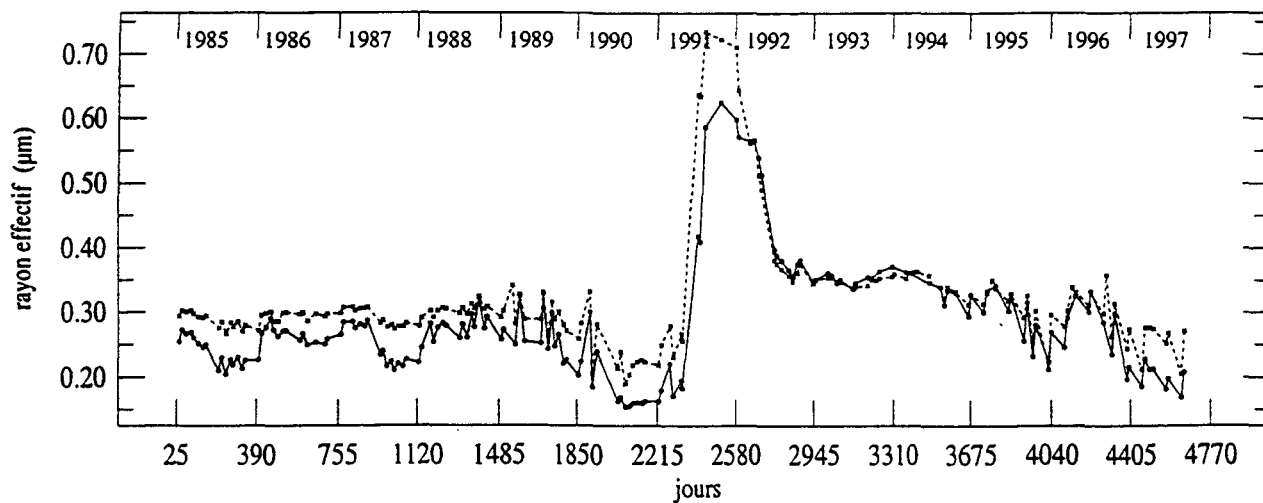
Bande 05: S45



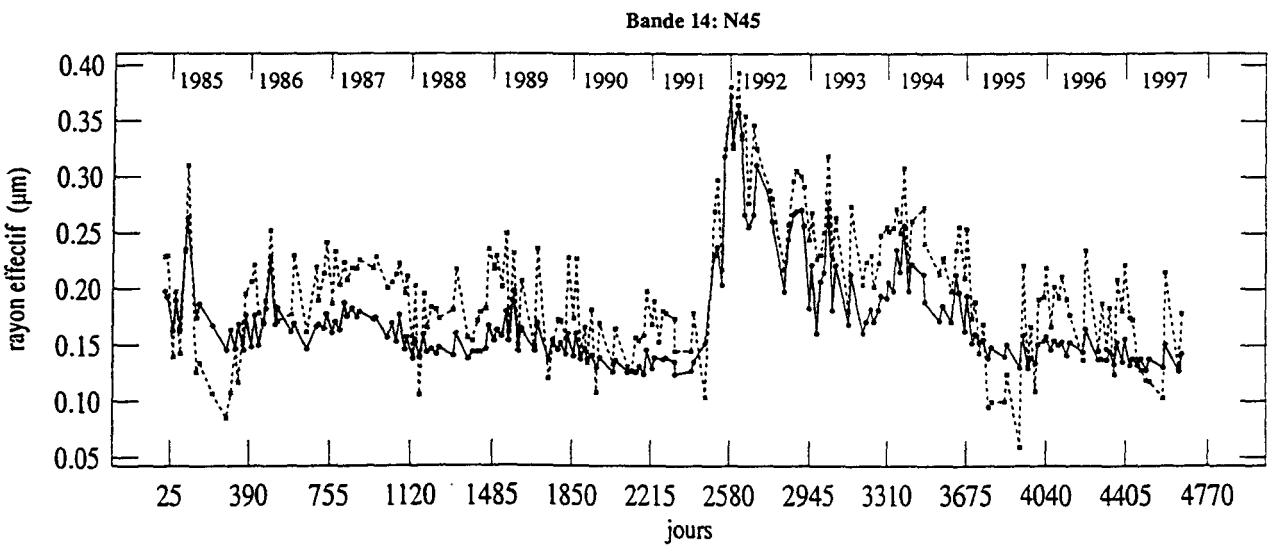
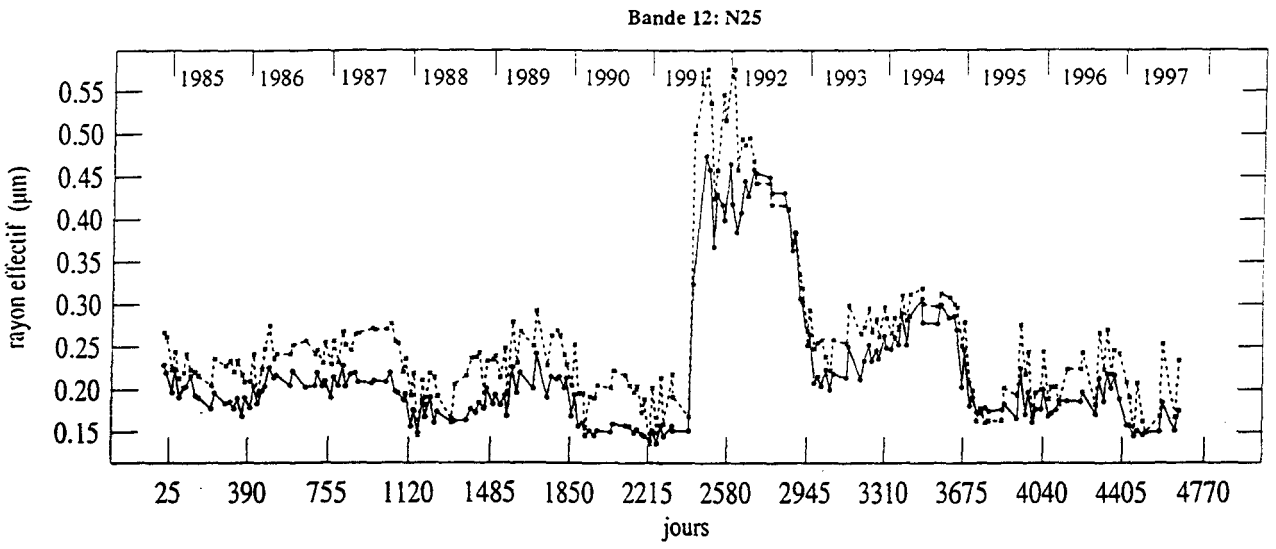
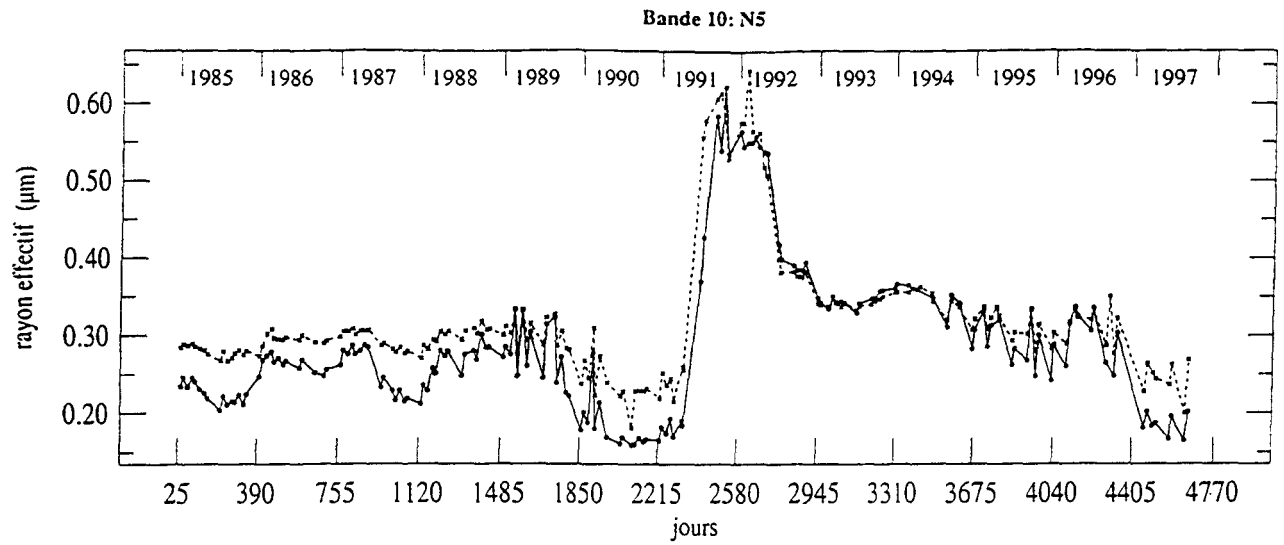
Bande 07: S25



Bande 09: S5



figures 5.4.12.a-c. Idem que pour les figures 5.4.11.a-c mais pour le rayon effectif.



figures 5.4.12.d-f. Idem que pour les figures 5.4.11.d-f mais pour le rayon effectif.

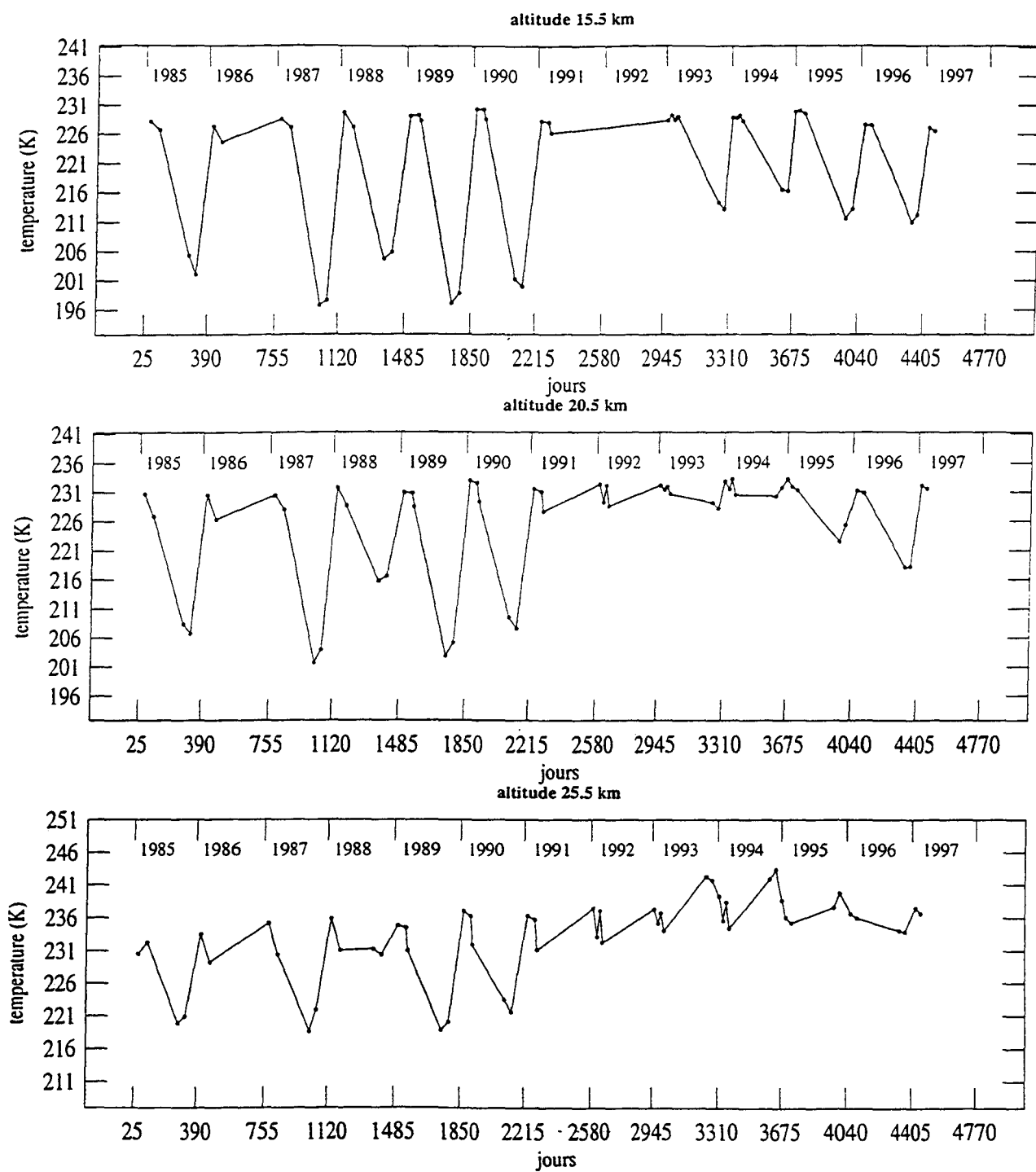
change, durant l'automne [Trepte et al., (1993)] d'où ces premières traces des aérosols du Mont Pinatubo en octobre.

Le zoom sur la figure 5.4.11.a permet de voir que l'hémisphère sud se charge plus rapidement en aérosols que l'hémisphère nord. En effet dès début août, on remarque que la valeur de la surface est supérieure à $2 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$. Le transport d'aérosols vers 25 km en direction du pôle sud paraît en fait associé à l'activité d'ondes planétaires transitoires interagissant avec les vents d'est tropicaux de la QBO [Trepte et al., (1993)].

L'ensemble des figures 5.4.11.a-f (voir également les agrandissements correspondant aux années 1994 et 1995) ne mettent plus en évidence d'oscillations saisonnières liées à l'altitude de la tropopause bien inférieure à 25.5 km. Quant aux figures 5.4.12.a-f, elles permettent de voir la décroissance du rayon effectif avec l'altitude (voir figures 5.4.6.a-f et 5.4.9.a-b) en corrélation, dans la majorité des cas, avec une diminution du coefficient d'extinction. Elles rendent compte également que seules les deux éruptions majeures des volcans El Chichon et du Pinatubo eurent de l'effet à 25.5 km. Par ailleurs on constate des valeurs incohérentes à cette altitude-là déterminées par la LSM pour la densité de surface avant l'éruption du Pinatubo (fin 1990 et début 1991) dans l'hémisphère sud (figure 5.4.11.a) et en 1995 et 1997 dans l'hémisphère nord (figure 5.4.11.f).

5.4.2. Les régions polaires.

La distinction entre aérosols de fond et nuages stratosphériques polaires (PSC) peut se faire sur l'étude du coefficient d'extinction. Selon Poole et McCormick, (1988) les PSC se forment à des températures approximativement inférieures à 195 K. Les figures 5.4.13.a-c indiquent la température moyenne de la bande de latitudes S75 respectivement aux altitudes



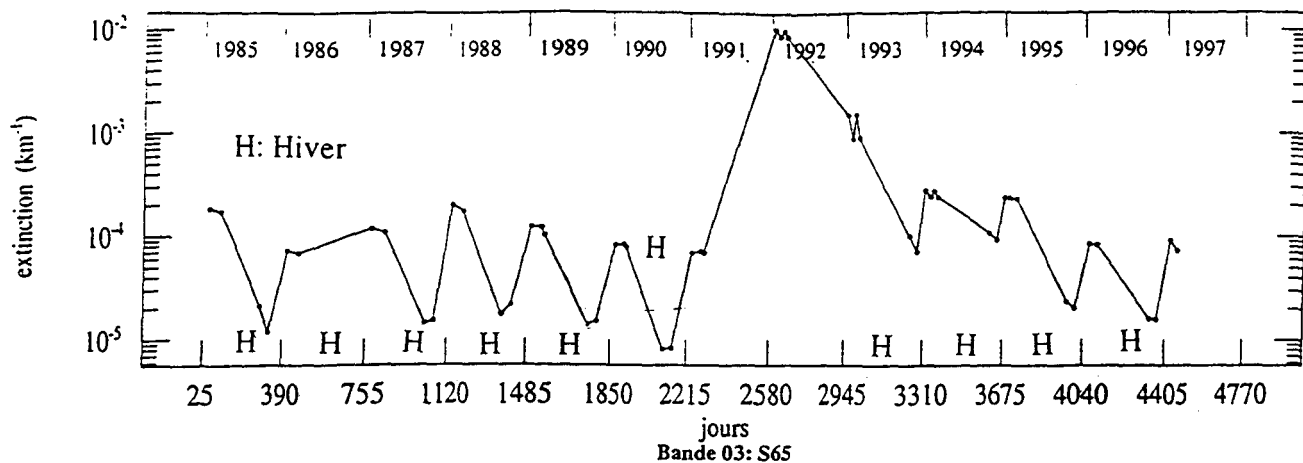
figures 5.4.13.a-c. Evolution de la température entre 1984 et 1997 pour la bande de latitudes S75 aux altitudes 15.5 km (a), 20.5 km (b) et 25.5 km (c) .

15.5, 20.5 et 25.5 km. La température la plus faible relevée est supérieure à 197.5 K. En Arctique, la température en hiver est en moyenne de 5 à 15 K plus élevée qu'en Antarctique. Ainsi il n'est pas possible de caractériser les PSC à l'approche des deux pôles, à partir de moyennes zonales pour l'expérience satellitaire SAGE II.

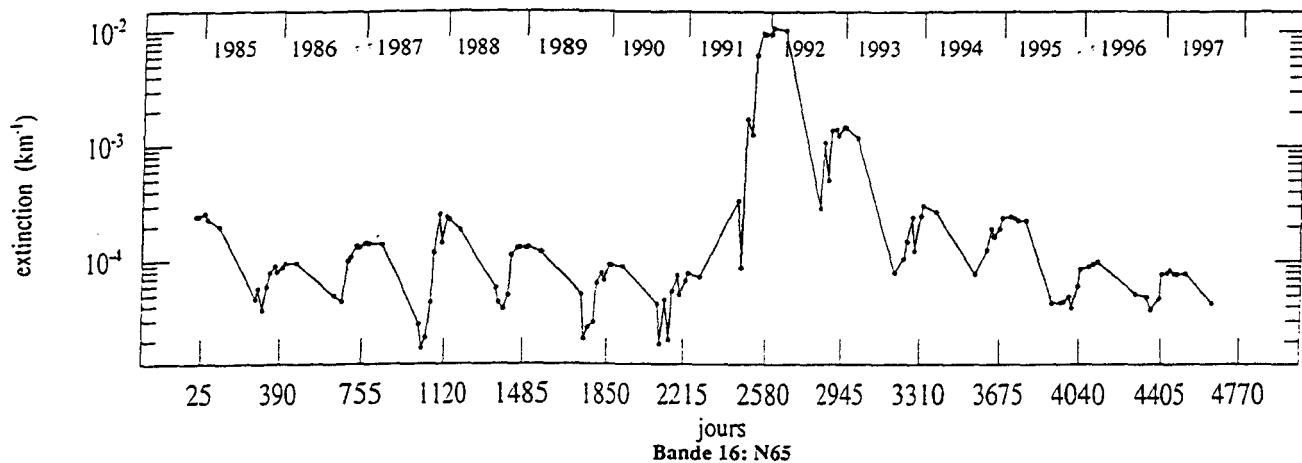
5.4.2.1. Evolution à 20.5 km.

Les figures 5.4.14.a-d présentent l'évolution du coefficient d'extinction à 1.020 μm de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S75, S65, N65 et N75 à l'altitude 20.5 km. Des oscillations saisonnières se produisent pour ces quatre bandes de latitudes et sont plus apparentes dans l'hémisphère sud que dans l'hémisphère nord. On voit que ces coefficients d'extinction sont maximum en fin de printemps et en début de l'été contrairement à ce qu'on avait dans les régions non polaires (voir section 5.4.1.1). Ils décroissent durant l'été et deviennent minimum à la fin de l'hiver. Au niveau des pôles, SAGE II effectue des mesures à l'intérieur ou à l'extérieur du vortex polaire. Dans l'hémisphère sud, pendant l'hiver, Thomason et Poole, (1993) ont constaté de 1985 à 1992 une diminution de la concentration en aérosols en concordance avec la présence du vortex polaire. En fait, durant l'hiver où l'on a peu de données d'extinction, le vortex polaire est isolé et on note la présence de PSC. A la fin de l'hiver et au début de printemps, ces PSC commencent à disparaître par sédimentation et le coefficient d'extinction est donc très faible. La disparition progressive du vortex en milieu du printemps provoque le mélange de l'air qui était à l'intérieur du vortex avec celui de l'extérieur beaucoup plus riche en aérosols, d'où une augmentation du coefficient d'extinction. Dans l'hémisphère nord, une trace similaire du vortex polaire apparaît également mais est moins évidente en raison d'une taille plus petite et d'une durée de vie plus courte du vortex arctique [Thomason et al., (1997)]. Ces variations saisonnières sont répétitives et en moyenne, ces coefficients diminuent d'une année à une autre en absence d'activités

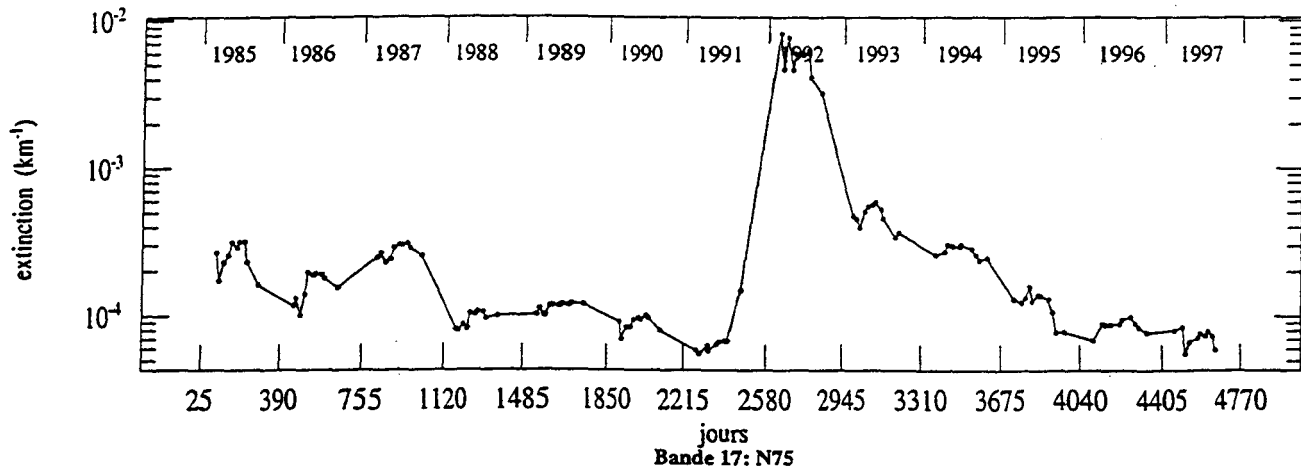
Bande 02: S75



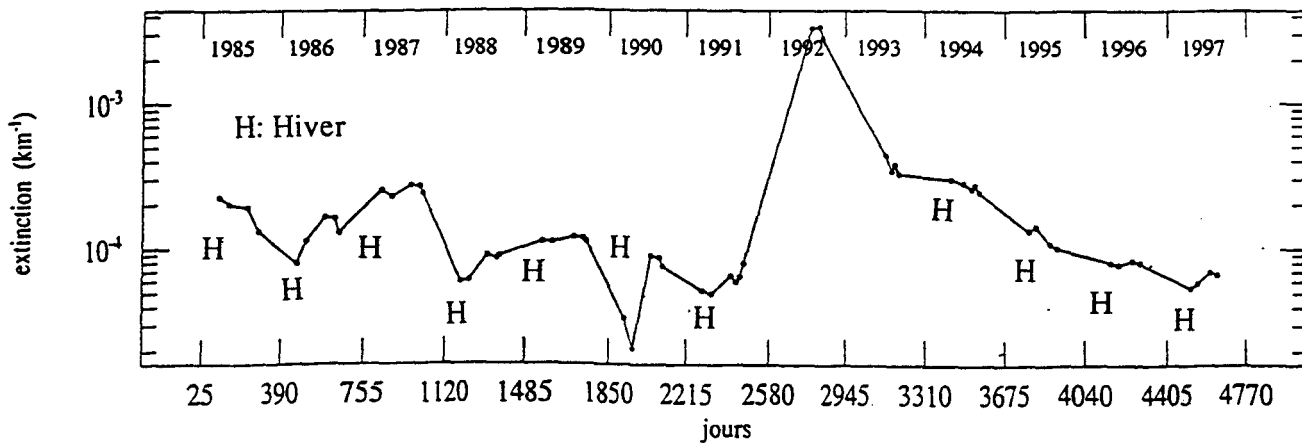
Bande 03: S65



Bande 16: N65



Bande 17: N75

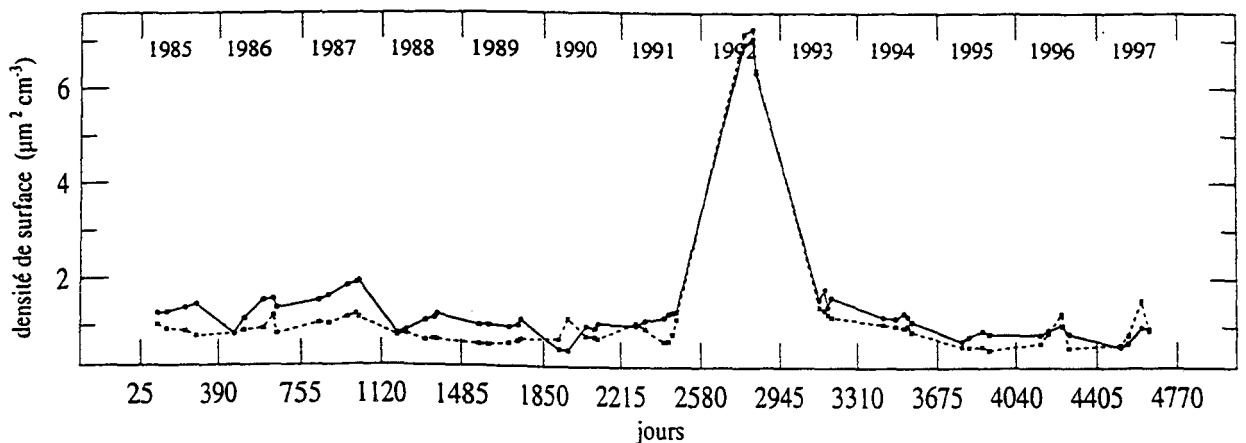
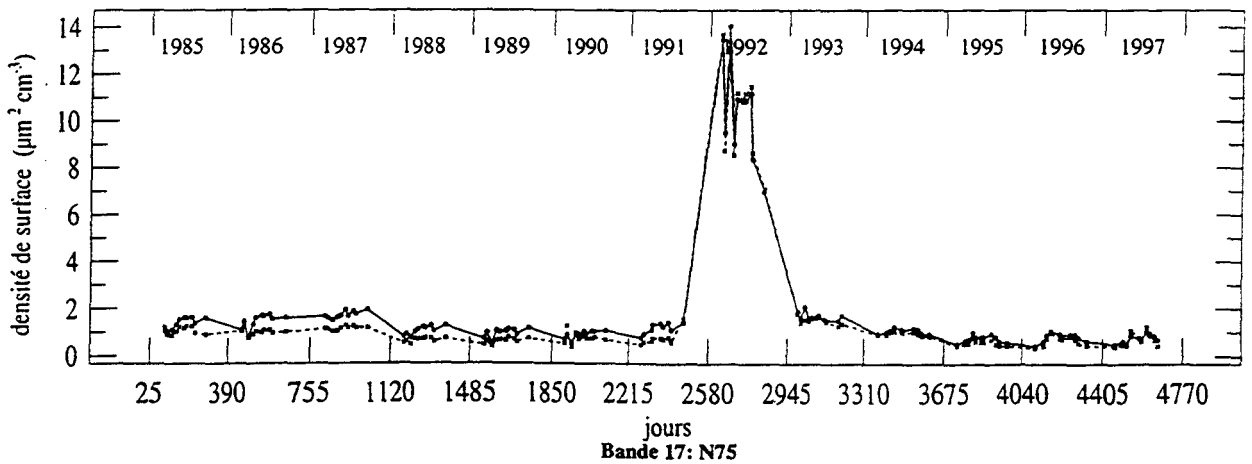
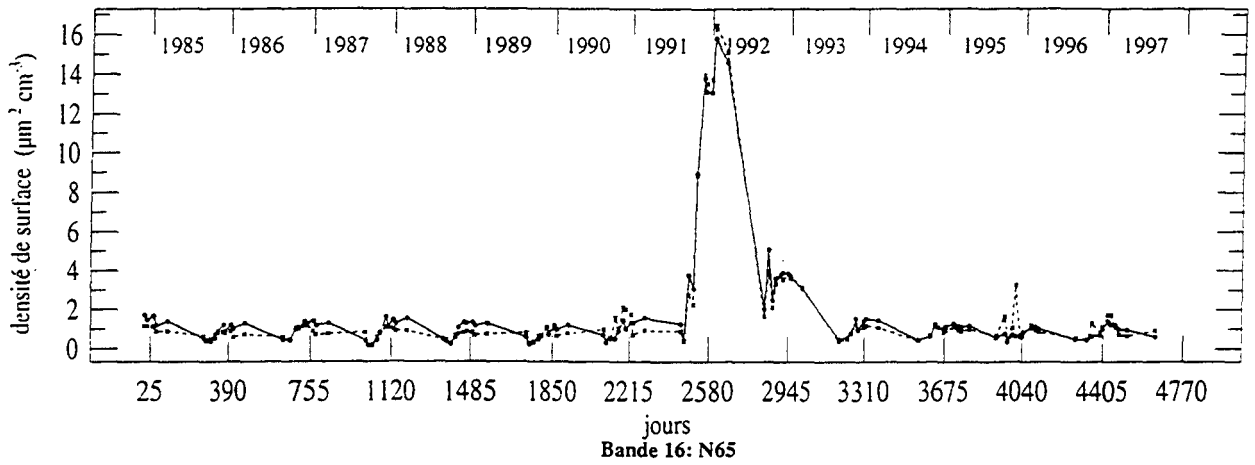
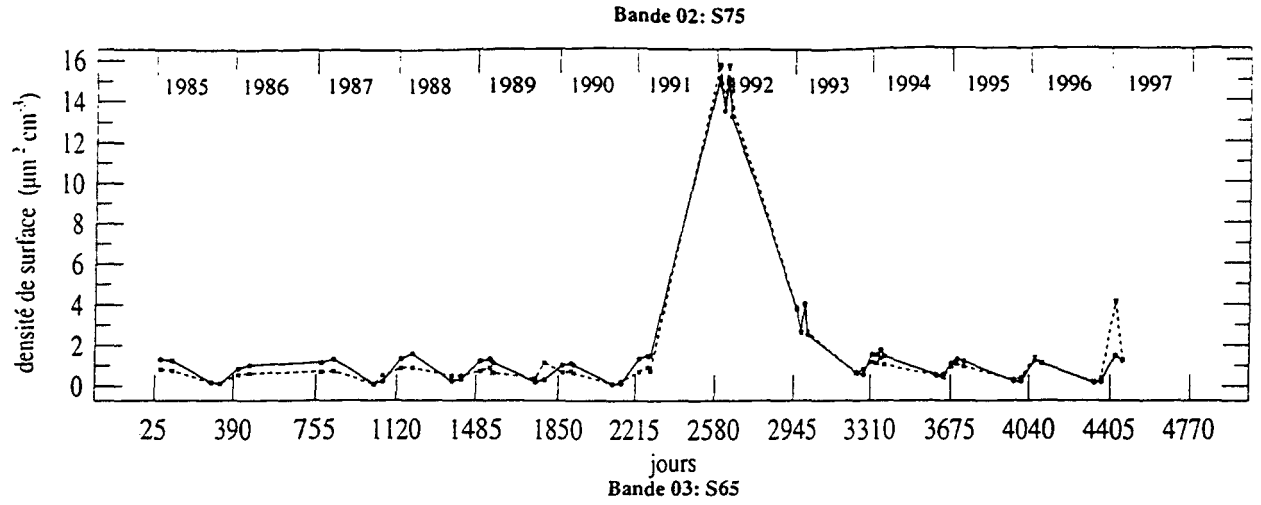


figures 5.4.14.a-d. Evolution du coefficient d'extinction à 1.020 μm de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S75 (a), S65 (b), N65 (c) et N75 (d) à l'altitude 20.5 km.

volcaniques intenses. Comme nous l'avons également vu au paragraphe 5.4.1.1, ces diminutions sont dues à la sédimentation des aérosols volcaniques issus de l'éruption de El Chichon et du Pinatubo [Thomason et al., (1997)]. Les figures 5.4.15.a-d et 5.4.16.a-d représentent l'évolution de la densité de surface des aérosols et du rayon effectif entre 1984 et 1997 dans les mêmes conditions que les figures 5.4.16.a-d. En Arctique la plupart des éruptions volcaniques n'eurent pas d'effet hormis les éruptions du Mont S¹ Helens (46.2°N; 122.2°W) en 1980, du El Chichon (17.3°N; 93.2°W) en 1982 et du Mont Pinatubo (15,14°N; 120,35°E) en 1991. En Antarctique les éruptions successives du Mont Pinatubo aux Philippines et du Mont Cerro Hudson (49.9°S, 73.0°W) au Chili ont produit un important impact dans la stratosphère. Les variations saisonnières de la surface ont mêmes allures que celles des coefficients d'extinction avec en général un maximum en début de l'été et un minimum fin hiver. Par contre ces variations saisonnières sont opposées à celles du rayon effectif (voir figure 5.4.16.a-d). En été, par exemple, les particules d'aérosols sont plus petites (rayon effectif faible) mais plus nombreuses (surface élevée) qu'en hiver. Les résultats obtenus sont cohérents avec les études climatologiques de la densité de surface des aérosols estimée toujours à partir des données SAGE II par Thomason et al., (1997). et également à partir des données POAM II [Ramanaherisoa, (1998)], étude effectuée entre 1994 et 1996.

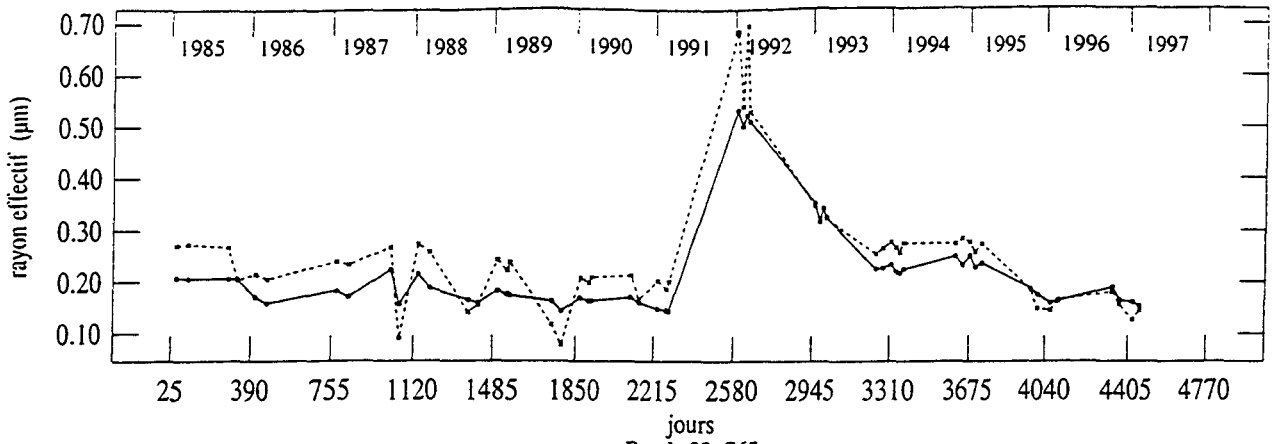
5.4.2.2. Evolution au-dessous de 20.5 km.

Dans cette section on va voir s'il est possible de dissocier les éruptions successives des Mont Pinatubo et Cerro Hudson. Les figures 5.4.17.a-d et 5.4.18.a-d représentent respectivement l'évolution de la densité de surface des aérosols et du rayon effectif entre

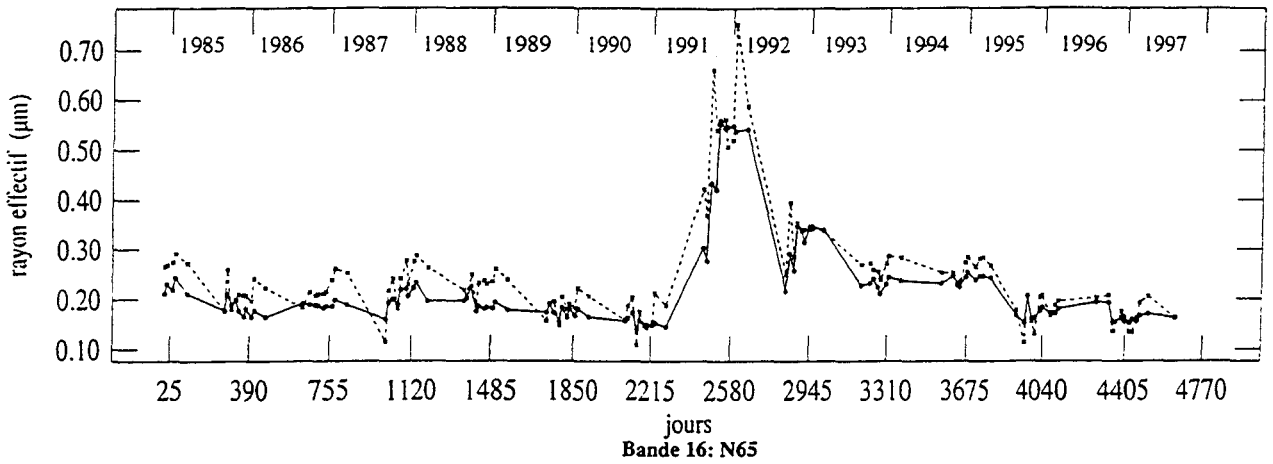


figures 5.4.15.a-d. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LSFM (---x---) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S75 (a), S65 (b), N65 (c) et N75 (d) à l'altitude 20.5 km.

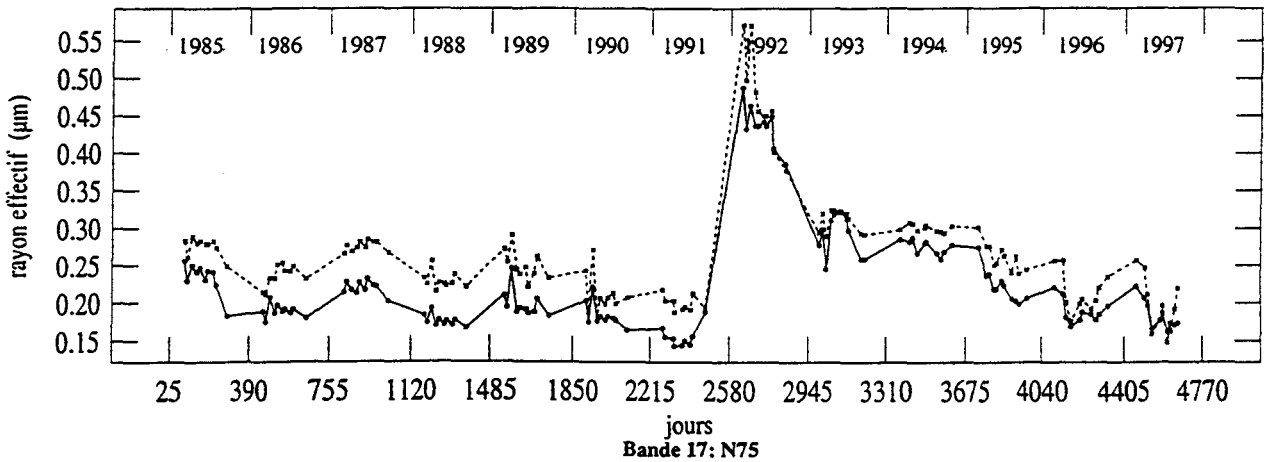
Bande 02: S75



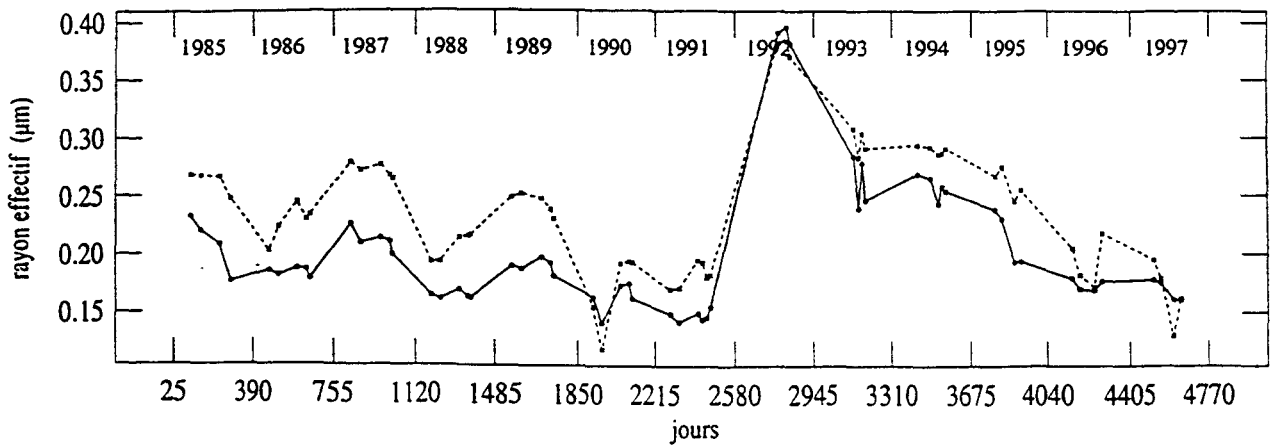
Bande 03: S65



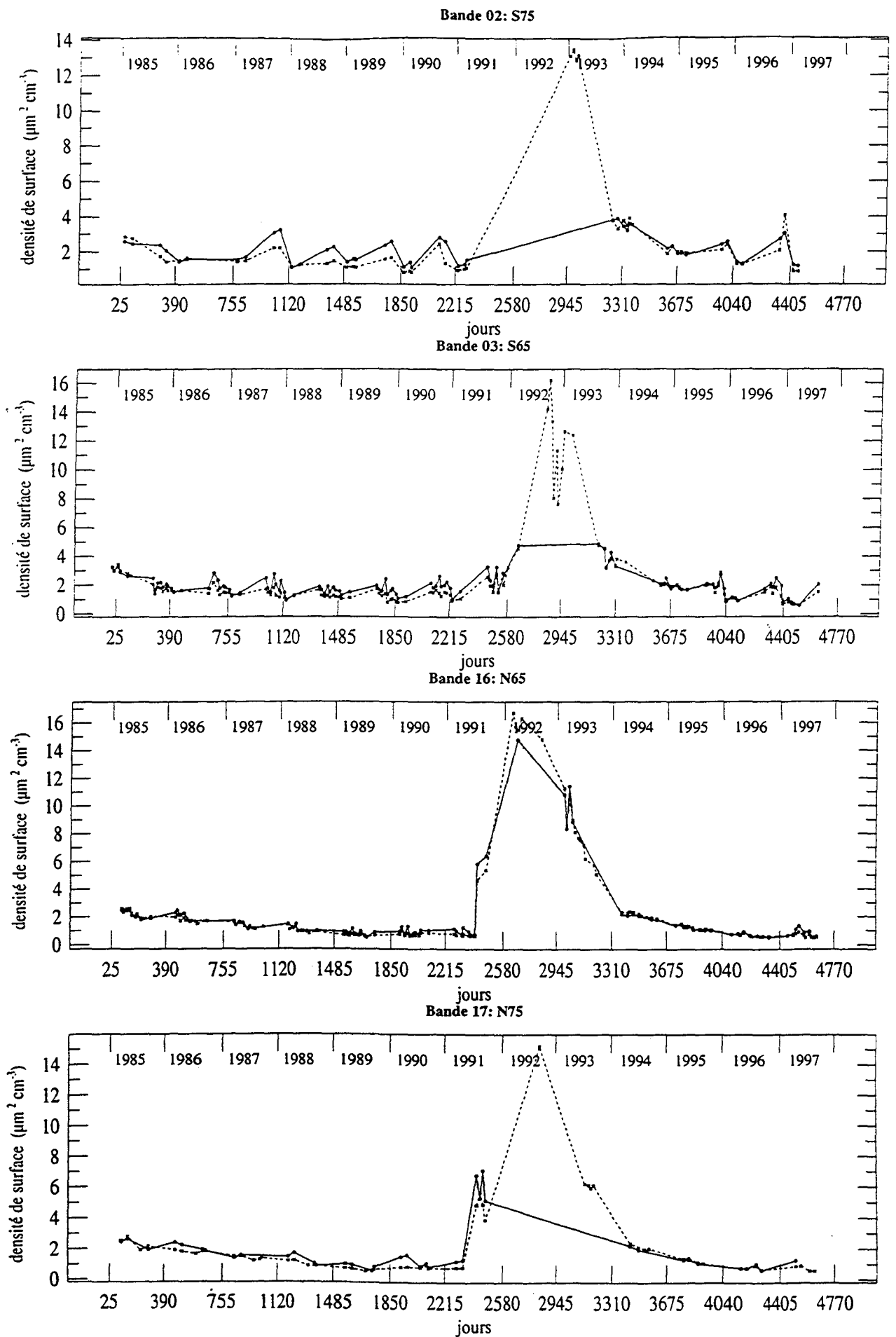
Bande 16: N65



Bande 17: N75

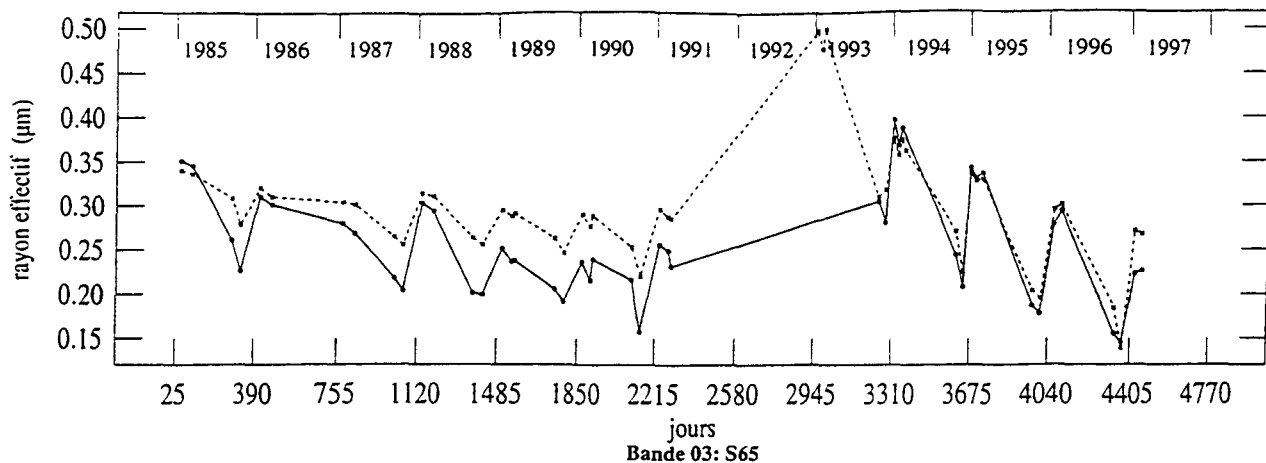


figures 5.4.16.a-d. Idem que pour les figures 5.4.15.a-d mais pour le rayon effectif.

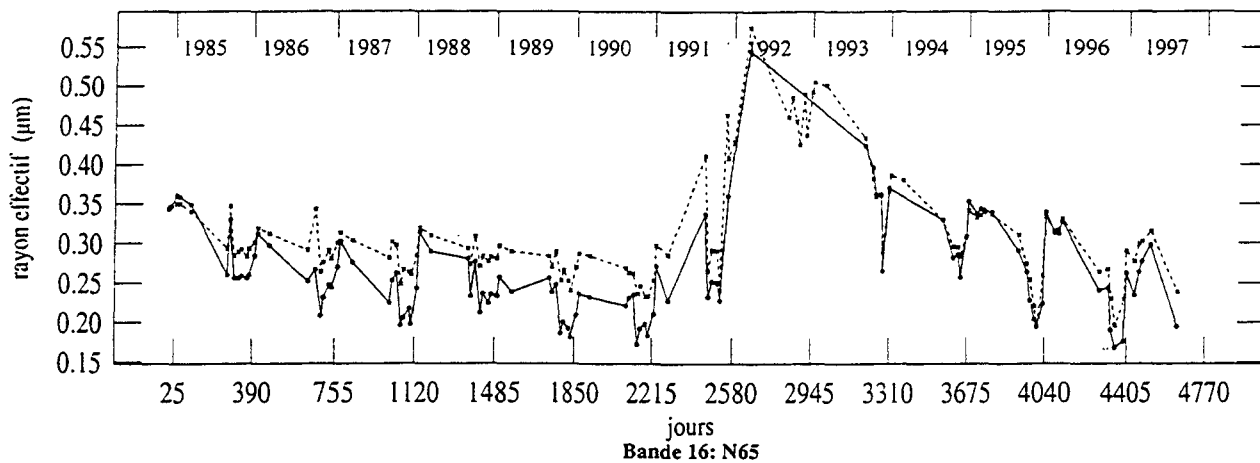


figures 5.4.17.a-d. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LSFM (---x---) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S75 (a), S65 (b), N65 (c) et N75 (d) à l'altitude 15.5 km.

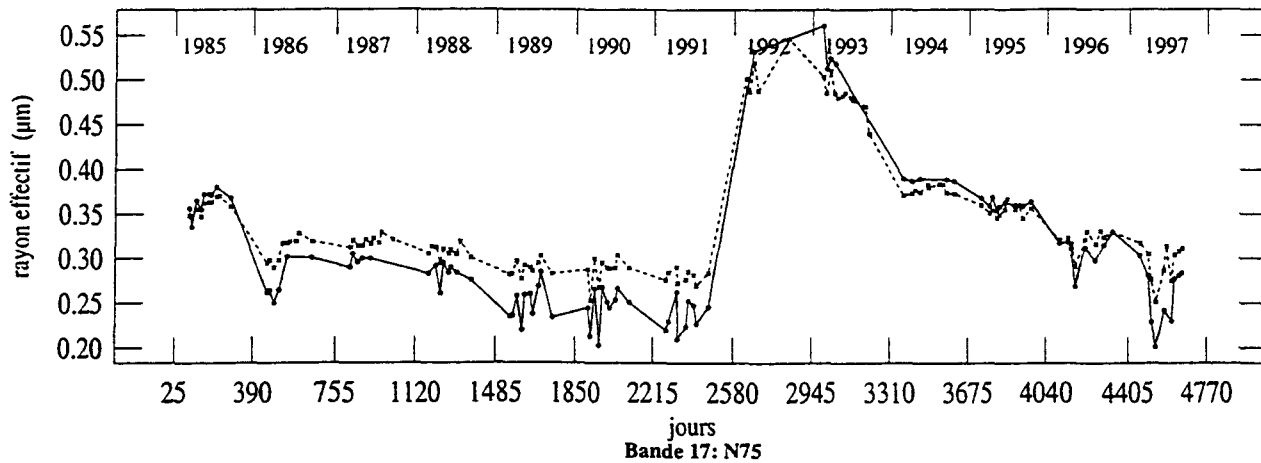
Bande 02: S75



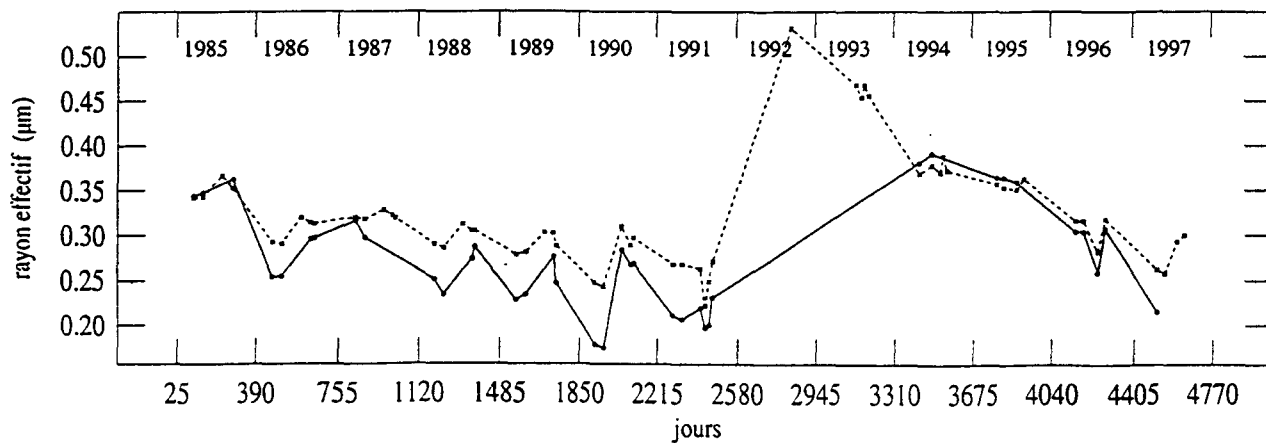
Bande 03: S65



Bande 16: N65



Bande 17: N75

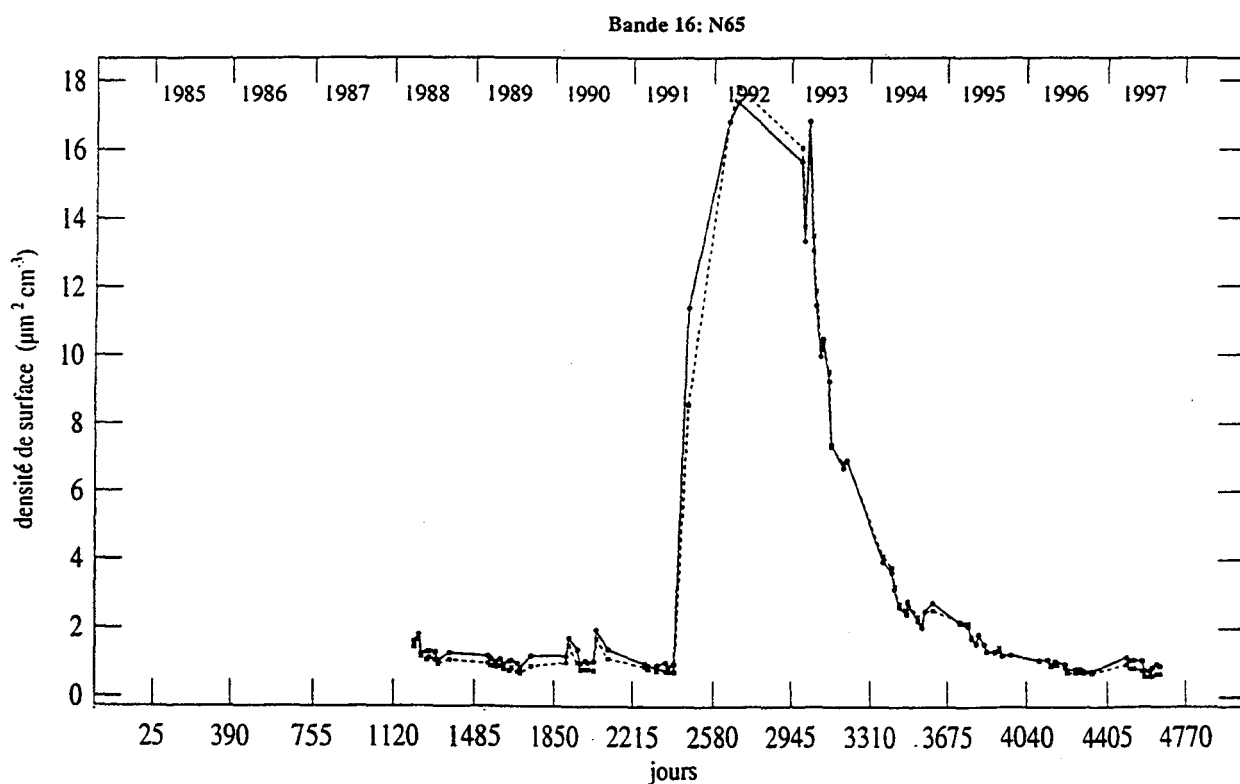
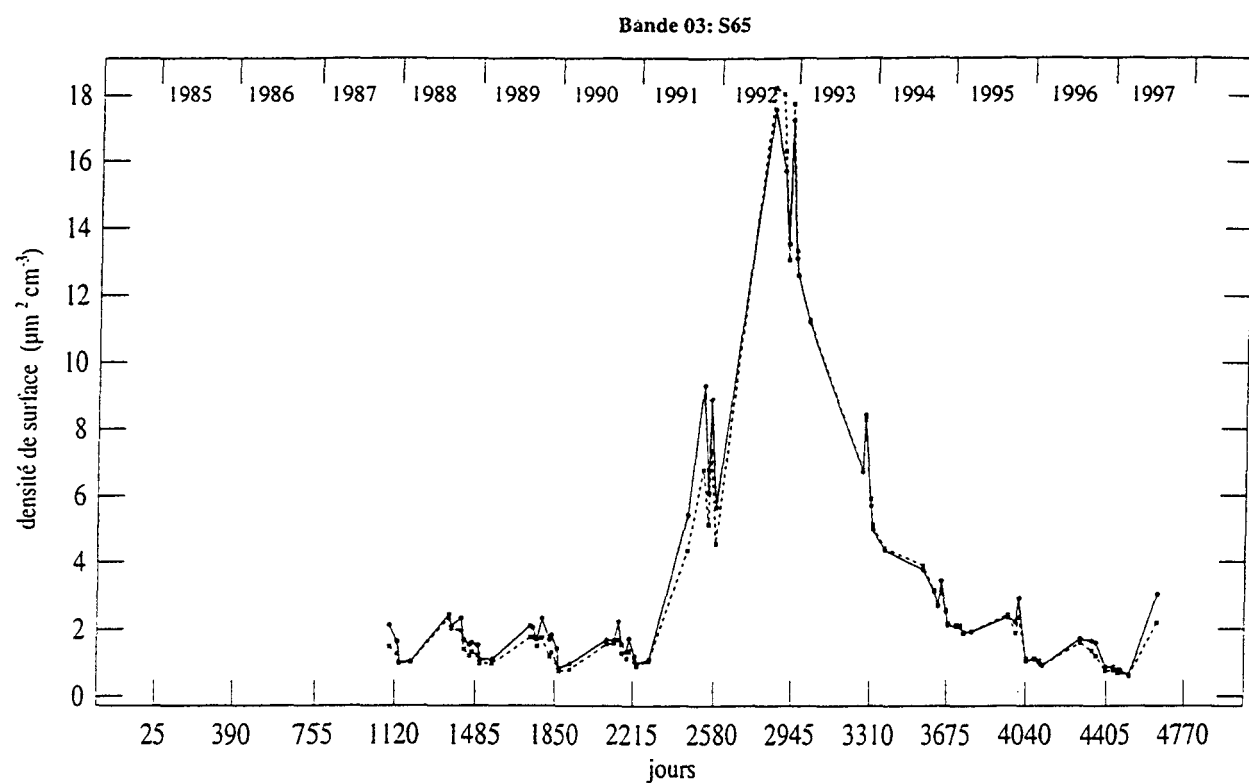


figures 5.4.18.a-d. Idem que pour les figures 5.4.17.a-d mais pour le rayon effectif.

1984 et 1997 pour les bandes de latitudes S75, S65, N65 et N75 à l'altitude 15.5 km. Nous remarquons à nouveau les oscillations saisonnières évoquées précédemment plus marquées dans l'hémisphère sud que dans l'hémisphère nord. A l'altitude 15.5 km, il n'est pas possible de discerner avec précision l'éruption du Mont Pinatubo de celle du Mont Cerro Hudson. Les figures 5.4.19.a-b représentent l'évolution de la densité de surface des aérosols entre 1984 et 1997 pour les bandes de latitudes S65 et N65 mais cette fois-ci à une altitude de 13.5 km. Premièrement on note que les densités de surface ne sont pas déterminées entre la fin de l'année 1984 et le début de l'année 1988. En fait les données d'extinction à 0.385 μm ne sont pas disponibles durant cette période à cette altitude-là. On remarque aussi, dans l'hémisphère sud seulement, deux pics correspondant aux éruptions successives des Mont Pinatubo et Cerro Hudson. Par ailleurs les figures 5.4.20.a-c présentent respectivement l'évolution du coefficient d'extinction à 1.020 μm , pour la bande de latitudes S65, en fonction de l'altitude pour les périodes centrées sur les 8, 26 août et 3 novembre 1991. D'après les figures 5.4.20.a-b, on remarque que le nuage volcanique issu du Mont Cerro Hudson a pénétré dans la stratosphère, essentiellement en dessous de 14 km. D'après la figure 5.4.20.c, on distingue deux couches d'aérosols nettement distinctes, l'une au-dessus de 20 km, l'autre au-dessous de 15 km correspondant respectivement aux aérosols issus des Monts Pinatubo et Cerro Hudson. En octobre, en dessous de 15 km, une couche dense d'aérosols issue de Hudson s'est étendue à toutes les latitudes polaires de l'hémisphère sud. A cette altitude-là et à cette période-là les aérosols du Pinatubo ne sont pas encore présents comme l'ont également constaté Pitts et Thomason, (1993).

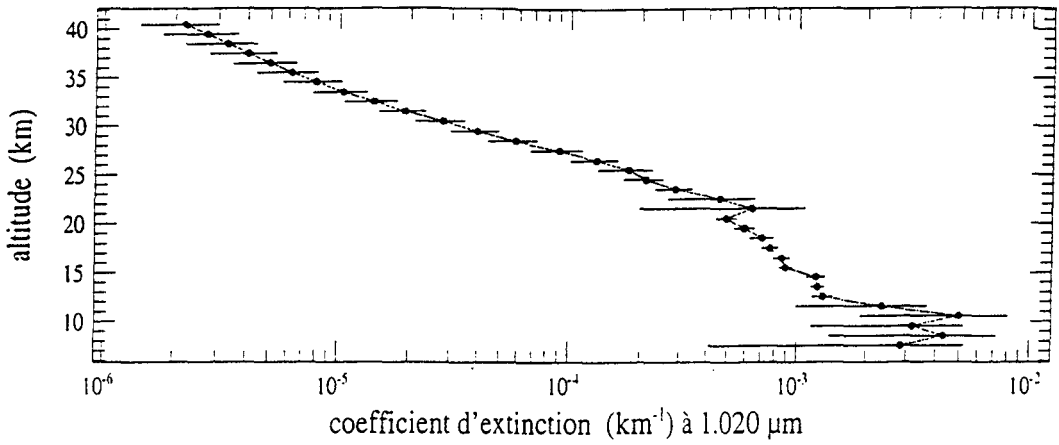
5.4.2.3. Evolution au-dessus de 20.5 km.

Les figures 5.4.21.a-d et 5.4.22.a-d représentent respectivement l'évolution de la

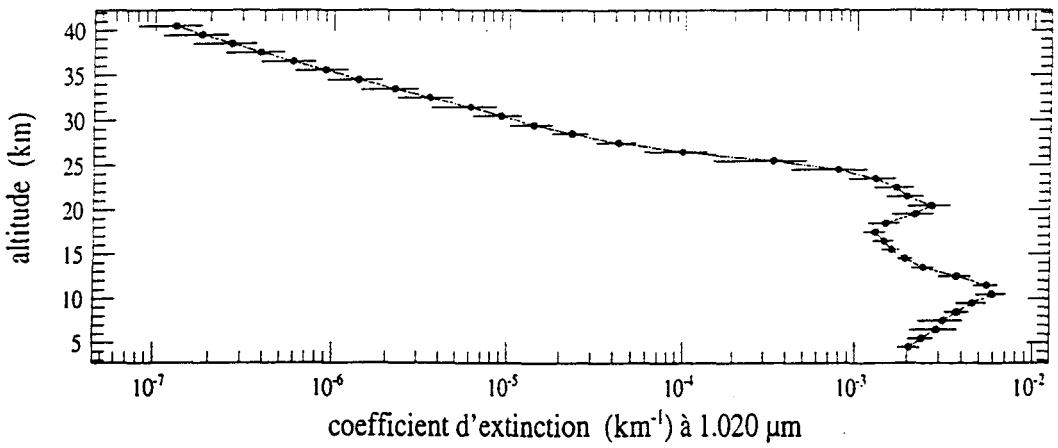


figures 5.4.19.a-b. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—→) et la LFSM (---×---) entre 1984 et 1997 pour les bandes de latitudes S65 (a) et N65 (b) à l'altitude 13.5 km.

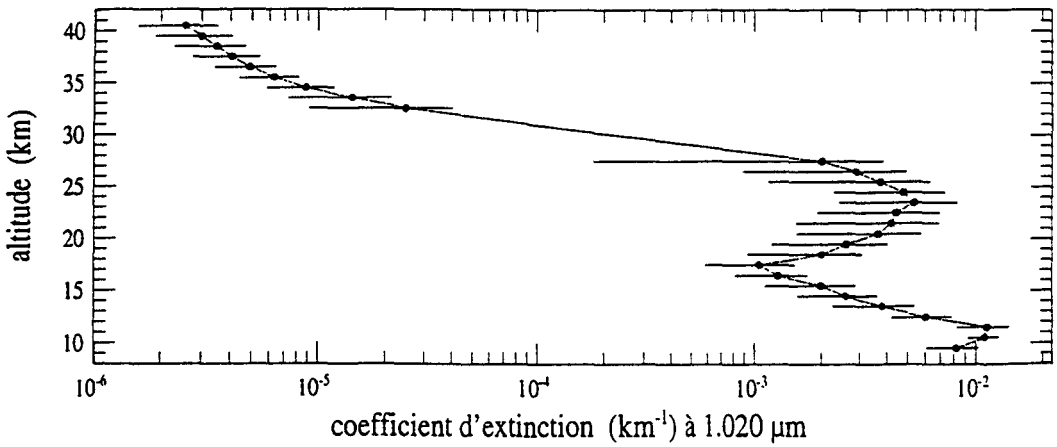
8 août 1991



26 août 1991



3 novembre 1991

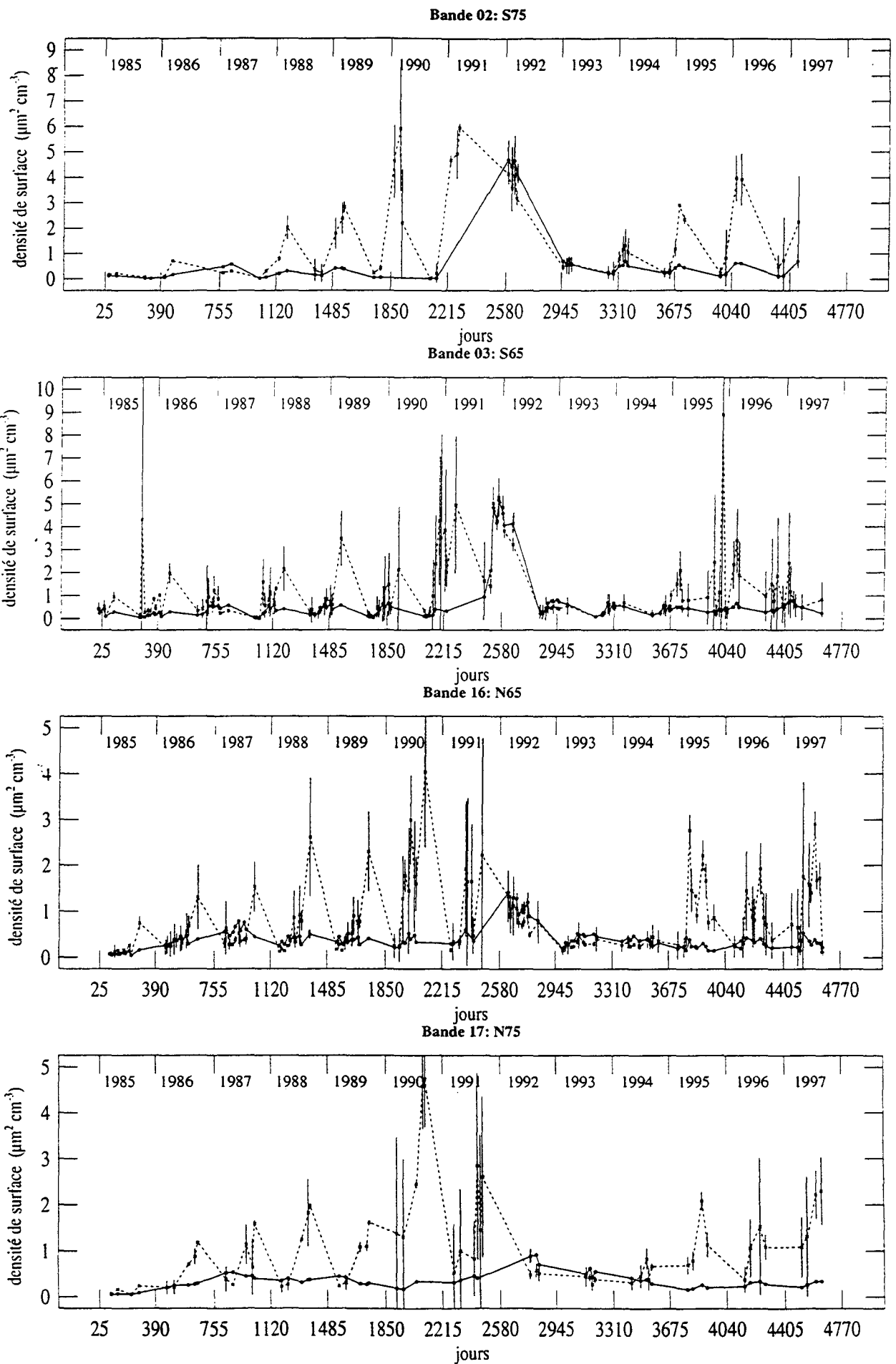


figures 5.4.20.a-c. Coefficients d'extinction à 1.020 μm ainsi que les incertitudes correspondantes pour les périodes centrées sur les 8 (a), 26 (b) août et 3 (c) novembre 1991. Bande de latitudes S65.

densité de surface des aérosols et du rayon effectif entre 1984 et 1997 pour les bandes de latitudes S75, S65, N65 et N75 à l'altitude 25.5 km. On constate les discordances rencontrées entre les deux techniques d'inversion pour la caractérisation de ces deux caractéristiques. La LSFM présente ainsi, sans raison apparente, des valeurs décousues de densité de surface ou de rayon effectif. On avait déjà signalé dans la section 5.4.1.3 des valeurs incohérentes à cette altitude-là déterminées par la LSFM pour la densité de surface avant l'éruption du Pinatubo (fin 1990 et début 1991) dans l'hémisphère sud (figure 5.4.11.a) et en 1995 et 1997 dans l'hémisphère nord (figure 5.4.11.f). Au contraire les caractéristiques déterminées par la CLI semblent correctes et seule est mise en évidence l'éruption du volcan philippin.

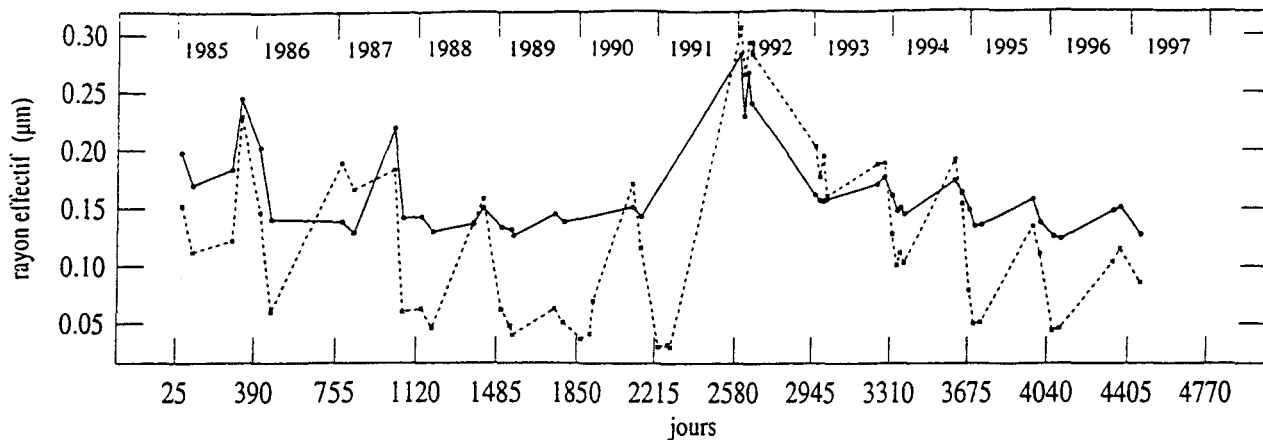
5.5. Conclusion.

Cette climatologie a permis de rendre compte de la fiabilité et la crédibilité des deux méthodes que sont la CLI et la LSFM. Les deux techniques d'inversion sont capables de déterminer raisonnablement les trois caractéristiques des aérosols: densité de surface, densité de volume et rayon effectif dans des conditions très variées pré ou post-volcaniques. Seule la LSFM rencontre des difficultés aux hautes latitudes et surtout à l'approche des pôles pour une altitude de l'ordre de 25 km. Cette étude a permis de montrer les variations saisonnières des caractéristiques des particules stratosphériques. L'éruption du Mont Pinatubo aux Philippines a été parfaitement suivie par SAGE II. On a vu, par exemple, qu'à une altitude de l'ordre de 20 km, l'éruption du volcan philippin a fait multiplier la densité de surface par 15 voire par 20 à toutes les latitudes. La valeur du rayon effectif a, quant à elle, été multipliée par deux voire par trois pour atteindre par moment et par endroit $0.60 \mu\text{m}$ toujours à une altitude de l'ordre de 20 km. Outre la poursuite de la sédimentation des aérosols volcaniques issus de l'éruption de El Chichon en 1982, cette étude a également mis en évidence celle des aérosols

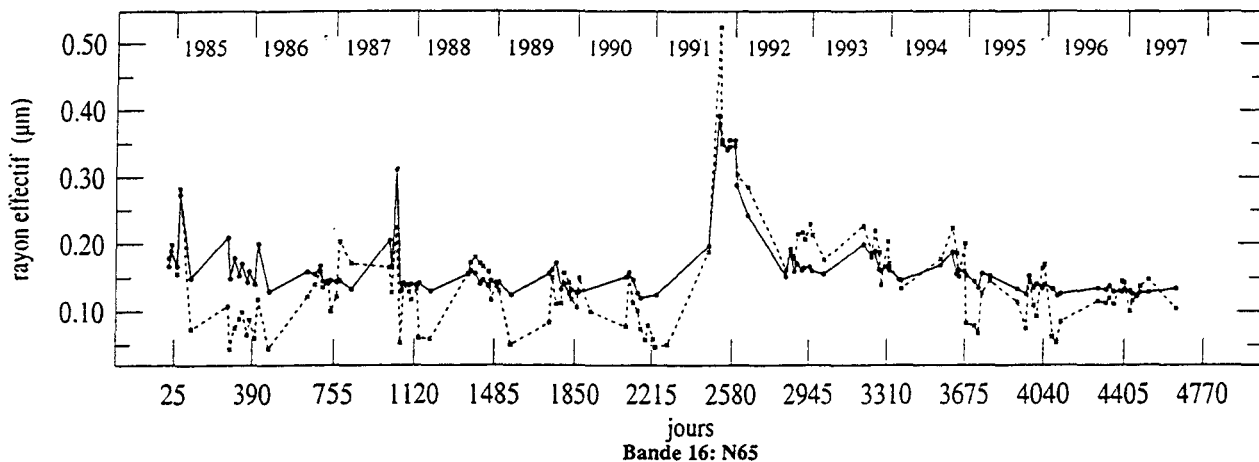


figures 5.4.21.a-d. Evolution de la densité de surface déterminée par la CLI (—●—) et la LSMF (--x--) de 1984 à 1997 pour les bandes de latitudes S75 (a), S65 (b), N65 (c) et N75 (d) à l'altitude 25.5 km. Les barres verticales représentent les erreurs aléatoires (Monte-Carlo).

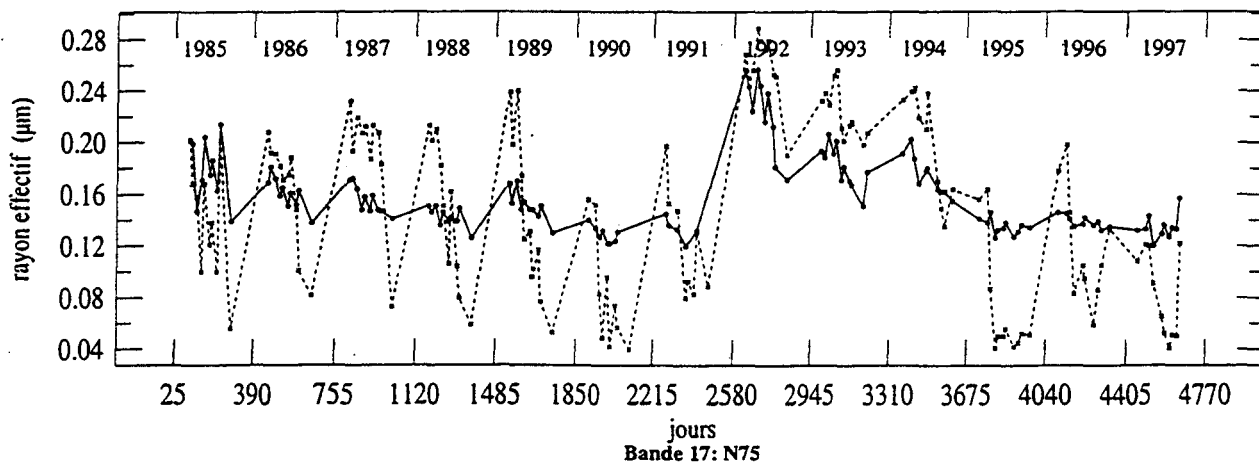
Bande 02: S75



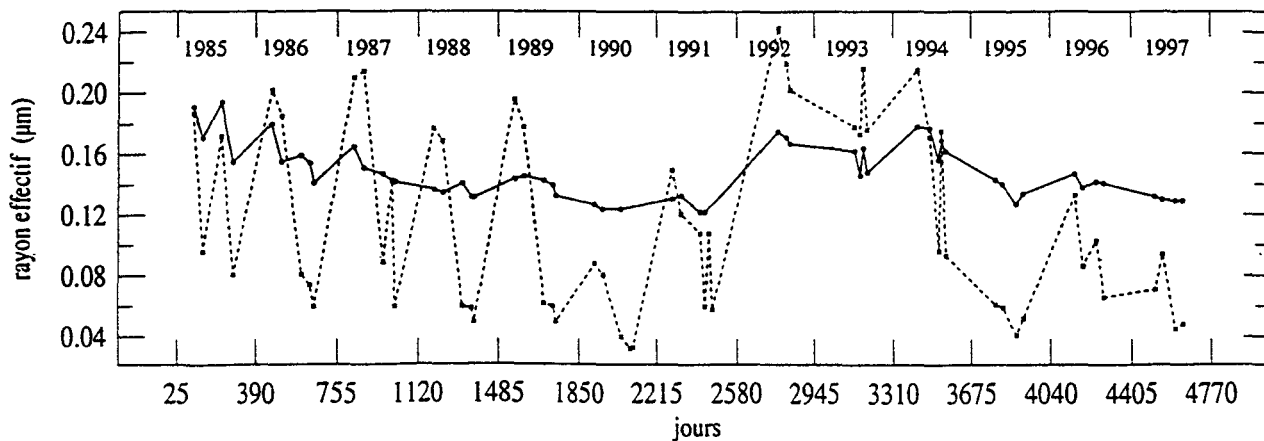
Bande 03: S65



Bande 16: N65



Bande 17: N75



figures 5.4.22.a-d. Idem que pour les figures 5.4.21.a-d mais pour le rayon effectif.

du Mont Pinatubo. Par ailleurs la détermination de la variance effective reste difficile à obtenir, les deux techniques d'inversion présentant des résultats plutôt disparates.

CONCLUSION

Les résultats présentés dans ce travail sont une contribution consacrée exclusivement à l'étude des aérosols stratosphériques. La connaissance des aérosols de la stratosphère est en effet essentielle pour le développement de modèles chimiques, dynamiques et de forçage radiatif afin d'évaluer les effets de ces particules sur les perturbations climatiques et sur la diminution de la quantité d'ozone. Ceci explique les développements de plus en plus grands des études et travaux qui les concernent. Actuellement, la priorité est de disposer d'outils numériques permettant d'évaluer précisément quel a été et quel sera le rôle climatique de ces aérosols. Une motivation très forte qui pousse le développement des modèles climatiques est liée aux risques de plus en plus clairs que l'activité humaine fait peser sur notre environnement. La modification de la composition chimique de l'atmosphère, avec en ce qui nous concerne, l'augmentation des aérosols, pose un problème qui se situe aussi à l'échelle d'un ou plusieurs siècles: pour essayer de comprendre ce qui peut se passer, il faut pouvoir analyser ce qui s'est produit dernièrement et tenter de l'extrapoler dans les années à venir. L'ensemble de ces travaux fait clairement apparaître le rôle majeur du satellite pour ces observations à grande échelle de notre planète. C'est dans cette optique que l'expérience satellitaire SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) III sera lancée en septembre 1999. Elle aura pour but d'évaluer, entre autres, les coefficients d'extinction des aérosols à huit longueurs d'onde dans le domaine Ultra Violet-proche Infra-Rouge, à partir de mesures obtenues par occultation solaire.

Ce travail décrit deux méthodes d'inversion utilisées pour la détermination des caractéristiques physiques des aérosols (densité de surface, densité de volume, rayon effectif et variance effective) qui sont d'un grand intérêt pour la modélisation du climat et l'étude de la chimie hétérogène. La première technique consiste en une Inversion Linéaire Contrainte (*CLI*:

Constrained Linear Inversion) et la seconde se résume à un ajustement effectué sur les mesures d'extinction (*LSFM: Least Squares Fit Method*).

Dans un premier temps, mon travail a consisté à l'adaptation, au développement et à l'application de ces deux méthodes d'inversion à des coefficients d'extinction simulés aux longueurs d'onde de SAGE III en vue d'estimer les caractéristiques des aérosols dans le cas de distributions monomodales (lognormales ou fonctions gamma modifiées), caractéristiques de situations pré-volcaniques, ou bimodales (lognormales), spécifiques d'événements post-volcaniques. En premier lieu, la CLI et la LSFM sont aujourd'hui capables de caractériser ces deux types de distributions. Seule la LSFM présente des difficultés pour une détermination raisonnable des caractéristiques des aérosols de modèles gamma modifiés. La CLI et la LSFM sont sensibles au nombre de longueurs d'onde utilisées. Par ailleurs la CLI est sensible au nombre de classes de particules utilisées. Globalement la CLI et la LSFM présentent une restitution satisfaisante des coefficients d'extinction des aérosols. En général, à partir d'une inversion effectuée à huit ou sept canaux de l'expérience satellitaire SAGE III, avec un indice de réfraction dépendant de la longueur d'onde, la CLI et la LSFM (si on élimine les modèles gamma modifiés) conduisent chacune à une erreur quadratique moyenne de 25 et 13% pour respectivement les densités de surface et de volume. Pour le rayon effectif, l'erreur quadratique moyenne est inférieure à 20% pour les deux techniques d'inversion. Cependant la CLI et la LSFM ne sont pas capables de déterminer raisonnablement la variance effective, avec une erreur quadratique moyenne toujours supérieure à 50%. Une inversion effectuée avec un indice de réfraction constant dégrade en moyenne les résultats de 2 et 1.5% respectivement pour la CLI et la LSFM. Par ailleurs, avec la CLI, nous avons calculé l'extinction des aérosols stratosphériques aux canaux 0.600 et 0.940 μm destinés respectivement à la détermination de l'ozone et de la vapeur d'eau. L'erreur quadratique moyenne est respectivement inférieure à 15 et 10% pour ces deux

canaux. Les extinctions calculées aux longueurs d'onde de l'infra-rouge pour les expériences LPMA (*Limb Profile Monitor of the Atmosphere*) et ILAS (*Improved Limb Atmospheric Spectrometer*) fournissent également des résultats très satisfaisants et rendent compte de la qualité des granulométries inversées. Par ailleurs la comparaison effectuée avec une technique de recherche de minimisation aléatoire (RMST: *Randomized Minimization Search Technique*) d'une équipe américaine de l'Université de Raleigh a permis de tester la crédibilité et la fiabilité de nos deux méthodes.

Dans un deuxième temps, à l'aide des deux méthodes d'inversion précédemment étudiées, j'ai établi une climatologie des aérosols stratosphériques à partir, cette fois-ci, de mesures de coefficients d'extinction des aérosols de l'expérience satellitaire SAGE II. Il faut savoir que SAGE II fournit les coefficients d'extinction des aérosols à un nombre de longueurs d'onde plus faible que SAGE III depuis maintenant environ quinze années. On a ainsi pu mettre en évidence les variations saisonnières et périodiques des caractéristiques des aérosols et l'influence prépondérante des éruptions volcaniques. On a pu remarquer également la sédimentation gravitationnelle au cours du temps des aérosols volcaniques issus de l'éruption du Mont Pinatubo en juin 1991. Au regard des résultats, on se rend compte que la LSFM est presque aussi performante que la CLI même si elle présente des variations irrégulières en période post-volcanique et pour des altitudes supérieures à 25 km à l'approche des pôles.

Ce travail sera d'ici peu appliqué aux mesures de l'expérience satellitaire SAGE III. Il est déjà possible d'utiliser ces deux méthodes d'inversion pour d'autres expériences satellitaires. Ainsi la LSFM a déjà été utilisée pour l'instrument POAM (*Polar Ozone and*

Aerosol Measurement) et l'utilisation de la CLI est en cours. Par ailleurs la climatologie des aérosols stratosphériques établie à partir des coefficients d'extinction des aérosols de l'expérience satellitaire SAGE II va permettre de compléter une banque de données utilisable par différents laboratoires internationaux.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Abrams, M. C., J. M. Zawodny, and P. B. Russell, Alternate Channels, SAGE III Algorithm Review, January 17 & 18, 1996.

Anderson, J., and V. K. Saxena, Temporal changes of the Mt. Pinatubo aerosol characteristics over northern mid-latitudes derived from SAGE II extinction measurements, *J. Geophys. Res.*, *101*, 19455-19463, 1996a.

Anderson, J., and V. K. Saxena, Evolution of the Mt. Pinatubo aerosol over Antarctica inferred from SAGE II extinction measurements, *Atmos. Environ.*, *30*, 1797-1804, 1996b.

Anderson, J., L. Cazier, C. Brogniez, V. K. Saxena, and J. Lenoble, The characterization of aerosols from simulated SAGE III measurements applying two retrieval techniques, *submitted to J. Geophys. Res.*, 1998.

Ben-David, A., B. Herman, and J. A. Reagan, Inverse problem and the pseudoempirical orthogonal function method of solution, I, Theory, *Appl. Opt.*, *27*, 1235-1242, 1988.

Bohren, C. F., and D. R. Huffman. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*. John Wiley, New York, 1983.

Box, M. A., and S. Y. Lo, Approximate determination of aerosol size distributions, *J. Appl. Meteor.*, *15*, 1068-1076, 1976.

Box, M. A., and B. H. J. McKellar, Analytic inversion of multispectral extinction data in the anomalous diffraction approximation, *Opt. Lett.*, *3*, 91-93, 1978.

Box, G. P., K. M. Sealey, and M. A. Box, Inversion of Mie extinction measurements using analytic eigenfunction theory, *J. Atmos. Sci.*, *49*, 2074-2081, 1992.

Brogniez, C., and J. Lenoble, Modeling of the stratospheric background aerosols from zonally averaged SAGE profiles, *J. Geophys. Res.*, *92*, 3051-3060, 1987.

Brogniez, C., and J. Lenoble, Size distribution of stratospheric aerosols from SAGE II multiwavelength extinctions. *Aerosol and Climate*, 305-311, P. V. Hobbs and M. P. McCormick, eds. (Deepak, Hampton VA, 1988).

Brogniez, C., and J. Lenoble, Analysis of 5-year aerosol data from the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II, *J. Geophys. Res.*, *96*, 15479-15497, 1991.

Brogniez, C., R. Santer, B. S. Diallo, M. Herman, J. Lenoble, and H. Jager, Comparative observations of stratospheric aerosols by ground-based lidar balloon-borne polarimeter and satellite solar occultation, *J. Geophys. Res.*, *97*, 20805-20823, 1992.

Brogniez, C., J. Lenoble, R. Ramanananahérisoa, K. H. Fricke, E. P. Shettle, K. W. Hoppel, R. M. Bevilacqua, J. S. Hornstein, J. Lumpe, M. D. Fromm, and S. S. Krigman, Second European stratospheric arctic and midlatitude experiment campaign: correlative measurements of aerosol in the northern polar atmosphere, *J. Geophys. Res.*, *102*, 1489-1494, 1997.

Cadle, R. D., P. Crutzen, and D. Erhalt, Heterogenous chemical reactions in the stratosphere, *J. Geophys. Res.*, *80*, 24, 3981, 1975.

Cadle, R. D., C. S. Kiong, and J. F. Louis, The global dispersion of the eruption clouds from major volcanic eruption, *J. Geophys. Res.*, *81*, 3125-3132, 1976.

Capps, C. D., R. L. Henning, and G. M. Hess, Analytic inversion of remote sensing data. *Appl. Opt.*, *21*, 3581-3587, 1982.

Cazier, L., C. Brogniez, J. Lenoble, and C. Devaux, Inference of aerosol size-distribution, surface area density and volume density from multispectral extinction measurements, *SPIE Proceedings Vol. 3220*, pp. 229-240, London, United Kingdom, 1997.

Chahine, M. T., Determination of the temperature profile in an atmosphere from its outgoing radiance, *J. Opt. Soc. Am.*, *58*, 1634-1637, 1968.

Chipperfield M. P., D. Cariole and P. Simon, A three dimensional transport model study of PSC processing during E.A.S.O.E., *Geophys. Res. Letters*, *21*, 1463-1466, 1994.

Chu, W. P., M. P. McCormick, J. Lenoble, C. Brogniez, and P. Pruvost, SAGE II inversion algorithm, *J. Geophys. Res.*, *94*, 8339-8351, 1989.

Chylek, P., P. Damiano, and E. P. Shettle, Infrared emittance of water clouds. *J. Atmos. Sci.*, *49*, 1459-1472, 1992.

Crutzen, P. J., and F. Arnold, Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: a major cause for springtime ozone hole, *Nature*, *324*, 651-655, 1986.

Dave, J. V., Determination of size distribution of spherical polydispersions using scattered radiation data. *Appl. Opt.*, *10*, 2035-2044, 1971.

Davies, C. N., Size distribution of atmospheric particles. *Aerosol Science*, *5*, 293-300, 1974.

Deepak, A., *Inversion Methods in Atmospheric Remote Sounding*, Academic Press, 622pp, 1977.

Deirmendjian, D., Scattering and polarization properties of water clouds and hazes in the visible and infrared. *Appl. Opt.*, *3*, 187-196, 1964.

Deirmendjian, D., *Electromagnetic scattering on spherical polydispersions*, American Elsevier, 290pp., 1969.

Deshler, T., B. J. Johnson, and W. R. Rozier, Balloonborne measurements of Pinatubo aerosol during the summer of 1991, *Geophys. Res. Lett.*, *20*, 1435-1438, 1993.

Goodman, J., K. G. Snetsinger, R. F. Pueschel, G. V. Ferry, and S. Verma, Evolution of Pinatubo aerosol near 19 km altitude over western North America, *Geophys. Res. Lett.*, *21*, 1129-1132, 1994.

Grainger, R. G., A. Lambert, C. D. Rodgers, and F. W. Taylor, Stratospheric aerosol effective radius, surface area and volume estimated from infrared measurements, *J. Geophys. Res.*, *100*, 16507-16518, 1995.

Grassl, H., Determination of aerosol size distributions from spectral attenuation measurements, *Appl. Opt.*, 10, 2534-2538, 1971.

Hamill, P., E. J. Jensen, P. B. Russell, and J. J. Bauman, The life cycle of stratospheric aerosol particles, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 78, 1997.

Hansen, J. E., and L. D. Travis, Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. Rev.*, 16, 527-610, 1974.

Hansen, J.E., and A. A. Lacis, Sun and dust versus greenhouse gases: an assessment of their relative roles in global climate change, *Nature*, 346, 713-719, 1990.

Hatch, T., and S. Choate, Statistical description of the size properties of non-uniform particulate substances. *J. Franklin Institute*, 207, 369-387, 1929.

Heintzenberg, J., H. Müller, H. Quenzel, and E. Thomalla, Information content of optical data with respect to aerosol properties: numerical studies with a randomized minimization-search-technique inversion algorithm, *Appl. Opt.*, 20, 1308-1315, 1981.

Herman, B. M., S. R. Browning, and J. A. Reagan, Determination of aerosol size distributions from lidar measurements. *J. Atmos. Sci.*, 28, 763-771, 1971.

Herman, J. R., and D. Larko, Low ozone amounts during 1992-1993 from Nimbus 7 and Meteor 3 total ozone mapping spectrometers. *J. Geophys. Res.*, 99, 3483-3496, 1994.

Herman, M., J. Y. Balois, L. Gonzalez, P. Lecomte, J. Lenoble, R. Santer, and C. Verwaerde, Stratospheric aerosol observations from a balloon-borne polarimetric experiment, *Appl. Opt.*, 25, 3573-3584, 1986

Johnston, P. V., R. L. McKenzie, J. G. Keys, and W. A. Matthews, Observations of depleted stratospheric NO₂ following the Pinatubo volcanic eruption, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 211-213, 1992.

Jorge, H. G., and J. A. Ogren, Sensitivity of retrieved aerosol properties to assumptions in the inversion of spectral optical depths, *J. Atmos. Sci.*, *53*, 3669-3683, 1996.

Junge, C. E., The size distribution and aging of natural aerosols as determined from electrical and optical data in the atmosphere. *J. Meteor.*, *12*, 13-25, 1955.

Junge, C., The importance of mineral dust as an atmospheric constituent, in *Sahara dust: Mobilization, transport, deposition*, 49-60, édité par C. Morales, Wiley & Sons, 1979.

Kaufman, Y. J., R. S. Fraser, and R. L. Mahoney, Fossil fuel and biomass burning effects on climate - Heating or cooling?, *J. Climate* *4*, 578-588, 1991.

Kent, G. S., D. M. Winker, M. T. Osborn, and K. M. Skeens, A model for the separation of cloud and aerosol in SAGE II occultation data, *J. Geophys. Res.*, *98*, 20725-20735, 1993.

King, M. D., Sensitivity of constrained linear inversions to the selection of the Lagrange multiplier, *J. Atmos. Sci.*, *39*, 1356-1369, 1982.

King, M. D., D. M. Byrne, B. M. Herman, and J. A. Reagan, Aerosol size distributions obtained by inversion of spectral optical depth measurements, *J. Atmos. Sci.*, *35*, 2153-2167, 1978.

Koike, M., Y. Kondo, W. A. Matthews, P. V. Johnston, and K. Yamazaki, Decrease of stratospheric NO₂ at 44°N caused by Pinatubo volcanic aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, *20*, 1975-1978, 1993.

Lacis, A. A., and M. I. Mishchenko. Climate forcing, climate sensitivity, and climate response: A radiative modeling perspective on atmospheric aerosols. In *Aerosol Forcing of Climate*, pages 11-42. R. Charlson and J. Heintzenberg (Eds.), John Wiley & Sons Ltd., 1995.

Lenoble, J., Atmospheric Radiative Transfer, A. Deepak Publishing, 1993.

Lin, N. -H., and V. K. Saxena, Characteristics of Antarctic stratospheric aerosols during the 1987 ozone depletion episode based on SAGE II satellite observations, *J. Geophys. Res.*, 97, 7635-7649, 1992.

Lin, N. -H., and V. K. Saxena, Changes in stratospheric aerosol parameters over 105-135° longitude due to eruption of Mount Pinatubo, *J. Aerosol Sci.*, 28, 697-712, 1997.

Livingston, J. M., and P. B. Russell, Retrieval of aerosol size distribution moments from multiwavelength particulate extinction measurements, *J. Geophys. Res.*, 94, 8425-8433, 1989.

Madelaine, G., Mesure de l'aérosol troposphérique. IVe symposium sur la recherche en matière de pollution atmosphérique, Minist. Env. T.2, Mars 1982.

Mauldin, L. E., III, N. H. Zaun, M. P. McCormick Jr., J. H. Guy, and W. R. Vaughn, Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II Instrument: A functional description, *Optical. Engineering.*, vol. 24, no.2, pp. 307-312, 1985.

McCormick, M. P., H. M. Steele, P. Hamill, W. P. Chu, and T. J. Swissler, Polar stratospheric cloud sightings by SAM II, *J. Atmos. Sci.*, 39, 1387-1397, 1982.

McCormick, M. P., SAGE II: An overview, *Adv. Space Res.*, 7(3), 219-226, 1987.

McCormick, M. P., and R. E. Veiga, SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 215-218, 1992.

Mukai, S., I. Sano, Y. Sasano, M. Suzuki, and T. Yokota, Retrieval algorithms for stratospheric aerosols based on ADEOS/ILAS measurements, *Geosc. Remote Sensing*, 32, 1124-1127, 1994.

Oberbeck, V. R., E. F. Danielson, K. G. Snetsinger, G. V. Ferry, W. Fong, and D. M. Hayes, Effect of the eruption of El Chichon on stratospheric aerosol size and composition, *Geophys. Res. Lett.*, 10, 1021-1024, 1983.

Oberbeck, V. R., J. M. Livingston, P. B. Russel, R. F. Pueschel, J. N. Rosen, M. T. Osborn, M. A. Kritz, K. G. Snetsinger, and G. V. Ferry, SAGE II aerosol validation:

Selected altitude measurements, including particle micromerements, *Geophys. Res.*, *94*, 8367-8380, 1989.

Palmer, K. F., and D. Williams. Optical constants of sulfuric acid: Applications to clouds of Venus?, *Appl. Opt.*, *14*, 208-219, 1975.

Perelman, A. Ya., and K. S. Shifrin, Improvements to the spectral optical transparency method for determining particle size distribution, *Appl. Opt.*, *19*, 1787-1793, 1980.

Peterson, J. T., and C. E. Junge, Sources of particulate matter in the atmosphere, in *Man's impact on the climate*, 310-320, édité par Matthews et al., MIT Press, Cambridge, Mass., 1971.

Phillips, D. L., A technique for the numerical solution of certain integral equations of the first kind, *J. Assoc. Comput. Mach.*, *9*, 84-97, 1962.

Pinnick, R. G., J. M. Rosen, and D. J. Hofmann, Stratospheric aerosol measurements III: Optical model calculations, *J. Atmos. Sci.*, *33*, 304-314, 1976.

Pitts, M. C., and L. W. Thomason, The impact of the eruptions of Mount Pinatubo and Cerro Hudson on Antarctic aerosol levels during the 1991 austral spring, *Geophys. Res. Letters*, *20*, 2451-2454, 1993.

Pollack, J. B., O. B. Toon, C. Sagan, A. Summers, B. Baldwin and W. Van Camp, Volcanic explosions and climatic change: A theoretical assessment, *J. Geophys. Res.*, *81*, 1071-1083, 1976.

Poole, L. R., and M. P. McCormick, Polar stratospheric clouds and the antarctic ozone hole, *J. Geophys. Res.*, *93*, 8423-8430, 1988.

Poole, L. R., and M. C. Pitts, Polar stratospheric cloud climatology based on Stratospheric Aerosol Measurement II observations from 1978 to 1989, *J. Geophys. Res.*, *99*, 13083-13089, 1994.

Pueschel, R. F., P. B. Russel, D. A. Allen, G. V. Ferry, and K. G. Snetsinger, Physical and optical properties of the Pinatubo volcanic aerosol: Aircraft observations with impactors and a Sun-tracking photometer, *J. Geophys. Res.*, 99, 12915-12922, 1994.

Ramananaherisoa, R., Analyse des mesures de l'expérience satellitaire POAM II. Algorithme d'inversion et intervalidation avec les mesures de SAGE II, Thèse de doctorat, Lille, 1998.

Ramon, D., Détection des aérosols stratosphériques par mesure ballon du rayonnement diffus au limbe: Mise au point d'un nouvel instrument et premiers résultats, Thèse de doctorat, Lille, 1995.

Randall, C. E., D. W. Rusch, J. J. Olivero, R. M. Bevilacqua, L. R. Poole, J. D. Lumpe, M. D. Fromm, K. W. Hoppel, J. S. Hornstein, and E. P. Shettle, An overview of POAM II aerosol measurements at 1.06 microns, *Geophys. Res. Letters*, 23, 3195-3198, 1996.

Rodgers, C. D., Retrieval of atmospheric temperature and composition from remote measurements of thermal radiation, *Rev. Geophys.*, 14, 609-624, 1976.

Rosen, J. M., D. J. Hofmann, and J. Laby, Stratospheric aerosol measurements, II. The worldwide distribution, *J. Atmos. Sci.*, 32, 1457-1462, 1975.

Rosen, J. M., and D. J. Hofmann, Unusual behavior in condensation nuclei concentration at 30 km, *J. Geophys. Res.*, 88, 3725-3731, 1983.

Rosen, J. M., and D. J. Hofmann, Optical modeling of stratospheric aerosols: Present status, *Appl. Opt.*, 25, 410-419, 1986.

Russell, P. B., and R. D. Hake Jr., The post-Fuego stratospheric aerosol: Lidar measurements, with radiative and thermal implications, *J. Atmos. Sci.*, 34, 163-177, 1977.

Russell, P. B., J. M. Livingston, E. G. Dutton, R. F. Pueschel, J. A. Reagan, T. E. DeFoor, M. A. Box, D. Allen, P. Pilewskie, B. M. Herman, S. A. Kinne, and D. J. Hofmann, Pinatubo and pre-Pinatubo optical-depth spectra: Mauna Loa measurements

comparisons, inferred particle size distributions, radiative effects, and relationship to lidar data, *J. Geophys. Res.*, *98*, 22969-22985, 1993.

Russell, P. B., J. M. Livingston, R. F. Pueschel, J. J. Bauman, J. B. Pollack, S. L. Brooks, P. Hamill, L. W. Thomason, L. L. Stowe, T. Deshler, E. G. Dutton, and R. W. Bergstrom, Global to microscale evolution of the Pinatubo aerosol, derived from diverse measurements and analyses, *J. Geophys. Res.*, *101*, 18745-18763, 1996.

Santer, R., M. Herman, D. Tanré, and J. Lenoble, Characterization of stratospheric aerosol from polarization measurements, *J. Geophys. Res.*, *93*, 14209-14221, 1988.

Saxena, V. K., J. Anderson, and N.-H. Lin, Changes in antarctic stratospheric aerosol characteristics due to volcanic eruptions as monitored by SAGE II satellite, *J. Geophys. Res.*, *100*, 16735-16751, 1995.

Shaw, G. E., Inversion of optical scattering and spectral extinction measurements to recover aerosol size spectra, *Appl. Opt.*, *18*, 988-993, 1979.

Shettle, E. P., and R. W. Fenn, Optical propagation in the atmosphere, Electromagnetic Wave Propagation Panel Symposium, Lyngby, Denmark, 27-31 October 1975, AGARD-CP-183, NTIS, AD A028-615, 1976.

SMIC, Report of the study of man's impact on climate, in *Inadvertent Climate Modification*, MIT Press, Cambridge, Mass., 1971.

Spinhirne, J. D., and M. D. King, Latitudinal variation of spectral optical thickness and columnar size distribution of the El Chichon stratospheric aerosol layer, *J. Geophys. Res.*, *90*, 10607-10619, 1985.

Steele, H. M., and P. Hamill, Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulfuric acid-water droplets in the stratosphere, *J. Aerosol Sci.*, *12*, 517-528, 1981.

Steele, H. M., and R. P. Turco, Retrieval of aerosol size distributions from satellite extinction spectra using constrained linear inversion, *J. Geophys. Res.*, *102*, 16737-16747, 1997.

Stratton, J. A., *Electromagnetic theory*, McGraw Hill Book, New York, USA, 615 pp., 1941.

Thomason, L. W., A diagnostic stratospheric aerosol size distribution inferred from SAGE II measurements, *J. Geophys. Res.*, 96, 22501-22508, 1991.

Thomason, L. W., and M. T. Osborn, Lidar conversion parameters derived from SAGE II extinction measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 19, 1655-1658, 1992.

Thomason, L. W., and L. R. Poole, Use of stratospheric aerosol properties as diagnostics of Antarctic vortex processes, *J. Geophys. Res.*, 98, 23003-23012, 1993.

Thomason, L. W., L. R. Poole, and T. Deshler, A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from SAGE II measurements: 1984-1994, *J. Geophys. Res.*, 102, D7, 1997.

Trakhovsky, E., S. G. Lipson, and A. D. Devin, Atmospheric aerosols investigated by inversion of experimental transmittance data, *Appl. Opt.*, 21, 3005-3010, 1982.

Trepte, C. R., R. E. Veiga, and M. P. McCormick, The poleward of dispersion of Mount Pinatubo volcanic aerosol, *J. Geophys. Res.*, 98, 18563- 18573, 1993.

Turco, R. P., R. C. Whitten, and O. B. Toon, Stratospheric aerosols, Observation and theory, *Rew. of Geoph. and Space Phys.*, 20, 2, 233-279, 1982.

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

Twomey, S., The application of numerical filtering to the solution of integral equations encountered in indirect sensing measurements, *J. Franklin Inst.*, 279, 95-109, 1965.

Twomey, S., Comparison of constrained linear inversion and an iterative nonlinear algorithm applied to the indirect estimation of particle size distributions, *J. Comput. Phys.*, *18*, 188-200, 1975.

Twomey, S., Introduction to the mathematics of inversion in remote sensing and indirect measurements, in *Developments in Geomathematics*, Elsevier Sci., New York, 1977.

van de Hulst, H. C., *Light Scattering by Small Particles*. Dover Publications, Inc., New York, 1957, Republished 1981.

Vermeulen, A., Caractérisation des aérosols à partir de mesures optiques passives au sol: apport des luminances totale et polarisée mesurées dans le plan principal, Thèse de doctorat, Lille, 1996.

Vieira, G., and M. A. Box, Information content analysis of aerosol remote sensing experiments using singular function theory. I: Extinction measurements. *Appl. Opt.*, *26*, 1312-1327, 1987.

Wang, P., Modélisation et mesure du rayonnement solaire ultraviolet, Thèse de doctorat, Lille, 1994.

Wang, P. -H., M. P. McCormick, T. J. Swissler, M. T. Osborn, W. H. Fuller, and G. K. Yue, Inference of stratospheric aerosol composition and size distribution from SAGE II satellite measurements, *J. Geophys. Res.*, *94*, 8435-8446, 1989.

Wang, P. -H., G. S. Kent, M. P. McCormick, L. W. Thomason, and G. K. Yue, Retrieval analysis of aerosol size distribution with simulated extinction measurements at SAGE III wavelengths, *Appl. Opt.*, *35*, 433-440, 1996.

Winker, D. M., and M. T. Osborn, Airborne lidar observations of the Pinatubo volcanic plume, *Geophys. Res. Lett.*, *19*, 167-170, 1992.

Woodbury, G. E., and M. P. McCormick, Zonal and geographical distributions of cirrus clouds determined from SAGE data, *J. Geophys. Res.*, *91*, 2775-2785, 1986.

Yamamoto, G., and M. Tanaka, Determination of aerosol size distribution by spectral attenuation measurements, *Appl. Opt.*, 8, 447-453, 1969.

Yarger, D. N., An evolution of some methods of estimating the vertical atmospheric ozone distribution from the inversion of spectral ultraviolet radiation, *J. Appl. Meteor.*, 9, 921-928, 1970.

Yue, G. K., and A. Deepak, Latitudinal and altitudinal variation of size distribution of stratospheric aerosols from SAGE aerosol extinction coefficient measurements at two wavelengths, *Geophys. Res. Lett.*, 11, 999-1002, 1984.

Yue, G. K., M. P. McCormick, and E. W. Chiou, Stratospheric aerosol optical depth observed by the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II: decay of the El Chichon and Ruiz volcanic perturbations, *J. Geophys. Res.*, 96, 5209-5219, 1991.

Yue, G. K., L. W. Thomason, L. R. Poole, P. -H Wang, D. Baumgardner and J. E. Dye, Aerosol surface areas deduced from early 1993 SAGE II data and comparisons with stratospheric photochemistry, aerosols, and Dynamics Expedition measurements, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2933-2936, 1995.

Yue, G. K., J. Lu, V. A. Mohnen, P. -H. Wang, V. K. Saxena, and J. Anderson, Retrieving aerosol optical properties from moments of the particle size distribution, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 651-654, 1997.

ANNEXE A

The Characterization of Aerosols from Simulated SAGE III Measurements Applying Two Retrieval Techniques

By J. Anderson,¹ L. Cazier,² C. Brogniez,² V.K. Saxena,^{1*} and J. Lenoble²

¹Department of Marine, Earth and Atmospheric Sciences
North Carolina State University
Raleigh, NC USA

²Laboratoire d'Optique Atmosphérique
Université des Sciences et Technologies de Lille
Villeneuve d'Ascq, France

Submitted: February 23, 1998

Journal of Geophysical Research-Atmospheres

*To whom the correspondence should be addressed.

email: saxena@eos.ncsu.edu

Phone: (919) 515-7290

Fax: (919) 515-7802

Abstract: We investigated the retrieval of aerosol properties and the extinction due to aerosols at the ozone and water vapor channels from simulated measurements at variations of the planned Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III aerosol channels. The aerosol quantities surface area, volume, and effective radius are retrieved through the application of two distinct algorithms in the form of the randomized minimization search technique (RMST) and constrained linear inversion (CLI) method. These aerosol quantities are important as inputs in climate, photochemical, and radiative forcing models and are very useful in comparing diverse measurements. Ten analytical size distributions fitted to aerosol populations measured in situ are used with a Mie scattering code in conjunction with a Monte Carlo technique to simulate SAGE III measurements. These models consist of variations of pre- and post-volcanic size distributions that exhibit various spectral shapes. Neither the complex components nor the uncertainties of the refractive indices are considered. We developed an objective scheme to estimate the systematic, random, and total uncertainties of each retrieved quantity that considers the contribution of the particles that lie outside the retrieved size range. Results indicate that the RMST is less sensitive than the CLI to the number of optical data used in retrieving the aerosol characteristics. In the 7 to 8 SAGE III channel retrievals, both algorithms obtain composite total errors (R^*) of ~25% for surface area, ~12% for volumes, and < 20% for the effective radius though both inversion techniques are applied in different size ranges. The inversion of the 6 largest channels in order to study aerosol properties in both the lower stratosphere and upper troposphere leads to RMST R^* values of ~32, ~15 and ~20% and CLI R^* values of ~48, ~22, and ~31% for the surface area, volume, and effective radius respectively. In the 7 wavelength retrievals, both algorithms retrieved the extinction coefficients at the unused channel to within their measurement uncertainties except at the 0.385 and 1.550 μm channels that are located at the tail ends of the SAGE III aerosol extinction spectrum. The calculated extinction due to aerosols at the water vapor channel at 0.940 μm and the ozone channel at 0.600 μm produced R^* values of < 10 and < 15% for both techniques. We have shown that the application of either technique, when properly tailored to the SAGE III system, can not only obtain reliable aerosol information, but can reasonably estimate the extinction due to aerosols at other wavelengths as well.



1. Introduction

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III is the latest in a series of self-calibrating, limb scanning, satellite based occultation sensors that measure the attenuation of the solar signal as it traverses through a portion of the earth's atmosphere. The SAGE III series of instruments is planned to be part of the Earth Observing System (EOS) platforms with the first instrument scheduled to be launched during the summer of 1999 for polar coverage. The SAGE III instrument contains 12 spectral channels over the wavelength region between 0.280-1.550 μm and is essentially an improved version of its highly successful predecessor, the 7-channel SAGE II instrument. The SAGE III instrument uses a charge coupled device (CCD) linear array technique designed to measure (i) aerosol extinction coefficients at centered wavelengths 0.385, 0.450, 0.521, 0.676, 0.756, 0.869, and 1.0195 μm , (ii) absorption features of the gaseous species O_3 , NO_2 , and H_2O , and (iii) both temperature and molecular density profiles from the O_2 -A band near 0.760 μm (Wang et al., 1996). The SAGE III instrument will also have a channel centered near 1.550 μm to improve the size discrimination of larger aerosol particles and the separation of cloud from aerosol. A unique feature of the SAGE III instrument over its predecessors is the implementation of a lunar occultation mode to measure the active nighttime chemical species NO_3 and OCIO . Building upon the success, high vertical resolution (1 km), and unprecedented longevity (13 years and still operating) of the SAGE II instrument, the SAGE III series of instruments will enhance and extend the existing database of stratospheric constituents.

Understanding the microphysical characteristics of the stratospheric aerosol is crucial in the development of chemical, dynamical, and radiative forcing models for evaluating aerosol effects on ozone depletion and long-term climate perturbations. It is necessary to reliably quantify the aerosol's composition (refractive index), shape, and size distribution to accurately study the microphysical properties of the stratospheric aerosol. Inversion algorithms have been developed over the past 30 years to obtain information on the aerosol characteristics (shape and size distribution) from measured optical data such as extinction. Numerous inversion algorithms have been previously applied to the SAGE II aerosol extinction channels. Yue et al. (1986) assumed a

lognormal size distribution and used simulated extinction measurements at the 0.385, 0.525, and the 1.02 μm SAGE II channels to retrieve the three single mode lognormal parameters. Brogniez and Lenoble (1988) were able to retrieve 2 parameters of monomodal type size distributions by analyzing the SAGE II extinction measurements. Wang et al. (1989) used the four wavelength SAGE II extinction data to infer the size distribution parameters for the lognormal and modified gamma distributions using a nonlinear least squares method. Thomason (1991) used empirical relationships between the 0.525, 0.940, and 1.02 μm extinction measurements to seek a size distribution parameterization that gave the best water vapor retrieval at 0.940 μm and showed that the SAGE II measurements of the pre-Pinatubo stratospheric aerosol can be modeled with size distributions in the form of a segmented power law while preserving the wavelength dependence of the measured extinction. Livingston and Russell (1989) used eigenvalue and moment conversion ratio techniques to retrieve size distribution moments from SAGE II extinction spectra. Thomason and Osborn (1992) and Thomason and Poole (1993) used a similar eigenvalue method in the form of principal component analysis (PCA) to derive lidar conversion parameters and microphysical aerosol properties from the SAGE II data. Lin and Saxena (1992) used a randomized minimization search technique (RMST) algorithm to retrieve a size distribution histogram from the SAGE II extinction data from which moments and other integral properties can be computed. In previous applications of the RMST algorithm to the SAGE II data set, Lin and Saxena (1992) inferred aerosol characteristics over the Antarctic stratosphere during the severe ozone depletion episode of 1987. Saxena et al. (1995) inferred characteristics of the Mt. Pinatubo volcanic aerosol as it arrived over the Antarctic stratosphere during the Austral spring of 1991. Anderson and Saxena (1996a) derived vertical profiles and columnar characteristics to study the evolution and stratospheric settling of the Mt. Pinatubo volcanic aerosol. Similarly, Anderson and Saxena (1996b) studied the evolution and stratospheric settling of the Mt. Pinatubo volcanic aerosol over northern mid-latitudes. Lin and Saxena (1997) inferred the changes in the stratospheric aerosol characteristics due to the eruption of Mt. Pinatubo over 105-135°E longitude. In a different

approach, Yue et al. (1997) successfully used the RMST method to infer optical properties from moments of the particle size distribution.

The problems inherent to all inversion algorithms are the ambiguities associated with the inverse problem. Numerous retrieved solutions may satisfy one set of optical measurements. The non uniqueness of the retrieved solutions is primarily due to the presence of experimental error in the measurements. Steele and Turco (1997) used a constrained linear inversion (CLI) procedure on simulated SAGE II extinction measurements and stressed the inherent difficulties of retrieving size distribution information from these measurements. The objective of this study is to investigate the retrieval of aerosol size distribution and corresponding microphysical characteristics and uncertainties from simulated aerosol extinction-coefficient measurements of the planned SAGE III instrument. The algorithms used for the inversion of the simulated SAGE III measurements are the RMST technique designed by Heintzenberg et al. (1981) and the CLI technique designed by King et al. (1978). We have chosen to achieve the retrieval with these two methods because they are relatively fast and shape-constraint-free processes. A scheme is presented to estimate the uncertainties in the derived aerosol microphysical quantities surface area, volume, and effective radius. The quality of the retrieved aerosol characteristics and the strengths and limitations of each algorithm is compared and discussed.

2. Theory

The stratospheric aerosols are generally considered as spherical particles of radius r (Steele and Hamill, 1981). The extinction coefficient β_λ at wavelength λ can be defined for spherical and homogeneous particles by Mie theory as

$$\beta_\lambda = \int_0^\infty \pi r^2 Q_{ext}(m, r, \lambda) \frac{dN(r)}{dr} dr, \quad (1)$$

where Q_{ext} is the extinction efficiency factor for Mie particles, m is the complex refractive index for aerosols and the $\frac{dN(r)}{dr}$ is the aerosol size distribution between particle radii r and $r+dr$. The above

equation may be written

$$\beta_{\lambda} = \int_0^{\infty} K(m, r, \lambda) \frac{dN(r)}{dr} dr \quad (2)$$

where the extinction cross section is defined as

$$K(m, r, \lambda) = \pi r^2 Q_{\text{ext}}(m, r, \lambda). \quad (3)$$

For a measured extinction spectrum, an inversion to determine the aerosol size distribution ($\frac{dN(r)}{dr}$) corresponds to a solution of (2), which can be expressed as

$$\beta_j^m = \int_0^{\infty} K_j(r, m) \frac{dN(r)}{dr} dr. \quad (4)$$

The β_j^m (m indicates measured) is the measured value with j indicating the wavelength channel and $K_j(r, m)$ is the corresponding kernel function. Equation (4) has no general analytic solution. For a numerical solution, the integral may be written as a finite sum which requires the approximation of the size distribution by a mathematical model with a finite number of parameters.

2.1 Randomized Minimization Search Technique (RMST)

If the aerosol size distribution is represented by a histogram distribution with L size bins, the calculated extinction coefficient β_j^c , (c indicates calculated) can be expressed as

$$\beta_j^c = \sum_{l=1}^L K_{jl} n_l \quad (5)$$

where n_l is the value of the aerosol size distribution within the l 'th size bin and K_{jl} is the kernel K_j integrated over the interval Δr of size bin l . Therefore,

$$K_{jl} = \int_r^{r+\Delta r} K_j(j, r) dr. \quad (6)$$

If a number J of extinction coefficients β_j^m is given, (5) represents a linear system of J equations and L unknowns n_l . When J is equal to L , the solution can be found analytically. However, due to the measurement error in (4), and/or a truncation error in (6) and the inherent ambiguities associated with the inverse problem, a negative value of n_l (i.e. negative particle concentrations) could be possible. Obtaining physically meaningful solutions requires imposing constraints on Eq.

(5) such as rejecting negative values of n_l though this may exclude analytic solutions to the system of equations (5).

Heintzenberg et al. (1981) developed the RMST algorithm to find a size distribution whose optical properties have a minimum deviation from the measured optical properties for the case $L \geq J$. In this study, the deviation is defined as

$$D_{opt} = \frac{1}{J} \sum_{j=1}^J \left(\frac{\beta_j^c - \beta_j^m}{\beta_j^m} \right)^2. \quad (7)$$

The minimization is done by an iterative least squares fit. The RMST algorithm uses a simple step function to reconstruct the $\frac{dN(r)}{dr}$ in Eq. (1). In the beginning of the inversion, each of the size bins is filled with a positive number of particles. One size bin is randomly selected in each iteration step and the number density in this size bin is multiplied by a factor of a . The other size bins are multiplied by a factor b . The updated β_j^c , is expressed as

$$\beta_j^c = aK_{jq}n_q + b \sum_{l=1, l \neq q}^L K_{jl}n_l. \quad (8)$$

Analytical solutions for a and b are found by solving $\frac{\partial D_{opt}}{\partial a} = 0$ and $\frac{\partial D_{opt}}{\partial b} = 0$ such that the difference between the calculated and measured extinction coefficients attain a minimum. The iteration step is rejected if either a or b becomes negative; another size bin is selected, another iteration step is performed. The iteration converges and is terminated when the desired error limit ($D^* \leq \sqrt{D_{opt}}$) or a pre-selected maximum number of allowed iteration steps is reached. The size bin that is adjusted in an iteration step is randomly selected to avoid every iteration leading to the same solution (since L may be greater than J).

The randomized nature of the RMST makes this algorithm independent of the size bin at which the iteration starts. The error limit (D^*) is prescribed to be within the measurement uncertainties of the optical data. In practice, the number of iteration steps is chosen to be as large as possible with a reasonable computing time. This procedure is repeated a pre-selected number of times and then averaged to obtain the necessary smoothing since the individual solutions may be oscillatory in nature mainly due to the amplification of the measurement noise (Steele and Turco,

1997). The averaged size distribution is also a solution where the extinction coefficients of the averaged solution fit the measured values at least as well as the extinction coefficients of the individual solutions do on the average (Heintzenberg et al., 1981). Optimal choices for the number of iterations is 100 and solutions to be averaged is 25 and are held fixed throughout this study.

For each inversion, the simulated optical data is first fitted to the Angstrom power law by regression analysis to obtain a value for the Angstrom turbidity coefficient α ($\beta_\lambda = c_1 \lambda^{-\alpha}$). A Junge size distribution is then used as an initial guess at the beginning of the inversion. The Junge size distribution may be expressed as

$$\frac{dN(r)}{dr} = c_2 r^{-(\nu+1)} \quad (9)$$

where c_2 is an adjustable constant and $\nu = \alpha + 2$. A detailed description of the RMST process is given by Heintzenberg et al. (1981) and its initial application to the SAGE II data set is presented by Lin and Saxena (1992).

2.2 Constrained Linear Inversion (CLI)

King et al. (1978) developed the CLI method to include a smoothing constraint. In order to determine the aerosol size distribution, the integral expression of the extinction coefficients β_λ (see Eq. 2) is transformed into a finite summation on coarse intervals on r where the aerosol size distribution can be written

$$\frac{dN(r)}{dr} = h(r) f(r). \quad (10)$$

The $h(r)$ is a rapidly varying function while $f(r)$ is a more slowly varying function of r . Then Eq. (2) becomes

$$\beta_\lambda = \sum_{j=1}^q \int_{r_j}^{r_{j+1}} K(m, r, \lambda) h(r) f(r) dr \quad (11)$$

where r_j and r_{q+1} are the minimum and maximum radii respectively.

The integral equation (2) obtained for each wavelength is rewritten as this quadrature form (11). Assuming $f(r)$ is constant over each coarse interval, the system of equations (11) can be replaced by an equivalent linear system which can be expressed in the matrix form

$$g = Af + \varepsilon \quad (12)$$

where (King et al., 1978)

$$\begin{aligned} g_i &= \beta_{\lambda_i} & i &= 1, 2, \dots, p \\ A_{ij} &= \int_{r_j}^{r_{j+1}} K(m, r, \lambda_i) h(r) dr & & (13) \\ f_j &= f(r_j \leq r \leq r_{j+1}) & j &= 1, 2, \dots, q \end{aligned}$$

The β_{λ_i} are the measurements at p discrete wavelengths λ_i and the solution vector f is inferred at q discrete radii r . A_{ij} represent the quadrature coefficients, ε is the unknown error vector and represents the combination between measurement error and quadrature error.

In order to solve (12) and to obtain the best solution vector f (*i. e.* a physical solution among all possible solutions), it is necessary to use the constrained linear inversion method. The solution vector f is given by (King, 1982)

$$f = (A^T S_e^{-1} A + \gamma H)^{-1} A^T S_e^{-1} g \quad (14)$$

where H is the smoothing matrix defined by Twomey (1963), S_e is the measurement covariance matrix and γ is a non-negative Lagrange multiplier selected so that all the elements of f are positive (*i. e.* negative values of the elements constitute unphysical solutions). For more information on the CLI technique and the criteria used in selecting the Lagrange multiplier, see King (1982). The procedure is iterative and while we are inferring unimodal or bimodal size distributions, we have chosen a bimodal Junge size distribution (see Eq. 9) as a first guess throughout this analysis. This iterative process is repeated for no more than eight iterations (King, 1982) (the zero-order weighting function is $h^{(0)}(r) = r^{-(\nu+1)}$, the first-order weighting function is $h^{(1)}(r) = h^{(0)}(r) f^{(1)}(r)$, ...) until the retrieved extinction coefficients match the simulated ones within the uncertainties (Cazier et al., 1997).

3. Approach

3.1. Model Size Distributions and Simulated Extinction Measurements

The lognormal size distribution of aerosols is a widely used analytic function to fit stratospheric aerosol populations and can be expressed as

$$\frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_o}{\sqrt{2\pi} r \ln(\sigma_g)} \exp\left[-\frac{\ln^2(r/r_g)}{2 \ln^2 \sigma_g}\right], \quad (15)$$

where N_o is the number concentration (cm^{-3}), r_g is the geometric mean radius (μm), and σ_g is the geometric standard deviation of the distribution. The modified gamma size distribution of aerosols is another analytic function used to fit aerosol populations and can be expressed as

$$\frac{dN(r)}{dr} = A r^a \exp[-b r^c]. \quad (16)$$

True extinction coefficients at the SAGE III aerosol wavelengths are directly calculated from Eq. (1). Table 1a lists the lognormal and modified gamma model parameters used to calculate the true extinction coefficients and the corresponding true microphysical characteristics for each model. The true extinction coefficients and model characteristics are calculated for r between 0.001 to 10 μm in .001 μm increments. Models 1 and 2 are El Chichon volcanic size distributions determined from impactor measurements by Oberbeck et al. (1983). Model 3 is a pre Pinatubo size distribution determined from impactor measurements by Goodman et al. (1994). Models 4 and 5 are variations of the post Pinatubo volcanic size distributions similarly determined by Goodman et al. (1994). Models 6 and 7 are variations of the Pinatubo aerosols determined from balloonsondes by Deshler et al. (1993). Model 8 is the composite average of Mt. Pinatubo volcanic size distribution determined by Poeschel et al. (1994). Models 9 and 10 are modified gamma size distributions for a background stratosphere (Shettle and Fenn, 1976) and a stratospheric haze H (Deirmendjian, 1969) model respectively. Bi-modal size distributions can be calculated from Eq. (15) by summing up the individual lognormal components. The real components of the refractive indices used for the calculation of Q_{ext} are those recommended for sulfuric acid solutions by Russell et al. (1996) for a stratospheric temperature of -50°C and water vapor mixing ratio of 3 ppmv (75.2% H_2SO_4) and are listed in Table 1b along with the maximum assigned uncertainty for each SAGE III aerosol channel. We have not considered the imaginary component which is less than 2×10^{-6} except at 1.550 μm where it is equal to 1.5×10^{-4} (Palmer and Williams, 1975), nor the uncertainties of the refractive indices in this study. We use a Monte Carlo technique to simulate measurements by adding random errors (normally distributed) to the nominal extinction

coefficients based on the uncertainties listed in Table 1b. This has been repeated 1000 times for each model listed in Table 1a to produce 1000 distinct measurements.

To consider the size range where the retrievable information lies in the presence of experimental errors, the ratio criterion suggested by Heintzenberg et al. (1981) is considered in this analysis. The ratio criterion states that in radius intervals where the ratio of two kernel functions remains constant, the information on particle size cannot be provided from measurements in these intervals. The ratio criterion is a form of guidance that is helpful in determining the upper and lower bounds of the retrievable size range. Retrieving aerosol properties outside of these bounds will lead to uncertainties with magnitudes that depend on the form of the retrieved aerosol distribution though they may not have appreciable effects on the differences between the measured and the calculated extinctions and microphysical characteristics. Therefore, care must be taken in choosing proper radii limits for retrieving aerosol information from multi-spectral measurements. Figures 1a and 1b show the kernel ratios of the SAGE III two extreme channels 0.385 to the 1.550 μm and 0.521 to the 1.550 μm channel respectively. The vertical dashed lines of each figure are located at the radii where the external constraints and subsets thereof are imposed throughout this analysis. The external constraints consist of a minimum radius (R_{min}) at 0.1 μm and a maximum radius (R_{max}) at 1.25 μm . From inspection of Figs. 1a and 1b, there is some information that may be extracted beyond these limits (for instance up to 3 μm) but the presence of unavoidable measurement errors will likely cause the SAGE III measurements to lose information beyond these limits and especially on the smaller aerosols below R_{min} . The different size ranges considered in this analysis are subsets of the size range determined by Wang et al. (1996) to be where the retrievable information exists (0.1 to 1.5 μm).

3.2. Derived Aerosol Characteristics and Performance Criteria

Applying the two inversion techniques, information regarding aerosol properties is derived by first relating the retrieved size distribution to the k'th moment of the size distribution by the following equation:

$$M_k = \int_0^{\infty} r^k \frac{dN(r)}{dr} dr. \quad (17)$$

The surface area concentration (in $\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$) can then be obtained as follows:

$$S = 4\pi \int_0^{\infty} r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr = 4\pi M_2 = 4\pi \sum_{l=1}^L r_l^2 N_l(r), \quad (18)$$

where $N_l(r)$ is the number concentration (e.g., the integration of $\frac{dN(r)}{dr}$ between r and $r+\Delta r$) and r_l

is the median radius of the size bin l . The surface area concentration is an important parameter in the photochemistry community since numerous studies have suggested that enhancements of aerosol surface areas due to volcanic eruptions may lead to heterogeneous reactions similar to those that occur on polar stratospheric clouds but on a smaller scale (Solomon et al., 1996). The volume

concentration (in $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$) can be calculated from

$$V = \frac{4}{3}\pi \int_0^{\infty} r^3 \frac{dN(r)}{dr} dr = \frac{4}{3}\pi M_3 = \frac{4}{3}\pi \sum_{l=1}^L r_l^3 N_l(r). \quad (19)$$

The volume concentration is also an important parameter to the photochemical community and is very useful in that mass concentrations and mixing ratios can be determined. The effective radius (in μm) can then be calculated (Hansen and Travis, 1974) from

$$R_e = \frac{\int_0^{\infty} \pi r^3 \frac{dN(r)}{dr} dr}{\int_0^{\infty} \pi r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr} = \frac{M_3}{M_2} = \frac{3V}{S} \quad (20)$$

and is an estimate of the mean radius of the size distribution. The effective radius is not only a significant parameter for radiative forcing studies but a very useful parameter to compare diverse measurements [Russell et al., 1996; Brogniez et al., 1997]. These parameters are chosen not only because of their potential significance as inputs in spectrally driven radiative and photochemical models, but also because of their projected archival during the implementation of the SAGE III program. These parameters can also be vertically integrated to obtain the columnar characteristics.

The following objective performance descriptors are used as criteria for ranking the performance for each inversion technique in deriving the microphysical characteristics. The total relative error of the surface area concentration is defined as

$$\frac{\Delta S}{S} = \frac{abs(S_{inferred} - S_{true}) + \sigma_S}{S_{inferred}} \quad (21)$$

where $S_{inferred}$ is the mean surface area obtained from the 1000 size distributions, σ_S is the corresponding standard deviation, and S_{true} is the true surface area concentration integrated between 0.001 to 10 μm . The relative difference between the inferred mean and true characteristic is defined as the systematic error. The ratio of the standard deviation to the inferred mean characteristic is then defined as the random error. Expressions for the total errors in the volume concentration and effective radius are defined in a similar form. The composite total error for each aerosol quantity is then defined as

$$R_X^* = \left[\frac{1}{M^*} \sum_{i=1}^{M^*} \left(\left(\frac{\Delta X}{X} \right)_i \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (22)$$

where X is any of the 3 aerosol characteristics (S , V , Re) shown in Eqs. 18-20 and M^* is the number of size distribution models tested (= 10) in each inversion method. Values for R^* can also be determined for any of the extinctions calculated from the retrieved size distributions. Each set of the synthetic measurements will be inverted to retrieve the aerosol size distribution. The aerosol microphysical properties are then calculated from each inverted size distribution. The mean and standard deviation of each aerosol characteristic is calculated from the 1000 inverted size distributions and then compared to the “true” or theoretical characteristics. This method is similar to the one Wang et al. (1989) used to estimate the uncertainties (systematic and random) of their derived size distributions from 50 sets of simulated SAGE II measurements. The estimation of uncertainties from one single set or even a few sets would be difficult due to the ambiguities associated with the inverse problem. Therefore, a wide range of sets will produce reliable means and error bars that are both necessary to confidently estimate the uncertainties. This form of analysis has the obvious added advantage of knowing the features of the aerosol size distribution beforehand and thus testing the reliability of the 2 inversion techniques.

4. Results and Discussion

We present results of the RMST and CLI methods in their own size range and discuss the differences in the retrieved characteristics. The radius range (i.e. the external constraints for the minimum radius, R_{min} , and the maximum radius, R_{max}) has been chosen for each technique to be the best adapted for all 10 models. The radius range for the RMST method is between 0.1 and 1.0 μm and 0.13 to 1.2 μm for the CLI method (see section 3.1). The inversions are performed until a good agreement (in a least squares sense) between the computed and the simulated extinctions is obtained within the estimated errors. The optimal values of the desired error limit (i.e. D^*) in the RMST technique is 10% for Models 1, 2, 5, 6, 7, and 8 and 15% for the other four models.

4.1 Inversion from the Eight Wavelengths

We first inverted the simulated extinctions at all of the primary aerosol channels that will be available from SAGE III. The top frames of Figs. 2a-b show the calculated extinction and the true extinction spectra and associated uncertainty for each SAGE III channel for Models 1 and 6 respectively. The SAGE III channels are listed at the top edge of each figure. The arithmetically averaged D^* and corresponding standard deviation of the 1000 inversion solutions for Models 1 and 6 respectively are $7.7\% \pm 2.0\%$ and $8.4\% \pm 1.9\%$ for the RMST and the *rms* error is $2.1\% \pm 0.4\%$ and $2.8\% \pm 0.3\%$ for the CLI. The *rms* values between the "true" and the extinction coefficients calculated from the mean size distribution are $< 3\%$ for both procedures. The retrieved extinction spectra are all estimated within the respective measurement uncertainties of each SAGE III channel though some degree of under predicting the true extinction coefficients is observed and expected since the true extinction coefficients were calculated between 0.001 to 10 μm as previously discussed. As can be seen in Fig. 2, the extinction coefficients are very well retrieved by both methods for these models. Furthermore, the extinction coefficients are well retrieved by both methods for all of the models considered in this study. The bottom frames of Figs. 2a-b show the corresponding mean results and dispersion of the 1000 inverted size distributions retrieved from both techniques for Models 1 and 6. The large particle mode of both models is

generally well recovered by both procedures. The bi-modal nature of Model 1 is more pronounced for the RMST result in Fig. 2a. but is very difficult to quantify. Steele and Turco (1997) pointed out the difficulty to infer the small particle mode from SAGE II measurements since it is located below the sensitivity range of the instrument and below the external constraint, R_{min} . The slope at the larger particle sizes for both models is not well resolved beyond $0.8 \mu\text{m}$ for either technique and may be explained by the fact that the relative contribution to the "true" extinction for particles $> 1.0 \mu\text{m}$ is $< 1\%$ for all SAGE III channels.

Figure 3a shows the results for Model 4, a post-Pinatubo size distribution (bottom frame) determined from particles collected near 15 km over California by Goodman et al. (1994), approximately 66 days after the eruption. The shape of this model size distribution is consistent with freshly nucleated particles after a volcanic eruption. The retrieved solutions for both procedures are poor beyond about $0.7 \mu\text{m}$. The RMST algorithm does not perform well in reconstructing size distributions of this form due to the steep nature of the model's slope (Heintzenberg et al., 1981). The top frame of Fig. 3a show the calculated extinction and the true extinction spectra and associated uncertainty for each SAGE III channel for Model 4. The averaged D^* and rms values between the extinctions calculated from the average size distribution and the true extinction are $12.7\% \pm 2.1\%$ and 4.4% respectively for the RMST. The spread of the 1000 size distributions satisfy the synthetic measurements and the mean of these size distributions satisfy the "true" extinctions to within 4.4% clearly illustrating the ambiguous nature of the inverse problem as the retrieved mean solution hardly resembles the model size distribution which would not be known in practice. Figure 3b shows the results for Model 9. Both procedures recover the slope of the inherent size distribution up to particle sizes near $0.7 \mu\text{m}$. The contribution to the total extinction for particles $> 1.0 \mu\text{m}$ is $< 1\%$ for all channels in both Models 4 and 9 and is $< 2\%$ for particles $< 0.1 \mu\text{m}$.

The good recovery of the aerosol size distribution is interesting but it is only a step before the retrieval of the aerosol characteristics that we are mostly concerned with. Tables 2a and 2b summarize the results of the estimated errors on surface area, volume and effective radius obtained

applying the RMST and the CLI methods respectively. The two retrieval techniques lead to a similar total error (R^*) for the surface area (~25%) and the volume (~12%), while the RMST has better results than the CLI for the effective radius retrieval (14% against 19%). For the effective radius which is related to the ratio of the third moment to the second moment (see Eq. 20), the errors on the surface area and the volume tend to cancel out very well for the RMST while this is not so obvious for the CLI. Bad results are obtained for Models 3, 4 and 9 (one of the two modified gamma size distributions) by the two methods. The examination of Figures 2, 3, and 4a and Table 2 shows that this is due to the R_{min} selected for both methods and the location of the smaller mode of the model size distribution. The choice of R_{min} for either method is not low enough to enable a good retrieval of the smaller mode or to measure the relative contribution of these particles below R_{min} to the specific aerosol characteristic. The location of these smaller modes is in the area believed to be below the sensor range of the SAGE III instrument. The importance of choosing the radii limits in the inversions have been well documented by many investigators. More appropriate size ranges could be found for any single model considered in this study. For instance, Fig. 4a shows results for Model 3 in the pre-mentioned size ranges while Fig. 4b show the results obtained in the following size ranges; 0.10-0.82 μm for the RMST (12 size bins) and 0.12-1.25 μm for the CLI. The total errors for the surface area, volume, and effective radius are 12.5, 8.3, and 5.7% respectively for the RMST and 24.2, 9.9, and 17.0% respectively for the CLI. Although the quality of the retrieval depends on the range of radii considered, the optimal range is strongly dependent on the form of the size distribution. For the purposes of this study, it was deemed not practical to seek the best range for each model but to choose a size range that was uniformly adapted for all ten models (i.e. 0.10-1.00 μm for the RMST and 0.13-1.20 μm for the CLI).

Up to now, we have only discussed on the quality of the inversion through the surface area, volume and effective radius retrievals. Hansen and Travis (1974) characterized an aerosol size distribution by both the effective radius (R_e) and the effective variance, which is a measure of the width of a unimodal size distribution and can give information on the dispersion of the particle

radii for a multimodal size distribution, for use in radiative forcing models. The effective variance (v_e) can be calculated by

$$v_e = \frac{\int_0^{\infty} (r - R_e)^2 \pi r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr}{R_e^2 \int_0^{\infty} \pi r^2 \frac{dN(r)}{dr} dr} = \frac{M_2 M_4}{M_3^2} - 1 \quad (23)$$

Attempts to calculate reasonable values for the fourth moment (M_4) are successful as the R^* values are approximately 10% for both techniques. Nevertheless, the errors of the retrieved moments tend to substantially propagate in the calculation of the effective variance and lead to unusable values. Livingston and Russell (1989) used a form of the PCA method and assumed a lognormal size distribution in their retrievals and were able to retrieve reasonable effective variances from only the synthetic SAGE II measurements that were generated from lognormal models. Thomason and Poole (1993) used the PCA method on SAGE II measurements and noted that aerosol characteristics that are sensitive to particles at either extreme of the aerosol size distribution such as particle number concentrations, mean radius, and higher order moments (≥ 4) are strongly dependent on *a priori* assumptions of the shape of the underlying size distributions. Ben-David et al. (1988) suggested that the retrieval of these characteristics may be more sensitive to these assumptions than the actual data themselves. The external constraints imposed on the retrievable size range in both techniques in combination with the fact that these methods do not assume any functional form prevents the reliable characterization of effective variances from the SAGE III system.

4.2. Inversion from Seven Wavelengths

In this section we investigated what kind of information is brought by each specific channel and analyzed the sensitivity of each algorithm to the number of optical data used in the inversions. We removed an extinction coefficient and performed the inversion taking into account the seven remaining extinction coefficients. For continuity and comparative purposes, this is done with the same 1000 simulated measurements per model to obtain estimates of the uncertainties for all

calculated parameters. It is noteworthy to point out that the results when excluding the $0.385 \mu\text{m}$ channel is comparable to investigating the performance of the two algorithms in retrieving aerosol information at altitudes down to approximately 10 km based on SAGE II history. The extreme wavelengths ($0.385 \mu\text{m}$ and $1.55 \mu\text{m}$) are considered separately because they are respectively planned to provide information on the smallest or on the largest particles (see Figures 1a and 1b).

Figures 5a and 5b show the inversion results for Model 5 from the inversion of all eight channels and seven channels excluding the $1.0195 \mu\text{m}$ channel respectively. The large particle mode is generally well recovered by both procedures. As previously shown in Fig. 2, it is very difficult to infer bimodality with confidence based solely on the results of the two methods due primarily to the location of the small mode radius below R_{min} . There is also ambiguity in the bimodality of the results obtained by both techniques as the minimum between the two modes is slightly shifted towards the larger particle end of the size spectrum (this can also be seen in the 8 channel retrievals). The slope at the larger particle end is not well resolved beyond about $1.0 \mu\text{m}$ for both procedures. Note the large spread of the error bars near the smaller end of the particle size spectrum and in the minimum between the two maxima for both techniques. The larger particles contribute more to the extinction spectrum for this model as the relative contribution to the total extinction of the smaller particles $< 0.2 \mu\text{m}$ is $< 2\%$ and 3% for the 0.450 and $0.385 \mu\text{m}$ channels respectively and $< 1\%$ for the remaining channels. The averaged D^* is $10.4\% \pm 2.6\%$ and the *rms* value between the calculated and true extinctions is 2.8% for the eight channel retrieval and $10.6\% \pm 2.9\%$ and 2.9% respectively for the seven channel retrieval.

Figure 6a shows the estimated RMST (top frame) and CLI (bottom frame) total errors of the derived aerosol characteristics for Model 10 as a function of excluded channel. The results for this model illustrate the dependence of the two techniques on the smallest and largest channels. Figure 6b shows the RMST (top frame) and CLI (bottom frame) R^* values of the derived aerosol characteristics also as a function of the excluded channel. The overall results are summarized in tables 3a-b and 4a-b. Removing the shortest channel $0.385 \mu\text{m}$ does not change the RMST values much while it significantly changes the CLI results, degrading the inversion (by about 6-8%).

These different behaviors are related to the different radius ranges used in the retrievals as previously discussed. The retrieval of aerosol characteristics from the inversion of synthetic measurements of the SAGE III system excluding the 1.550 μm channel is also done to investigate the effects of adding 3 additional channels between 0.521 and 1.0195 μm . Excluding the largest channel lead to a degradation of the volume ($\sim 10\%$) and effective radius ($\sim 3\%$) in the CLI results. Results for the surface area are slightly improved (by about 1-3%). The lowest and longest wavelengths are needed for the CLI to improve the recovery of the aerosol characteristics. The CLI method is improved by removing any of the other channels since that corresponds to the removal of a coarse radius interval so that the number of particles within each other bin is larger. This improvement is noticeable in particular with the surface area and the effective radius in most cases. In contrast, the removal of the other channels is less important for the RMST, in the sense that the three characteristics are retrieved with about the same accuracy, on average, as those retrieved with eight wavelengths. These RMST results are consistent with those determined by Steele and Turco (1997). They determined that the inclusion of extra measurements at wavelengths between 0.525 and 1.020 μm does not add additional information to the retrievals in the presence of measurement errors in the SAGE II system. The CLI volume retrievals are, on average, more accurate than the RMST volume retrievals when excluding the intermediate channels while the opposite is true for the effective radius retrievals. Both methods retrieve the surface areas with about the same accuracy.

4.3. Inversion from the Six Largest Wavelengths

The performance of the two algorithms in retrieving aerosol information from the six largest wavelengths is investigated. The practical considerations for this include the prospects of studying aerosol characteristics in the lower stratosphere and portions of the cloud-free troposphere at altitudes from about 6 to 10 km. SAGE III data will only be available at wavelengths greater than about 0.521 μm at those levels. The two methods are applied to the exact set of simulated measurements used throughout this study. Tables 5a and 5b list the estimated errors of the

retrieved characteristics from the six wavelength retrievals. The results from the eight wavelength retrievals listed in Tables 2a-b is compared here as well. Results derived from the RMST, although of worst quality for the surface area and the effective radius in comparison with the eight or seven wavelength retrievals, are still useful as the R^* values are 31.9, 14.5, and 19.9% for the surface area, volume and effective radius respectively, while the CLI exhibits very large errors especially for the surface area.

Figures 7a and 7b show the size distributions retrieved from the eight and the six largest channels respectively for Model 7. As in the case of the results for Model 4 (see Fig. 4a), neither algorithm retrieves a size distribution that resembles Model 7. In fact, both algorithms seem to have produced a maximum where the minimum is actually located (i.e. between the two modes of Model 7). The average D^* is $8.3\% \pm 2.9\%$ and the *rms* value between the extinction calculated from the average size distribution and the true extinctions is 3.0% for the eight channel retrieval and $6.9\% \pm 1.5\%$ and 3.3% respectively for the six channel retrieval. These results also clearly illustrate the ambiguous nature of the inverse problem.

4.4 Retrieval of Extinction Coefficients

The interpolation/extrapolation of the excluded extinction coefficient is performed using Eqs. (5) and (11) for the RMST and CLI methods respectively with the mean retrieved size distributions inverted from the remaining seven channels to objectively determine the quality of the retrieved size distributions. The estimated total errors between the calculated and model extinction coefficients are listed in Tables 6a-b along with the corresponding R^* values. The random errors have a higher contribution to the total errors at each channel except the 1.550 model for the RMST results as the *rms* averages of the systematic errors varied from $< 7\%$ at $0.385 \mu\text{m}$, to $< 6\%$ at 0.676 and $0.756 \mu\text{m}$, to $< 5\%$ at 0.869 , to $< 3\%$ at 0.521 and $1.0195 \mu\text{m}$, and $< 2\%$ at $0.450 \mu\text{m}$. The extrapolation of the extinction coefficient at the $1.550 \mu\text{m}$ channel was not satisfactory for seven of the models considered in this study as the *rms* average for the systematic error was near 18%. These results are consistent with the findings of Spinhrne and King (1985). They applied

different combinations of solar radiometer channels in the visible and near infrared to retrieve columnar size distributions of the post-El Chichon aerosol from 1982 and 1983. With spectral optical depth measurements available only from 0.440 to 0.871 μm in some instances, they suggested that there exists sufficient latitude in the retrieved size distribution at a radius of 1.0 μm that it is not only fairly easy to obtain a size distribution which is capable of reproducing the measurement, but that the same size distribution can also predict the optical depths in the near infrared as well where there is no measurement. They determined that this extrapolation is naturally less reliable the further it is extended from the wavelength interval used in deriving the size distribution. Therefore, unsatisfactory results for extrapolating the 1.550 μm extinction except for Models 2, 5 and 8 is mainly due to the small contribution of particles near and above 1.0 μm to the total extinction and the location of R_{max} .

A good exercise to appreciate the efficiency of the two inversion methods consists in computing the aerosol extinction coefficient at any other wavelength from the retrieved size distribution and in comparing the result to the true value derived from equations (1-2). This step is a very useful one because for experiments such as SAGE III, the contribution of the aerosol has to be removed from the measurements at specific channels to enable the accurate determination of gaseous species. For SAGE III, the ozone and water vapor channels are located at about 0.600 and 0.940 μm respectively. To illustrate this capability, we used the eight wavelength retrievals for the RMST and the seven wavelength retrievals for the CLI (excluding the 1.0195 μm channel due to the improvement of the retrieval of the aerosol characteristics without this channel). The interpolation of these extinction coefficient is performed using Eqs. (5) and (11) for the RMST and CLI methods respectively. The refractive indices are linearly interpolated (1.4527 at 0.600 μm and 1.4452 at 0.940 μm with negligible complex components) from the data compiled by Russell et al. (1996). These results are summarized in Table 7. Both techniques are able to interpolate the extinction due to aerosol at the water vapor channel more accurately than at the ozone channel. The systematic errors for the water vapor channel are near or less than 5% for both techniques except

for Model 4 in the CLI estimate. The systematic errors for the ozone channel are near or less than 6.5% for both techniques except for Models 2, 4 and 5 in the CLI estimate.

The sensitivity of calculating the extinction due to aerosol at the ozone and water vapor channels and aerosol properties is investigated for the five wavelength retrievals using the 0.385, 0.521, 0.756, 1.0195, and 1.550 μm channels. These retrievals are performed with the RMST algorithm. The retrievals are done with the exact same set of simulated SAGE III channels. With respect to the eight channel retrievals, the R^* values appreciably increased for the surface area only (from 25.3 to 22.3%). The interpolation of the extinction due to aerosol at the ozone channel as the R^* values degraded from 11.4 to 13.4% and 7.5 to 9.7% for the water vapor channel.

5. Conclusions

We investigated the retrieval of aerosol properties and the extinction due to aerosols at the ozone and water vapor channels from simulated measurements at variations of the planned SAGE III channels. The aerosol quantities surface area, volume, and effective radius are retrieved through the application of two distinct algorithms in the form of the RMST and CLI methods. Ten analytical size distributions fitted to aerosol populations measured in situ are used with a Mie scattering code in conjunction with a Monte Carlo technique to simulate SAGE III measurements. These models consist of variations of pre- and post-volcanic size distributions that exhibit various spectral shapes. Neither the complex components nor the uncertainties of the refractive indices are considered. We developed an objective scheme to estimate the systematic, random, and total uncertainties of each retrieved quantity that considers the contribution of the particles that are outside of the retrieved size range. The following conclusions result from this study:

- 1.) The RMST technique is less sensitive than the CLI technique to the number of optical data used in retrieving the aerosol characteristics. The addition of extra channels (i.e. > 8) will not improve the CLI results.

- 2.) In the seven to eight channel retrievals, both algorithms can obtain composite total errors (R^*) of ~25% for surface area, ~12% for volumes, and < 20% for the effective radius though both inversion techniques are applied in different size ranges.

- 3.) The inversion of the six largest channels lead to RMST R^* values of ~32, ~15 and ~20% and CLI R^* values of ~48, ~22, and ~31% for the surface area, volume, and effective radius respectively. These results suggest that the application of the RMST may be more advantageous than the application of the CLI to infer particle information from the six largest channels since the RMST method retrieves all of the aerosol characteristics with significantly lower uncertainties than the CLI method.

- 4.) The prediction of the excluded extinction coefficient by both methods at the 0.450, 0.521, 0.676, 0.756, 0.869, and 1.0195 μm channels are successful from the size distributions retrieved from the extinction coefficients of the remaining seven SAGE III channels within their assigned measurement uncertainties. The extrapolation at the 0.385 and 1.550 μm channels are unsatisfactory except for three of the models considered mainly due to the small contribution to the total extinction for particles near 1.0 μm for these particular models. These results exhibit the quality of the derived size distributions.

- 5.) The calculated extinction due to aerosols at the water vapor channel of 0.940 μm and the ozone channel at 0.600 μm respectively produced R^* values of < 10 and < 15% for both techniques. RMST retrievals with just five wavelengths produced R^* values that were approximately 2% higher than the eight channel results.

- 6.) The RMST and CLI algorithms do not perform satisfactory retrievals of size distributions from extinction spectra generated from analytical expressions similar to Models 3, 4, 7, and 9

though the retrieved size distributions produce calculated extinctions that are in agreement with the simulated measurements.

7.) Either of the applied size ranges is sufficient to retrieve the microphysical characteristics for the pre- and post-volcanic aerosols. The full set of SAGE III channels is not required for successful retrieval of the aerosol characteristics for these types of aerosols.

8.) We have shown that the application of either technique, when properly tailored to the SAGE III system, can not only obtain reliable aerosol information, but can reasonably estimate the extinction due to aerosols at other wavelengths as well.

Acknowledgments: This work was supported by NASA Langley Research Center under contract NAS1-18944 and by CNES under contract 96CNES/0277. One of us (V.K.S.) would like to thank M. Patrick McCormick for getting him interested in the SAGE program. The French Team would like to thank M. Claude Devaux for helpful discussions and comments.

References

- Anderson, J. and V.K. Saxena, Evolution of Mt. Pinatubo aerosol over Antarctica inferred from SAGE II extinction measurements, *Atmos. Environ.*, **30**, 1797-1804, 1996a.
- Anderson, J. and V.K. Saxena, Temporal changes of the Mt. Pinatubo aerosol characteristics over northern mid-latitudes derived from SAGE II extinction measurements, *J. Geophys. Res.*, **101**, 19455-19463, 1996b.
- Ben-David, A., B. Herman, and J. Reagan, Inverse problem and the pseudoempirical orthogonal function method of solution, 1, Theory, *Appl. Opt.*, **27**, 1235-1242, 1988.
- Brognez, C., and J. Lenoble, Size distribution of stratospheric aerosols from SAGE II multiwavelength extinction's, *Aerosols and Climate*, 305-311, P. V. Hobbs and M. P. McCormick, eds. (Deepak, Hampton VA, 1988).

- Brogniez, C., et al., Second European stratospheric arctic and midlatitude experiment campaign: correlative measurements of aerosol in the northern polar atmosphere, *J. Geophys. Res.*, **102**, 1489-1494, 1997.
- Cazier, L., C. Brogniez, J. Lenoble, and C. Devaux, Inference of aerosol size distribution, surface area, and volume density from multispectral extinction measurements, In *Aerospace Remote Sensing III*, London, 22-26 September, to appear in proceedings Europto Series, 1997.
- Deirmendjian, D., Electromagnetic scattering on spherical polydispersions, American Elsevier, 290 pp., 1969.
- Deshler, T., B.J. Johnson, and W.R. Rozier, Balloonborne measurements of Pinatubo aerosol during 1991 and 1992 at 41° N: vertical profiles, size distribution, and volatility, *Geophys. Res. Lett.*, **20**, 1435-1438, 1993.
- Goodman, J., R.F. Pueschel, G.V. Ferry, and S. Verma, Evolution of Pinatubo aerosol near 19 km altitude over western North America, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 1129-1132, 1994.
- Hansen, J.E., and L.D. Travis, Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. Rev.*, **16**, 527-610, 1974.
- Heintzenberg, J., H. Muller, H. Quenzel, and E. Thomalla, Information content of optical data with respect to aerosol properties: numerical studies with a randomized minimization-search-technique inversion algorithm, *Appl. Opt.*, **20**, 1308-1315, 1981.
- King, M.D., Sensitivity of constrained linear inversion to the selection of the Lagrange multiplier, *J. Atmos. Sci.*, **39**, 1356-1369, 1982.
- King, M.D., D.M. Byrne, B.M. Herman, and J.A. Reagan, Aerosol size distributions obtained by inversion of spectral optical depth measurements, *J. Atmos. Sci.*, **35**, 2153-2167, 1978.
- Lin, N.-H., and V.K. Saxena, Characteristics of Antarctic stratospheric aerosols during the 1987 ozone depletion episode based on SAGE II satellite observations, *J. Geophys. Res.*, **97**, 7635-7649, 1992.

- Lin, N.-H., and V.K. Saxena, Changes in stratospheric aerosol parameters over 105-135° longitude due to eruption of Mount Pinatubo, *J. Aerosol Sci.*, **28**, 697-712, 1997.
- Livingston, J.M., and P.B. Russell, Retrieval of aerosol size distribution moments from multiwavelength particulate extinction measurements, *J. Geophys. Res.*, **94**, 8425-8433, 1989.
- Oberbeck, V.R., E. F. Danielson, K.G. Snetsinger, G.V. Ferry, W.Fong, and D.M. Hayes, Effect of the eruption of El Chichon on stratospheric aerosol size and composition, *Geophys. Res. Lett.*, **10**, 1021-1024, 1983.
- Palmer, K.F., and D. Williams, Optical constants of sulfuric acid: Applications to clouds of Venus? *Appl. Opt.*, **14**, 208-219, 1975.
- Pueschel, R.F., P.B. Russell, D.A. Allen, G.V. Ferry, and K.G. Snetsinger, Physical and optical properties of the Pinatubo volcanic aerosol: Aircraft observations with impactors and a Sun-tracking photometer, *J. Geophys. Res.*, **99**, 12915-12922, 1994.
- Russell, P.B., et al., Global to microscale evolution of the Pinatubo aerosol, derived from diverse measurements and analyses, *J. Geophys. Res.*, **101**, 18745-18763, 1996.
- Saxena, V.K., J. Anderson and N.-H. Lin, Changes in antarctic stratospheric aerosol characteristics due to volcanic eruptions as monitored by SAGE II satellite, *J. Geophys. Res.*, **100**, 16735-16751, 1995.
- Shettle, E.P., and R.W. Fenn, Optical propagation in the atmosphere, Electromagnetic Wave Propagation Panel Symposium, Lyngby, Denmark, 27-31 October 1975, AGARD-CP-183, NTIS, AD A028-615, 1976.
- Solomon, S., R.W. Portmann, R.R. Garcia, L.W. Thomason, L.R. Poole, and M.P. McCormick, The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northern midlatitudes, *J. Geophys. Res.*, **101**, 6713-6727, 1996.

- Spinhirne, J.D. and M.D. King, Latitudinal variation of spectral optical thickness and columnar size distribution of the El Chichon stratospheric aerosol layer, *J. Geophys. Res.*, **90**, 10607-10619, 1985.
- Steele, H.M. and P. Hamill, Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulfuric acid-water droplets in the stratosphere, *J. Aerosol Sci.*, **12**, 517-528, 1981.
- Steele, H.M. and R.P. Turco, Retrieval of aerosol size distributions from satellite extinction spectra using constrained linear inversion, *J. Geophys. Res.*, **102**, 16737-16747, 1997.
- Thomason, L.W., A diagnostic stratospheric aerosol size distribution inferred from SAGE II measurements, *J. Geophys. Res.*, **96**, 22501-22508, 1991.
- Thomason, L.W. and M.T. Osborn, Lidar conversion parameters derived from SAGE II measurements, *Geophys. Res. Lett.*, **19**, 1655-1658, 1992.
- Thomason, L.W. and L.R. Poole, Use of stratospheric aerosol properties as diagnostics of Antarctic vortex processes, *J. Geophys. Res.*, **98**, 23003-23012, 1993.
- Twomey, S., On the numerical solution of Fredholm integral equations of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature, *J. Assoc. Comput. Mach.*, **10**, 97-101, 1963.
- Wang, P.H., M.P. McCormick, T.J. Swissler, M.T. Osborn, W.H. Fuller, and G.K. Yue, Inferences of stratospheric aerosol composition and size distribution from SAGE II satellite measurements, *J. Geophys. Res.*, **94**, 8435-8446, 1989.
- Wang, P.H., G.S. Kent, M.P. McCormick, L.W. Thomason, and G.K. Yue, Retrieval analysis of aerosol-size distribution with simulated extinction measurements at SAGE III wavelengths, *Appl. Opt.*, **35**, 433-440, 1996.
- Yue, G.K., M.P. McCormick, and W.P. Chu, Retrieval of composition and size distribution of stratospheric aerosols with the SAGE II satellite experiment, *J. Ocean. Tech.*, **3**, 371-380, 1986.

Yue, G. K., J. Lu, V. A. Mohnen, P.-H. Wang, V. K. Saxena, and J. Anderson, Retrieving aerosol optical properties from moments of the particle size distribution, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 651-654, 1997.

Table 1a. Model Size Distribution Parameters and Corresponding Microphysical Characteristics.

Model	Lognormal Parameters						Characteristic		
	N_1	σ_{g1}	r_{g1}	N_2	σ_{g2}	r_{g2}	S	V	R_e
1	4.50	1.68	0.12	0.90	1.26	0.49	4.42	0.66	0.46
2	5.10	1.65	0.19	2.80	1.17	0.59	16.69	3.14	0.57
3	0.96	1.80	0.09	NA	NA	NA	0.20	0.01	0.21
4	15.87	1.54	0.08	4.26	1.36	0.27	6.57	0.62	0.28
5	1.25	1.58	0.13	1.28	1.26	0.56	6.02	1.23	0.61
6	9.05	1.25	0.14	1.98	1.35	0.35	6.11	0.66	0.33
7	5.25	1.38	0.25	0.56	1.17	0.53	7.15	0.94	0.39
8	2.10	1.50	0.33	3.10	1.30	0.60	20.09	4.49	0.67

Model	Modified Gamma Parameters				Characteristic		
	A	α	b	γ	S	V	R_e
9	324.00	1.00	18.00	1.00	0.23	0.02	0.22
10	50000.0	2.00	20.00	1.00	4.71	0.39	0.25

The units for R_e and r_{gi} is μm , for N_i is cm^{-3} , for S is $\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$, and for V is $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$.

Table 1b. Refractive Index and the Maximum Assigned Measurement Uncertainty for Each SAGE III Aerosol Channel.

Wavelength (μm)	Refractive Index	Uncertainty (%)
0.385	1.4697	25
0.450	1.4548	25
0.521	1.4542	20
0.676	1.4520	20
0.756	1.4494	15
0.869	1.4473	15
1.0195	1.4430	10
1.550	1.4300	10

Table 2a. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 8 Wavelength Retrievals Applying the RMST Method.

RMST Method									
9 bins, $R_{min} = 0.1 \mu m$, $R_{max} = 1.0 \mu m$									
Model	Surface Area			Volume			Effective Radius		
	Sys	Ran	$\frac{\Delta S}{S}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta V}{V}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta R_e}{R_e}$
1	-4.4	7.5	11.9	-1.2	3.9	5.1	3.4	5.2	8.6
2	-4.3	8.3	12.6	-2.0	4.8	6.8	2.6	5.7	8.3
3	-15.9	10.5	26.4	-8.4	5.9	14.3	7.0	5.7	12.7
4	-12.8	25.4	38.2	-7.1	11.0	18.1	8.0	12.7	20.7
5	-4.0	8.5	12.5	-3.7	5.4	9.1	0.6	5.8	6.4
6	-13.3	12.8	26.1	-6.1	5.3	11.4	7.3	7.9	15.2
7	3.7	10.7	14.4	-0.5	4.5	5.0	-3.6	6.9	10.5
8	-1.3	7.3	8.6	-6.0	4.7	10.7	-4.3	5.3	9.6
9	-26.0	23.0	49.1	-13.9	11.2	25.1	11.9	11.7	23.6
10	3.4	17.1	20.5	-1.5	8.4	9.9	-3.3	10.2	13.5
R^*			25.3			13.0			13.9

Table 2b. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 8 Wavelength Retrievals Applying the Constrained Linear Inversion Method.

Constrained Linear Inversion Method									
7 bins, $R_{min} = 0.13 \mu m$, $R_{max} = 1.20 \mu m$									
Model	Surface Area			Volume			Effective Radius		
	Sys	Ran	$\frac{\Delta S}{S}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta V}{V}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta R_e}{R_e}$
1	9.9	13.1	23.0	2.1	5.1	7.2	-7.3	10.7	18.0
2	14.1	9.8	23.9	2.3	4.9	7.2	-12.9	8.8	21.6
3	-14.4	17.1	31.4	-3.5	8.8	12.3	10.9	9.5	20.4
4	15.1	19.0	34.1	6.7	9.6	16.3	-7.4	12.9	20.3
5	12.3	7.1	19.4	1.0	5.2	6.3	-12.5	6.0	18.5
6	7.3	15.9	23.2	1.9	6.3	8.2	-4.0	11.1	15.1
7	20.6	16.2	36.9	5.7	6.3	12.0	-16.7	11.6	28.3
8	12.4	4.4	16.8	-0.1	5.9	6.0	-14.2	5.2	19.4
9	4.8	23.4	28.2	3.3	13.5	16.8	1.2	12.2	13.4
10	6.4	15.5	21.9	3.2	7.8	11.0	-2.2	8.3	10.5
R^*			26.6			11.0			19.1

Table 3a. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 7 Wavelength Retrievals Applying the RMST Method.

RMST Method												
9 bins, $R_{min} = 0.1 \mu m$, $R_{max} = 1.0 \mu m$												
<u>Excluded Channel</u>												
Model	0.385 μm			0.450 μm			0.521 μm			0.676 μm		
	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	10.6	4.7	7.6	11.2	5.0	8.0	11.8	5.0	8.5	11.5	4.9	8.4
2	12.0	7.1	7.5	12.4	7.1	7.5	12.5	6.9	8.0	12.6	6.8	8.2
3	18.9	11.3	9.0	23.7	13.2	11.4	26.9	14.7	12.6	26.4	14.8	11.8
4	35.6	15.3	17.1	31.4	15.8	19.3	37.4	17.8	20.7	36.6	17.6	20.1
5	10.9	7.8	7.6	11.8	9.5	7.6	12.7	9.6	6.8	12.7	9.0	6.9
6	25.4	12.0	15.8	23.4	10.5	13.9	25.4	11.0	14.9	24.9	11.0	14.5
7	27.1	8.0	18.0	17.7	5.2	12.7	15.5	4.9	11.0	15.2	4.9	11.1
8	10.5	10.1	12.7	10.1	10.5	12.3	9.6	11.6	10.7	8.9	10.3	9.6
9	40.2	23.0	21.7	40.8	22.5	21.2	47.7	25.2	23.0	46.6	24.5	22.4
10	33.7	15.1	21.4	24.5	9.3	15.5	20.4	10.6	13.2	19.6	9.9	13.8
R^*	25.0	12.5	14.9	22.8	12.0	13.7	25.0	13.1	13.9	24.4	12.8	13.6

Table 3b. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 7 Wavelength Retrievals Applying the Constrained Linear Inversion Method.

Constrained Linear Inversion Method												
6 bins, $R_{min} = 0.13 \mu m$, $R_{max} = 1.20 \mu m$												
<u>Excluded Channel</u>												
Model	0.385 μm			0.450 μm			0.521 μm			0.676 μm		
	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	34.6	11.5	25.9	17.0	6.3	12.2	18.0	6.2	13.6	17.1	5.9	13.0
2	29.3	8.3	25.5	22.7	6.1	22.7	22.3	7.3	18.3	20.9	5.7	18.8
3	33.5	14.0	22.1	34.7	13.6	23.4	34.5	13.8	22.0	34.9	14.0	22.6
4	47.4	25.2	26.7	30.4	15.6	16.7	26.4	13.3	14.6	26.9	13.0	16.1
5	30.7	8.5	32.6	17.6	6.0	17.2	22.3	9.9	17.3	17.3	7.5	16.5
6	32.0	13.8	17.3	18.3	7.4	10.4	17.4	6.6	11.2	17.4	6.5	11.2
7	44.9	16.9	30.6	33.2	11.3	23.7	31.0	10.5	23.8	31.9	10.6	24.6
8	32.3	6.7	36.6	17.2	6.2	21.7	16.8	15.4	20.0	14.9	7.5	18.2
9	38.1	24.2	16.6	28.5	18.1	18.6	25.3	15.0	16.8	23.5	14.6	17.0
10	32.4	17.8	13.5	20.1	10.8	10.7	17.1	9.2	9.6	17.8	9.3	9.4
R^*	36.0	15.9	25.2	24.9	11.0	18.4	23.8	10.4	17.3	23.2	10.0	17.3

Table 4a. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 7 Wavelength Retrievals Applying the RMST Method.

RMST Method												
9 bins, $R_{min} = 0.10 \mu m$, $R_{max} = 1.0 \mu m$												
<u>Excluded Channel</u>												
Model	<u>0.756 μm</u>			<u>0.869 μm</u>			<u>1.0195 μm</u>			<u>1.550 μm</u>		
	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	11.5	5.0	8.4	11.5	5.2	8.2	11.8	5.5	8.5	12.3	11.3	15.1
2	12.8	6.8	8.6	12.8	6.9	8.2	12.8	7.3	8.3	12.1	10.9	13.0
3	27.2	15.2	12.5	27.2	15.1	12.8	27.4	15.1	13.2	29.0	11.3	17.1
4	37.1	17.8	20.4	37.6	18.0	20.7	39.3	18.4	21.5	34.3	12.4	24.4
5	12.7	9.1	7.0	12.8	9.3	6.6	12.8	9.6	6.2	12.9	13.3	8.8
6	24.9	11.2	14.6	25.5	11.4	14.9	26.4	11.7	15.5	26.0	7.5	20.3
7	15.6	5.1	11.7	15.0	5.2	11.4	14.1	5.4	10.7	16.4	13.2	9.7
8	8.7	10.3	9.8	8.5	10.3	9.6	8.6	10.7	9.5	9.8	18.6	14.3
9	47.4	24.9	22.9	48.9	25.3	23.9	51.2	26.0	25.1	42.8	16.9	25.7
10	19.7	10.0	14.1	20.0	10.2	13.9	19.8	10.7	13.8	16.2	10.9	8.3
R ²	24.8	13.0	13.9	25.2	13.1	14.1	26.0	13.5	14.4	23.7	13.0	16.7

Table 4b. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 7 Wavelength Retrievals Applying the Constrained Linear Inversion Method.

Constrained Linear Inversion Method												
6 bins, $R_{min} = 0.13 \mu m$, $R_{max} = 1.20 \mu m$												
<u>Excluded Channel</u>												
Model	<u>0.756 μm</u>			<u>0.869 μm</u>			<u>1.0195 μm</u>			<u>1.550 μm</u>		
	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$	$\frac{\Delta S}{S}$	$\frac{\Delta V}{V}$	$\frac{\Delta Re}{Re}$
1	17.4	6.1	13.4	17.3	5.9	13.3	17.2	6.1	12.9	16.6	18.2	15.9
2	20.8	5.2	19.3	21.0	5.3	19.3	21.4	5.6	19.4	21.7	15.7	18.8
3	33.4	13.1	21.5	34.3	13.5	22.0	34.3	13.6	21.7	32.9	12.0	22.8
4	28.8	13.7	16.8	26.5	12.8	15.9	25.3	12.3	14.9	30.4	24.6	13.8
5	18.1	8.1	17.7	18.1	7.9	17.4	18.1	7.3	17.2	19.4	16.5	23.2
6	17.8	6.6	11.4	17.0	6.4	10.9	16.3	6.2	10.6	16.3	15.2	17.0
7	32.1	10.7	24.8	31.7	10.5	24.4	31.3	10.8	24.2	32.1	20.8	24.0
8	15.2	8.1	18.6	15.0	8.2	18.5	15.3	6.8	17.8	16.3	21.1	31.5
9	26.4	14.3	17.7	26.9	14.2	18.1	25.5	14.3	17.9	29.3	22.4	22.7
10	18.6	9.3	9.5	17.4	9.1	9.9	16.7	8.8	10.4	21.7	15.9	14.0
R ²	23.7	10.0	17.6	23.4	9.9	17.5	23.0	9.7	17.3	24.5	18.6	21.0

Table 5a. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 6 Wavelength Retrievals Applying the RMST Method.

RMST Method									
9 bins, $R_{min} = 0.1 \mu m$, $R_{max} = 1.0 \mu m$									
Model	Surface Area			Volume			Effective Radius		
	Sys	Ran	$\frac{\Delta S}{S}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta V}{V}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta R_e}{R_e}$
1	8.5	15.0	23.5	2.3	5.8	8.1	-5.2	10.2	15.4
2	3.0	12.0	15.0	-0.2	5.3	5.5	-2.3	8.4	10.7
3	1.6	9.9	11.5	0.2	6.4	6.6	-1.0	4.1	5.1
4	25.1	29.5	54.6	11.1	16.1	27.2	-13.1	16.5	29.6
5	4.7	11.9	16.6	-0.9	5.6	6.5	-4.9	8.2	13.1
6	6.3	23.8	30.1	0.3	10.7	11.0	-2.6	15.4	18.0
7	20.3	23.8	44.1	4.9	10.3	15.2	-15.3	14.5	29.8
8	8.2	10.7	18.9	-3.0	5.0	8.0	-11.3	7.8	19.1
9	8.2	23.9	32.1	2.6	14.4	17.0	-3.1	12.3	15.4
10	29.4	12.4	41.8	13.9	7.9	21.8	-21.0	5.9	26.9
R*			31.9			14.5			19.9

Table 5b. Estimated Errors (in %) of the Retrieved Aerosol Characteristics from the 6 Wavelength Retrievals Applying the Constrained Linear Inversion Method.

Constrained Linear Inversion Method									
5 bins, $R_{min} = 0.13 \mu m$, $R_{max} = 1.20 \mu m$									
Model	Surface Area			Volume			Effective Radius		
	Sys	Ran	$\frac{\Delta S}{S}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta V}{V}$	Sys	Ran	$\frac{\Delta R_e}{R_e}$
1	24.6	20.6	45.2	8.2	8.2	16.4	-18.4	14.7	33.1
2	24.1	22.4	46.5	6.4	8.8	15.2	-19.2	15.3	34.5
3	-8.7	27.2	35.9	-0.2	15.5	15.7	11.1	13.6	24.7
4	31.7	25.8	57.5	18.8	14.6	33.4	-14.0	16.7	30.7
5	26.9	25.3	52.2	6.6	9.9	16.5	-22.3	17.4	39.7
6	15.0	24.6	39.6	7.1	10.9	18.0	-5.3	16.0	21.3
7	29.0	26.1	55.1	11.4	11.2	22.6	-19.8	16.8	36.6
8	28.0	20.4	48.4	6.4	7.6	14.0	-26.1	15.0	41.1
9	21.1	31.2	52.3	15.0	20.1	35.1	-2.0	17.2	19.2
10	14.2	25.9	40.1	8.6	14.5	23.1	-3.1	12.6	15.7
R*			47.8			22.2			30.8

Table 6a. Estimated Total Error (in %) Between the True and Excluded Extinction Coefficient Calculated from the Size Distribution Retrieved from the Inversion of the Remaining 7 Extinction Coefficients Applying the RMST Method.

Excluded Channel

<u>Model</u>	<u>0.385 μm</u>	<u>0.450 μm</u>	<u>0.521 μm</u>	<u>0.676 μm</u>	<u>0.756 μm</u>	<u>0.869 μm</u>	<u>1.0195 μm</u>	<u>1.550 μm</u>
1	14.8	11.4	9.3	8.8	9.6	7.2	5.6	22.7
2	18.0	16.4	17.5	12.6	12.2	9.8	7.5	20.1
3	19.5	10.3	8.1	10.6	10.1	7.5	5.8	26.5
4	38.6	13.7	13.3	15.7	15.9	13.1	9.6	39.3
5	19.5	16.2	18.4	14.6	13.2	10.6	8.5	14.7
6	23.4	11.0	7.6	10.4	11.4	8.8	6.9	28.6
7	24.7	10.1	7.5	10.1	11.3	9.0	6.3	29.4
8	18.3	13.8	17.6	13.9	11.8	7.4	5.7	21.3
9	22.5	16.3	15.7	14.7	13.9	10.6	9.6	39.2
10	29.9	11.9	11.0	14.8	15.2	11.9	9.6	38.7
R*	23.8	13.3	13.3	12.8	12.6	9.8	7.7	29.3

Table 6b. Estimated Total Error (in %) Between the True and Excluded Extinction Coefficient Calculated from the Size Distribution Retrieved from the Inversion of the Remaining 7 Extinction Coefficients Applying the CLI Method.

Excluded Channel

<u>Model</u>	<u>0.385 μm</u>	<u>0.450 μm</u>	<u>0.521 μm</u>	<u>0.676 μm</u>	<u>0.756 μm</u>	<u>0.869 μm</u>	<u>1.0195 μm</u>	<u>1.550 μm</u>
1	31.0	12.1	16.2	8.7	8.2	6.8	6.7	28.2
2	31.4	16.9	20.6	17.5	14.3	11.7	9.3	19.9
3	18.5	9.5	9.1	8.5	8.3	7.5	6.7	29.6
4	38.5	14.9	17.6	16.7	15.5	13.6	10.9	45.7
5	35.2	16.8	24.0	17.6	13.4	10.7	8.9	22.2
6	27.8	10.6	13.1	9.6	9.7	7.6	7.4	31.3
7	29.4	10.8	13.1	9.9	9.5	7.8	7.0	32.6
8	36.9	11.6	33.5	15.0	10.4	7.6	6.9	30.1
9	31.6	15.5	14.8	14.5	14.2	12.8	10.3	47.8
10	23.6	9.1	9.4	9.7	10.1	9.1	8.1	38.5
R*	30.9	13.1	18.5	13.3	11.7	9.8	8.4	33.7

Table 7. Estimated Errors (in %) Between the True and Calculated Extinction Coefficient at the Ozone and Water Vapor Channels.

Model	RMST						CLI					
	0.600 μm			0.940 μm			0.600 μm			0.940 μm		
	Sys	Ran	Tot	Sys	Ran	Tot	Sys	Ran	Tot	Sys	Ran	Tot
1	-1.4	6.6	8.0	-1.5	3.8	5.3	-3.5	6.9	10.4	-2.1	5.1	7.2
2	-2.0	10.2	12.2	-1.9	5.2	7.1	-7.5	11.0	18.5	-4.5	5.6	10.1
3	-2.8	5.1	7.9	-2.1	3.5	5.6	-2.7	5.4	8.1	-1.9	5.3	7.2
4	-5.8	7.2	13.0	-4.9	5.3	10.2	-8.5	7.9	16.4	-6.6	5.5	12.1
5	-4.3	10.8	15.1	-2.2	5.6	7.8	-8.4	13.7	22.1	-3.6	5.8	9.4
6	-2.8	5.4	8.2	-3.2	3.8	7.0	-4.3	5.8	10.1	-3.3	4.6	7.9
7	-2.6	5.3	7.9	-2.6	4.1	6.7	-4.2	6.3	10.5	-2.8	5.0	7.8
8	-4.8	9.0	13.8	-0.4	5.1	5.5	-6.5	12.8	19.3	-0.8	6.8	7.6
9	-5.6	7.6	13.2	-3.4	5.3	8.7	-6.4	8.2	14.6	-5.2	6.2	11.4
10	-6.1	5.0	11.1	-4.8	4.4	9.2	-3.9	5.6	9.5	-4.0	4.7	8.7
R*			11.4			7.5			14.7			9.1

Figure Captions

- Figure 1. a) The ratio of the 0.385 to the 1.550 μm SAGE III channel kernel functions, and b), the ratio of the 0.521 and 1.550 μm SAGE III channel kernel functions. The dashed lines in each figure represent the external constraints R_{min} ($= 0.1 \mu\text{m}$) and R_{max} ($= 1.25 \mu\text{m}$).
- Figure 2. Top frames, the RMST (circles) and CLI (crosses) retrieved extinction coefficients and bottom frames, the RMST (histogram with ticked error bars) and CLI (circles with error bars without ticks) retrieved size distributions for a) Model 1 and b) Model 6. The dashed line in each figure represents the true model size distribution. The error bars represent $\pm 1\sigma$ of the 1000 individual inversion solutions. The solid line in the top frame of each figure represents the model extinction spectrum. The error bars on the model extinction spectra represent the $\pm 1\sigma$ uncertainties for the corresponding SAGE III channel.
- Figure 3. Same as Figure 2 but for Models 4 and 9.
- Figure 4. The RMST (histogram with ticked error bars) and CLI (circles with error bars without ticks) derived size distributions for Model 3 retrieved between a) 0.1 to 1.0 μm for the RMST, 0.13 to 1.2 for the CLI and b) 0.1 to 0.82 μm for the RMST, 0.12 to 1.25 μm for the CLI. The dashed line in each figure represents the true model size distribution. The error bars represent $\pm 1\sigma$ of the 1000 individual inversion solutions.
- Figure 5. The RMST (histogram with ticked error bars) and CLI (circles with error bars without ticks) derived size distributions for Model 5 retrieved from the inversion of a) all eight channels and b) seven channels excluding the 1.0195 μm channel. The dashed line in each figure represents the true model size distribution. The error bars represent $\pm 1\sigma$ of the 1000 individual inversion solutions.
- Figure 6. a) Total Errors for the RMST (top frame) and CLI (bottom frame) retrieved effective radii (R_e , stars), surface area concentrations (SA, pluses), and volume concentrations (VC, asterisks) for Model 10. b) The root mean square errors (R^*) for the RMST (top frame) and CLI (bottom frame) retrieved effective radii (R_e , stars), surface area concentrations (SA, pluses), and volume concentrations (VC, asterisks).
- Figure 7. The RMST (histogram with ticked error bars) and CLI (circles with error bars without ticks) derived size distributions for Model 7 retrieved from the inversion of a) all eight channels and b) the six largest channels. The dashed line in each figure represents the true model size distribution. The error bars represent $\pm 1\sigma$ of the 1000 individual inversion solutions.

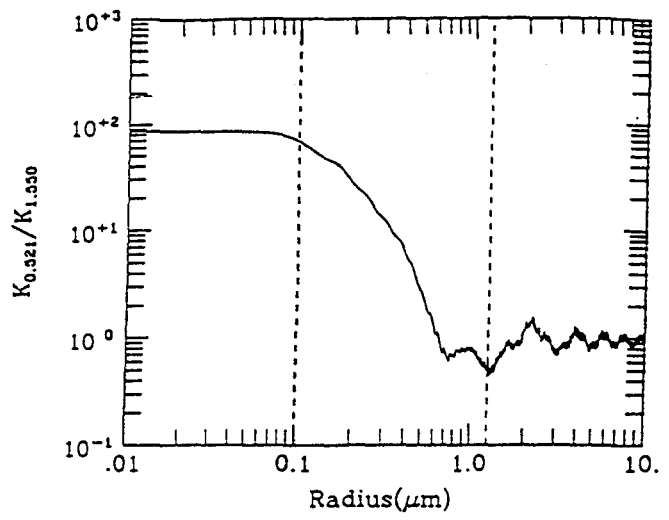
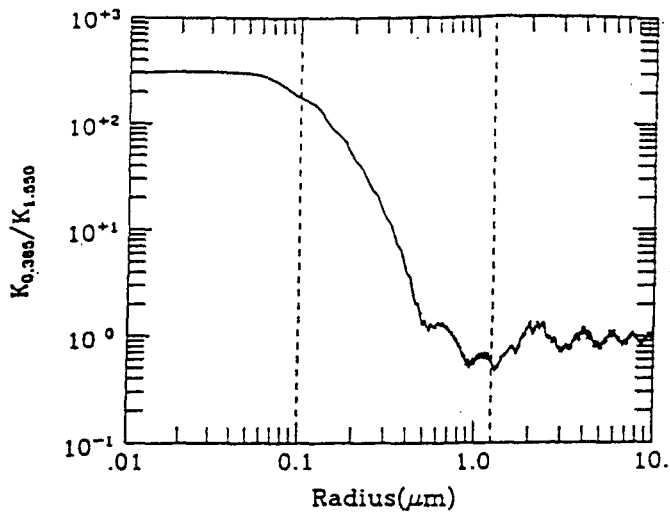


Figure 1.

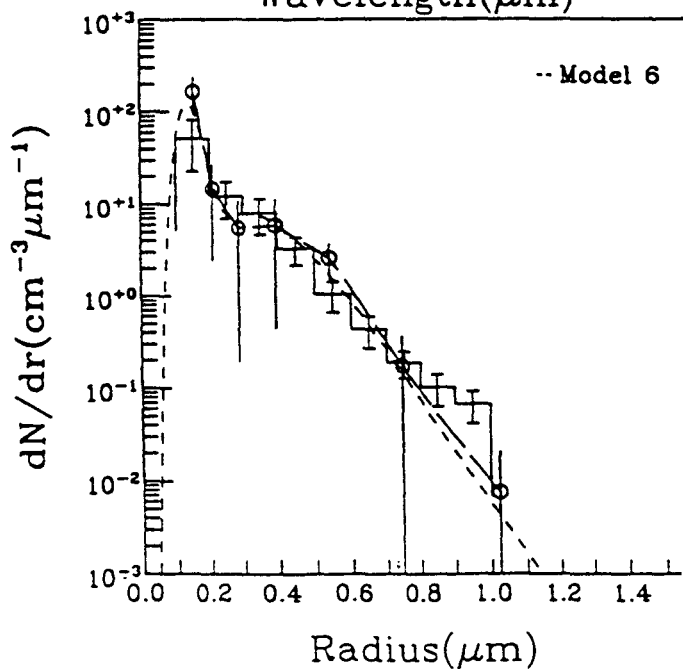
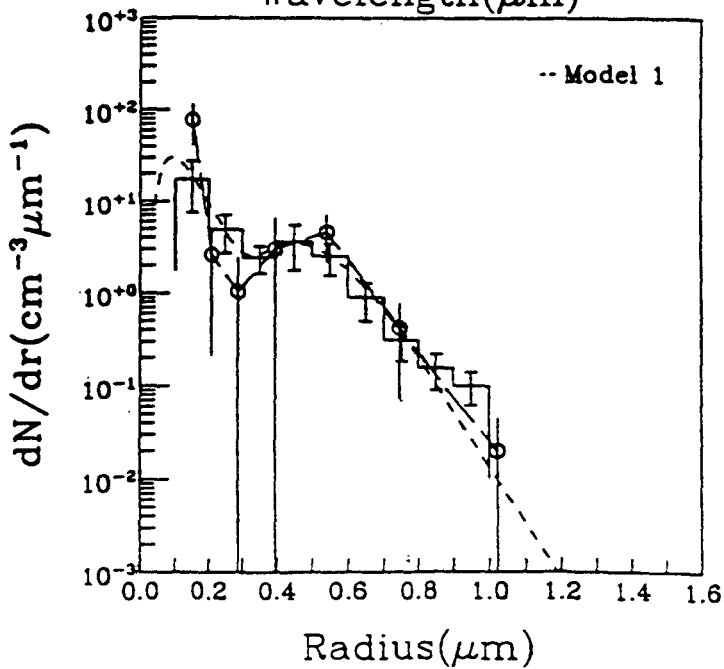
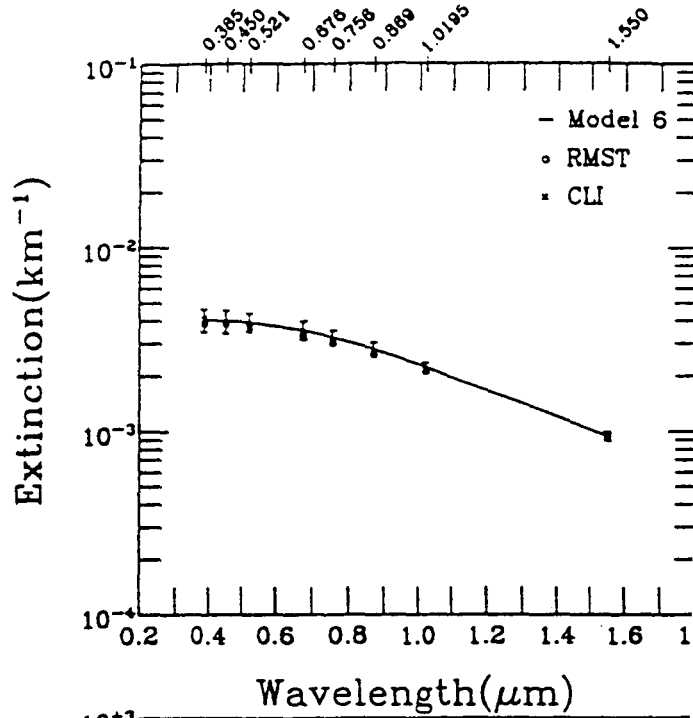
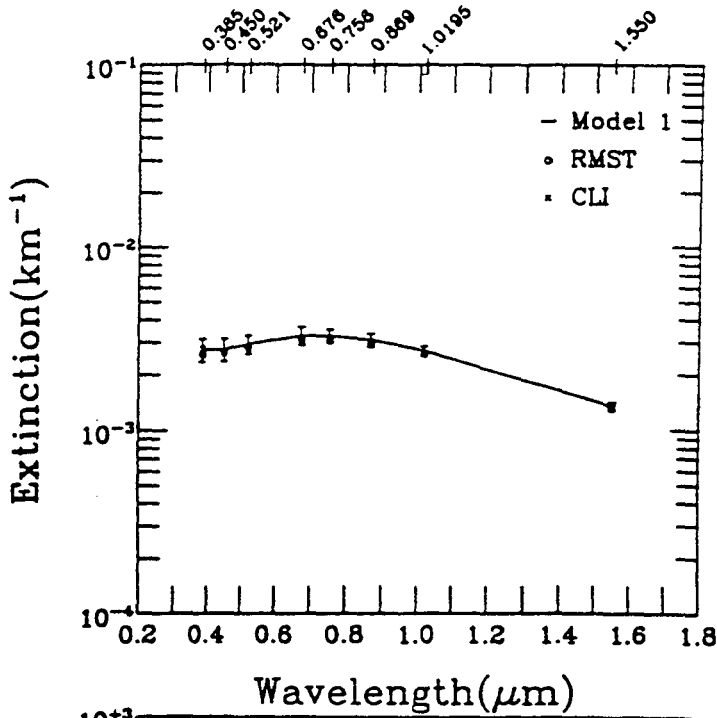


Figure 2.

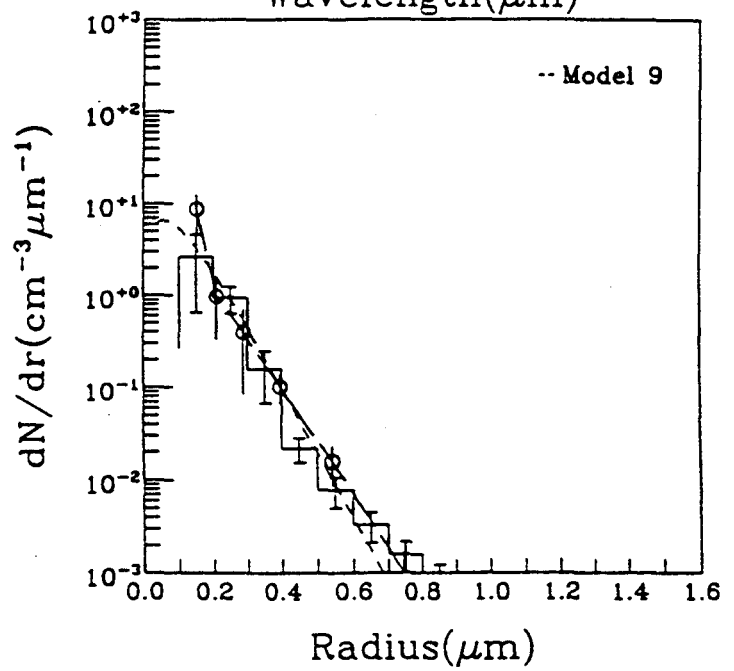
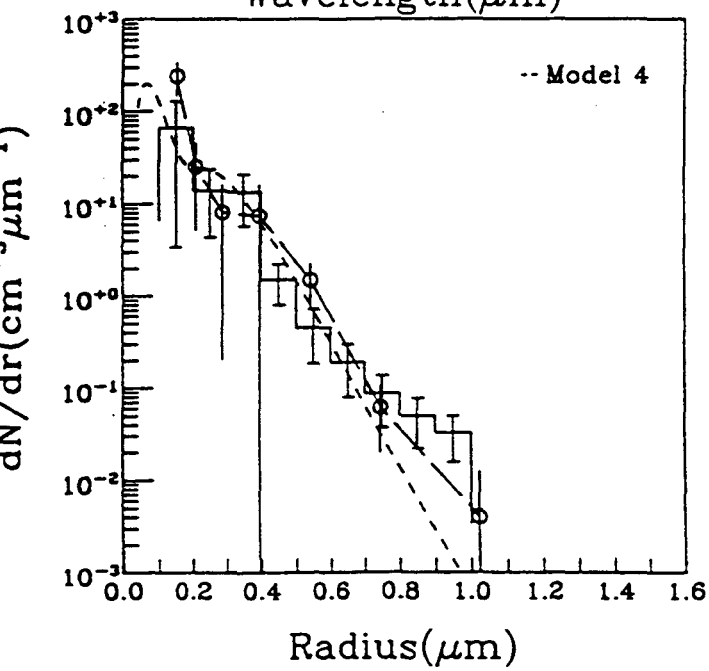
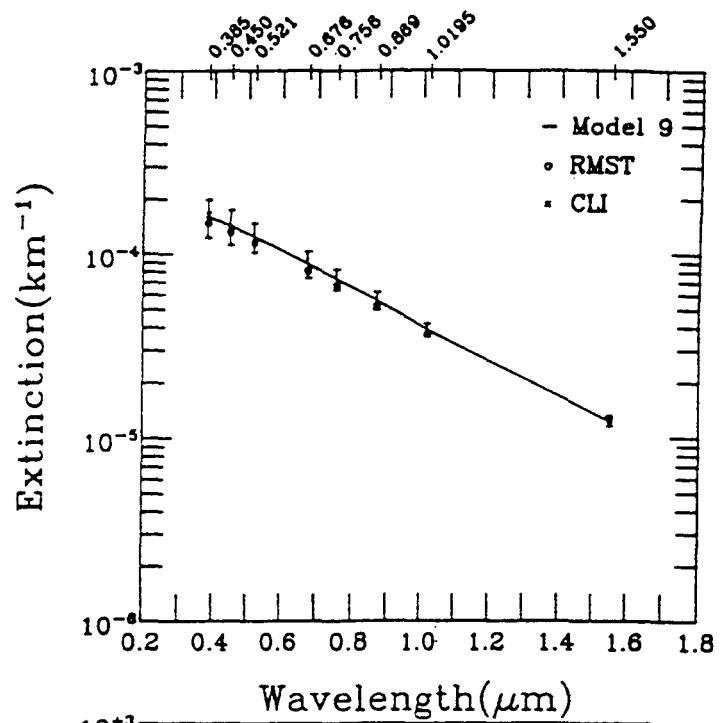
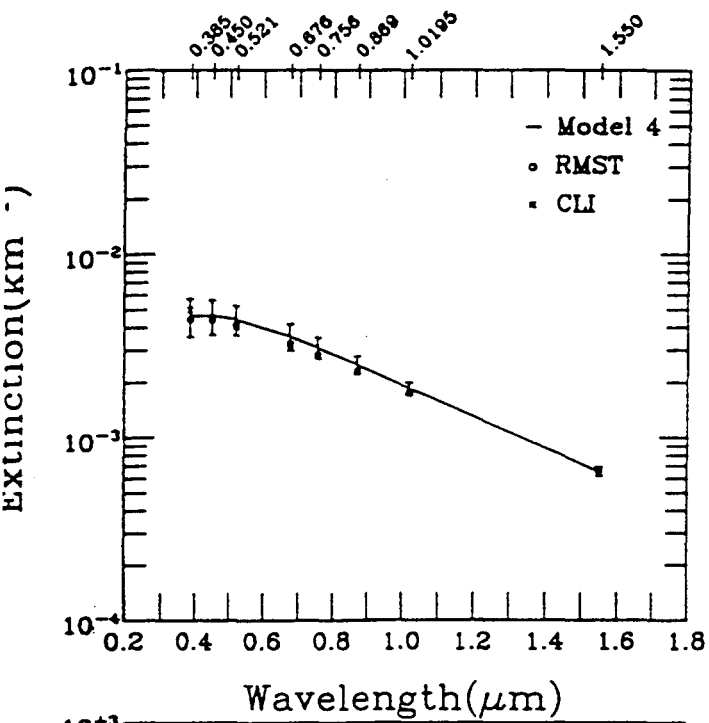


Figure 3.

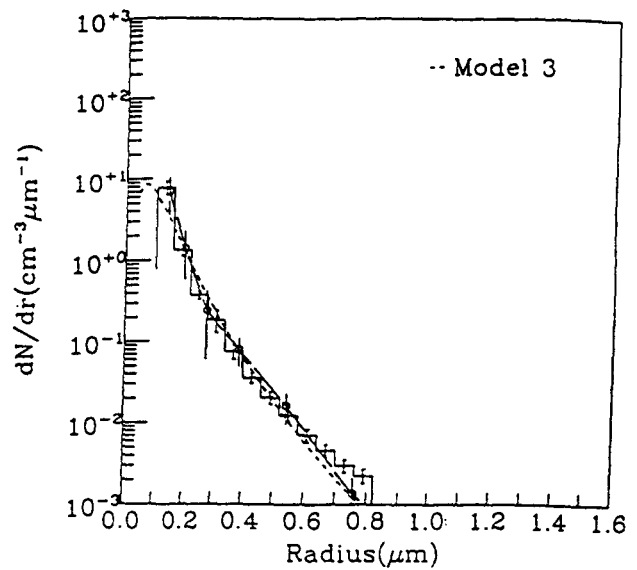
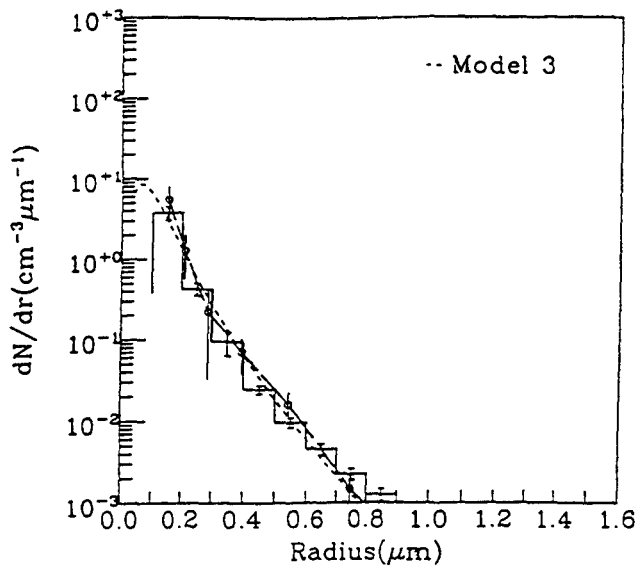


Figure 4.

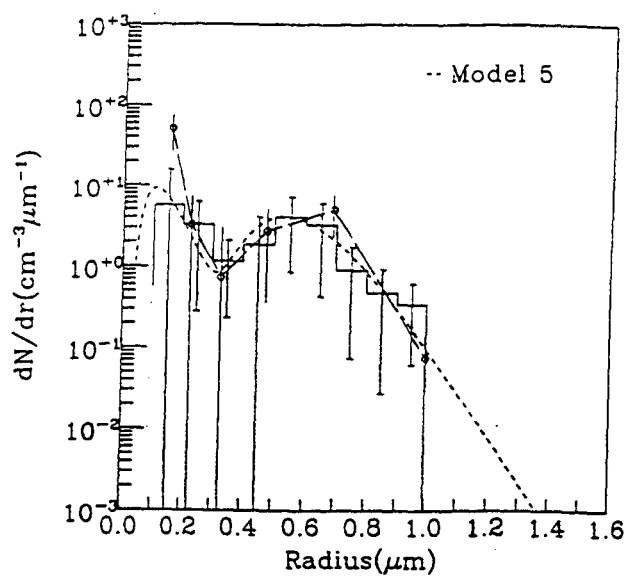
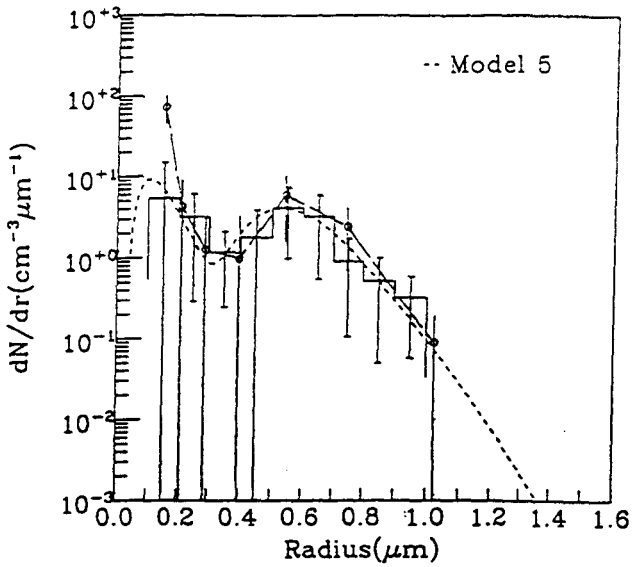


Figure 5.

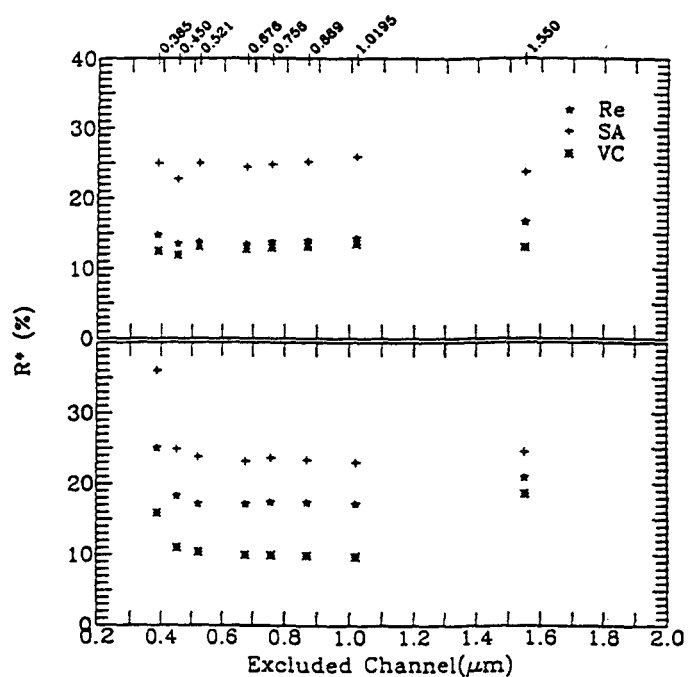
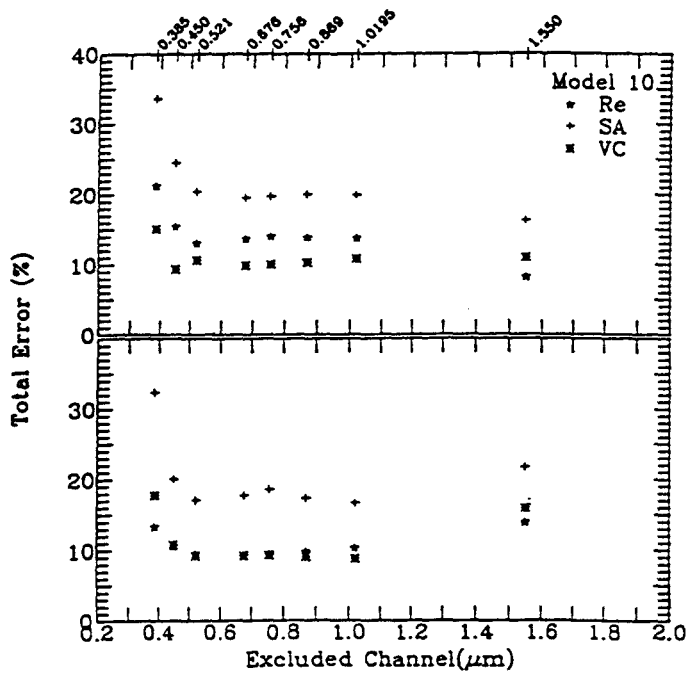


Figure 6.

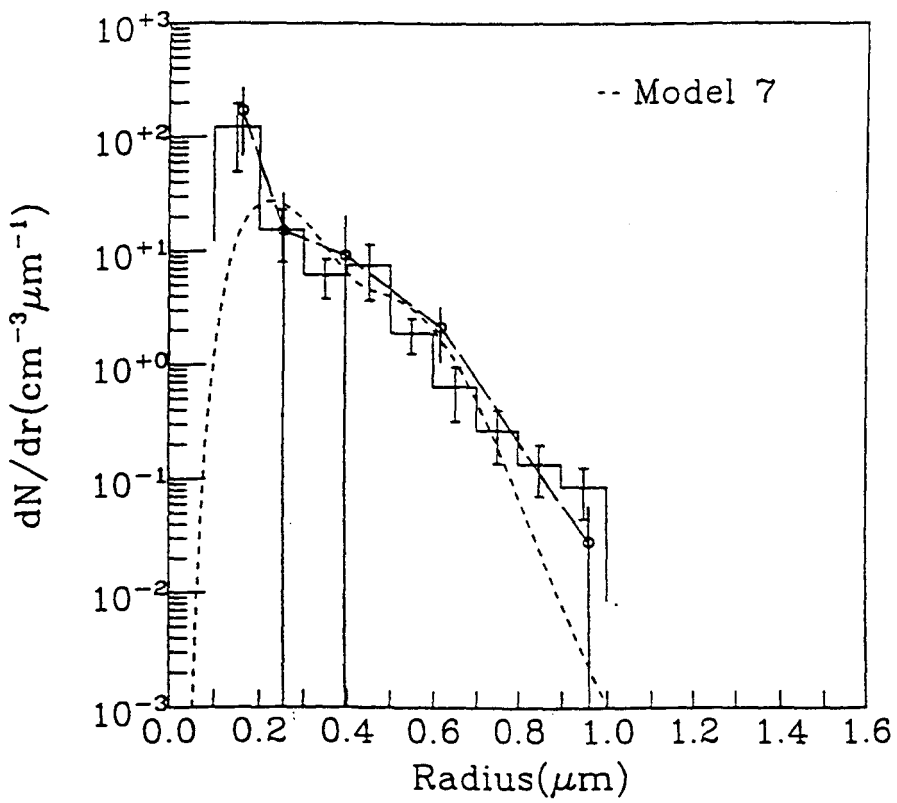
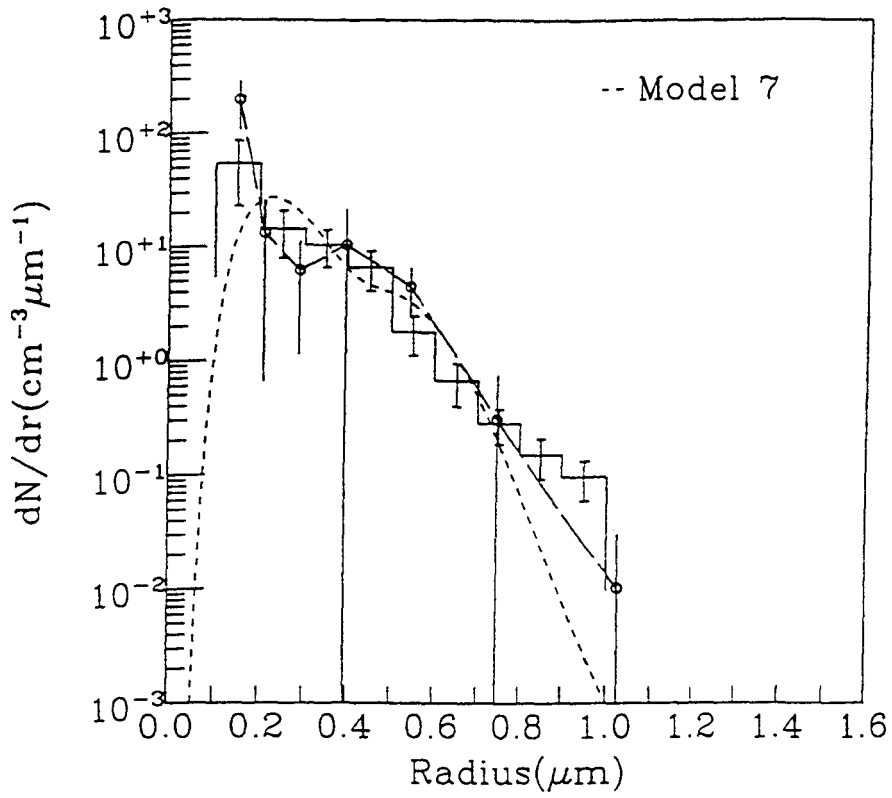


Figure 7.

ANNEXE B

Inference of aerosol size-distribution, surface area density and volume density from multispectral extinction measurements

Laurent Cazier, Colette Brogniez, Jacqueline Lenoble, and Claude Devaux
Laboratoire d'Optique Atmosphérique de Lille
Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve d'Ascq, France

ABSTRACT

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III is planned to be launched in summer 1998. It will provide aerosol extinction coefficients from solar occultation measurements at more wavelengths than SAGE II.

This paper describes two methods used for the retrieval of some aerosol characteristics of great interest for the climate modelling and for the study of heterogeneous chemistry: effective radius, effective variance, surface area density and volume density. The first technique consists in a King inversion scheme and the second relies on a least squares fit on the extinction measurements. The two methods are applied to simulated extinction measurements at SAGE III wavelengths to investigate the ability of retrieving the aerosol characteristics in case of unimodal or bimodal log-normal size distributions. The contribution of channel 1.550 μm is estimated and uncertainties are also determined. The results derived from the two techniques are consistent in unimodal and bimodal cases for the four quantities: the least squares fit method is much faster but leads to larger uncertainties, in bimodal case the King method allows a better retrieval.

Keywords: Aerosol-extinction, -size-distribution, -surface area, -volume, stratosphere, inversion, SAGE III.

1. INTRODUCTION

SAGE III is an advanced version of SAGE II. It is equipped with twelve channels for determining the concentration of O_3 , H_2O , NO_2 and aerosol extinction. The measurements of optical thicknesses are performed by the use of the solar occultation technique and the inversion of those measurements provides aerosol extinction coefficient profiles at eight wavelengths: 0.385, 0.440, 0.525, 0.670, 0.757, 0.872, 1.020 and 1.550 μm .

We will discuss the retrieval of aerosol size distribution, effective radius, effective variance, surface area density and volume density, which determine the radiative and chemical effects of stratospheric aerosols, from the simulated eight-channel $\sigma(\lambda)$ data with a constant error of 5% added for each wavelength, by the use of the King Method¹ and of a Least Squares Fit Method². These two methods have been used in order to retrieve unimodal and bimodal log-normal distributions representative of several conditions, including the background stratosphere and post-volcanic situations (El Chichón in April 1982 and M¹ Pinatubo in June 1991 eruptions). The contribution of the channel 1.550 μm has been estimated and the two retrieval methods and their results are briefly described in the next sections.

2. RETRIEVAL OF THE SIZE DISTRIBUTION FROM THE AEROSOL EXTINCTION COEFFICIENT DATA

Many techniques in order to infer the size distribution of stratospheric aerosols are based on the measurement of aerosol extinction coefficients as a function of wavelength. When the stratospheric aerosol particles are assumed to be spherical, the extinction coefficient is expressed by the Fredholm integral equation³

$$\sigma(\lambda) = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{\text{ext}}(r, \lambda, m) n(r) dr \quad (1)$$

In equation (1) the aerosol extinction coefficients $\sigma(\lambda)$ are measured at various wavelengths for various altitudes z , r is the particle radius, m is the (complex) refractive index of aerosol particles. $Q_{\text{ext}}(r, \lambda, m)$ is the Mie extinction efficiency factor and $n(r)$ is the number of particles per cubic centimeter in the interval $r, r+dr$.

The aerosol surface area density and the volume density are respectively defined by

$$dS(r) = 4\pi r^2 n(r) \quad \text{in } \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3} \mu\text{m}^{-1} \quad (2)$$

and
$$S = \int_0^{\infty} 4\pi r^2 n(r) dr \quad \text{in } \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3} \quad (3)$$

$$dV(r) = \frac{4}{3} \pi r^3 n(r) \quad \text{in } \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \mu\text{m}^{-1} \quad (4)$$

and
$$V = \int_0^{\infty} \frac{4}{3} \pi r^3 n(r) dr \quad \text{in } \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3} \quad (5)$$

The models used to determine simulated aerosol extinction coefficients are unimodal or bimodal log-normal size distributions (LND). The analytic expression for unimodal LND can be represented as

$$n(r) = \frac{N_0}{\sqrt{2\pi r \ln \sigma}} \exp\left[-\frac{\ln^2(r/r_m)}{2 \ln^2 \sigma}\right] \quad (6)$$

where N_0 is the aerosol number concentration (cm^{-3}), r_m is the mode radius (μm) and σ is the width of the distribution. Hansen and Travis⁴ have shown that for the LND

$$r_{\text{eff}} = r_m \exp(2.5 \ln^2 \sigma) \quad (7)$$

and
$$v_{\text{eff}} = \exp(\ln^2 \sigma) - 1 \quad (8)$$

where r_{eff} is the effective radius defined as

$$r_{\text{eff}} = \frac{\int_0^{\infty} \pi r^3 n(r) dr}{\int_0^{\infty} \pi r^2 n(r) dr} \quad (9)$$

and v_{eff} is the effective variance defined as

$$v_{\text{eff}} = \frac{\int_0^{\infty} (r - r_{\text{eff}})^2 \pi r^2 n(r) dr}{r_{\text{eff}}^2 \int_0^{\infty} \pi r^2 n(r) dr} \quad (10)$$

The refractive index which corresponds to sulfuric acid-water droplets^{5,6} (75% H₂SO₄, 25% H₂O by weight) is assumed to be constant and independent of the wavelength ($m=1.45-0.000001i$).

2.1 The King Method

The King Method (KM) is a method which includes a linear constraint. In order to determine $n(r)$ from spectral aerosol measurements or from simulated measurements of $\sigma(\lambda)$, King et al.,¹ let $n(r)=h(r)\tilde{f}(r)$ where $h(r)$ is a rapidly varying function of r while $f(r)$ is more slowly varying. Then equation (1) becomes

$$\sigma(\lambda) = \int_{r_{\text{min}}}^{r_{\text{max}}} \pi r^2 Q_{\text{ext}}(r, \lambda, m) h(r) f(r) dr \quad (11)$$

$$= \sum_{j=1}^q \int_{r_j}^{r_{j+1}} \pi r^2 Q_{\text{ext}}(r, \lambda, m) h(r) f(r) dr \quad (12)$$

where the limits of integration have been made finite with $r_1=r_{\text{min}}$ and $r_{q+1}=r_{\text{max}}$ (see below their determination). In order to solve the problem numerically and to determine $n(r)$, the whole of the integral equations (12) obtained for each wavelength is replaced by an equivalent linear system which can be written in the matrix form

$$g = Af + \varepsilon \quad (13)$$

where [King⁷]

$$g_i = \sigma(\lambda_i) \quad i = 1, 2, \dots, p$$

$$A_{ij} = \int_{r_j}^{r_{j+1}} \pi r^2 Q_{\text{ext}}(r, \lambda_i, m) h(r) dr \quad (14)$$

$$f_j = f(r_j \leq r \leq r_{j+1}) \quad j = 1, 2, \dots, q$$

where $\sigma(\lambda)$ are measured at p discrete wavelengths λ and the solution vector f is inferred at q discrete radii r . ε is the unknown error and represents the combination between measurement error and quadrature error.

In order to solve equation (13) and to obtain the solution vector f , it is necessary to use the constrained linear inversion method. f is given by [King⁷]

$$f = (A^T S_{\varepsilon}^{-1} A + \gamma H)^{-1} A^T S_{\varepsilon}^{-1} g \quad (15)$$

where H is the smoothing matrix defined by Twomey⁸, S_e is the measurement covariance matrix and γ is a non negative Lagrange multiplier selected so that all the elements of f are positive (i.e. negative values of the elements constitute unphysical solutions). See, for more details, the criteria used in selecting the Lagrange multiplier described by King⁷.

The procedure is iterative and the first guess is chosen as a combination of two Junge-size distributions

$$h(r) = r^{-(\nu+1)} \quad (16)$$

Different trials have been used and results are better for

$$\begin{aligned} h(r_i) &= r_i^{-7} \quad \text{for } i = 1, \dots, 3 \\ h(r_i) &= r_i^{-8} \quad \text{for } i = 4, \dots, q \end{aligned} \quad (17)$$

i.e. whatever the model used (unimodal or bimodal) for the simulation, the inversion is always made with a bimodal first guess. This iterative process is repeated for eight iterations⁹ until the retrieved extinction coefficients match the simulated ones within the uncertainties. The choice of r_{\min} and r_{\max} is achieved in order to reduce to a maximum the uncertainties on effective radius, effective variance, surface area and volume.

2.2 The Least Squares Fit Method

The Least Squares Fit Method² (LSFM) consists in using an analytic fit that smoothes the spectral variations of simulated or measured extinction coefficients $\sigma(\lambda)$ given by the eight different channels of SAGE III. The analytical expression is

$$\ln \sigma(\lambda) = \ln \sigma(1.550) - a \ln (\lambda/1.550) - b (\ln (\lambda/1.550))^2 \quad (18)$$

The wavelength 1.550 μm is chosen as reference because it is the channel which better characterizes large aerosols and will probably give the smallest error on measured aerosol coefficients of SAGE III compared to other channels.

A set of 100 values of effective radii (0.01, 0.02, ..., 0.99, 1.00 μm) and a set of 100 values of effective variances (0.01, 0.02, ..., 0.99, 1.00) have given 10000 unimodal LND models for which (a,b) values have been determined. The expression (18) enables to fit the spectral variation of the simulated extinction coefficients and to calculate the values of a and b. The comparison of (a,b) obtained for the simulation or for the measurements with (a,b) obtained for the set of LND models leads to the determination of the convenient model and thus to the r_{eff} and ν_{eff} .

Naturally for simulated unimodal cases the effective radius and variance, the surface area (S) and the volume (V) expressed by

$$S = \frac{4\pi r_{\text{eff}}^2}{(\nu_{\text{eff}} + 1)^3} \quad (19)$$

$$V = \frac{4}{3} \pi \frac{r_{\text{eff}}^3}{(\nu_{\text{eff}} + 1)^3} \quad (20)$$

are exactly retrieved because they correspond to one model among the set of LND models. So it is only for uncertainties of those four quantities and for bimodal cases that this method is instructive.

3. RESULTS

These two methods have been compared in several conditions, including the background stratosphere and volcanic situations such as those found after the April 1982 El Chichón and June 1991 M^t Pinatubo eruptions (table 1). We have taken the values given by Wang et al.,¹⁰ for volcanic eruption data. A constant error of 5% is added for each wavelength on the simulated $\sigma(\lambda)$.

table 1 (inspired by Wang et al.,¹⁰). Parameter Values of the size-distribution used for the simulation.

Log Normal	Parameter	Truth ^a		
		Background	El Chichón	Pinatubo
Unimodal	N_0 (cm ⁻³)	1		
	r_m (μm)	0.158		
	σ	1.53		
	r_{eff} (μm)	0.25		
	v_{eff}	0.20		
	Surface Area Density (μm ² cm ⁻³)	0.454		
	Volume Density (μm ³ cm ⁻³)	0.038		
Bimodal	$N_{0,1}$ (cm ⁻³)		5.1	2.1
	$r_{m,1}$ (μm)		0.19	0.33
	σ_1		1.65	1.50
	$r_{eff,1}$ (μm)		0.36	0.50
	$v_{eff,1}$		0.29	0.18
	$N_{0,2}$ (cm ⁻³)		2.8	3.1
	$r_{m,2}$ (μm)		0.52	0.60
	σ_2		1.20	1.30
	$r_{eff,2}$ (μm)		0.64	0.71
	$v_{eff,2}$		0.03	0.07
	Surface Area Density (μm ² cm ⁻³)		16.90	20.10
	Volume Density (μm ³ cm ⁻³)		3.25	4.50

^aAerosol size-distribution parameters used in the SAGE III extinction measurement simulation

Note that for this analysis the uncertainties on the parameters r_{eff} , v_{eff} , S and V are obtained from the uncertainties of the retrieved size-distribution and that the size-distribution is normalized to unity for unimodal LND.

3.1 Retrieval of aerosol characteristics for the Background data

The simulated Mie aerosol extinction coefficients for the Background case with corresponding uncertainties and the retrieved aerosol extinction coefficients obtained by inverting these data with the two methods are shown in figure 1. It indicates that the simulated $\sigma(\lambda)$ measurements are well reproduced.

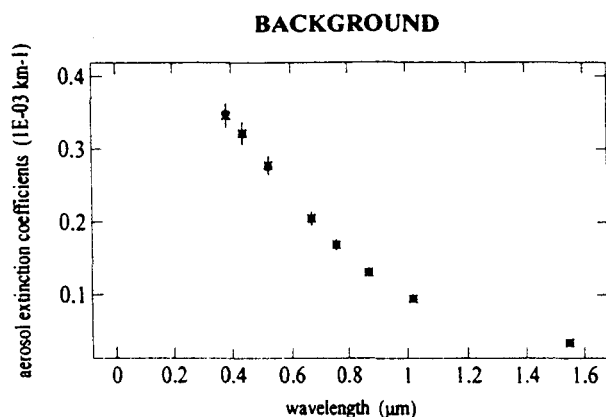


figure 1. Simulated Mie aerosol extinction coefficients for the Background with corresponding uncertainties (vertical bars) and retrieved aerosol extinction coefficients obtained by inverting these data with the KM (crosses) and the LSFM (dots).

The results derived from the two techniques are presented in table 2 and in figure 2. This figure represents simulated aerosol size-distribution (2.a.), surface area density (2.b.), and volume density (2.c.) and inversed results by KM with estimated uncertainties for the Background situation.

table 2. Comparison of the two methods for the Background.

Parameter	Background		without channel 1.550 μm [†]		with channel 1.550 μm	
	exact value	KM	LSFM	KM	LSFM	
r_{eff} (μm)	0.25	0.28 \pm 0.02	0.25 (0.16< r_{eff} <0.32) ^α	0.27 \pm 0.03	0.25 (0.20< r_{eff} <0.30) ^α	
r. d. [†] (%)		12.0	0	8.0	0	
v_{eff}	0.20	0.15 \pm 0.06	0.20 (0.08< v_{eff} <0.41) ^α	0.16 \pm 0.06	0.20 (0.14< v_{eff} <0.28) ^α	
r. d. [†] (%)		25.0	0	20.0	0	
Surface Area Density ($\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$)	0.454	0.43 \pm 0.22	0.454	0.43 \pm 0.30	0.454	
r. d. [†] (%)		5.3	0	5.3	0	
Volume Density ($\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$)	0.038	0.040 \pm 0.019	0.038	0.038 \pm 0.025	0.038	
r. d. [†] (%)		5.3	0	0	0	

[†] relative difference with the exact value = (retrieval-exact value)/exact value

[‡] without channel 1.550 μm , for LSFM the channel 1.020 μm is chosen as reference in the expression (18)

^α see below for determination of uncertainties about r_{eff} and v_{eff}

The results are consistent in this unimodal case and better for LSFM when channel 1.550 μm is used leading to small uncertainties on r_{eff} and v_{eff} . The KM has a good ability of retrieving aerosol characteristics in particular for r_{eff} , S and V with relative differences with exact values less than 10%. The four parameters are exactly retrieved with the LSFM as explained previously. Even if the LSFM is much faster than the KM, it leads to larger uncertainties for r_{eff} and v_{eff} . Indeed we can explain the large errors by considering that we are fitting a set of p data points (x_i, y_i) (see section 2.2) by a straight-line model

$$y(x) = y(x;a,b) = -a -bx \quad (21)$$

where $x = \ln(\lambda/1.550)$ (22)

and $y = \frac{\ln \sigma(\lambda) - \ln \sigma(1.550)}{x}$ (23)

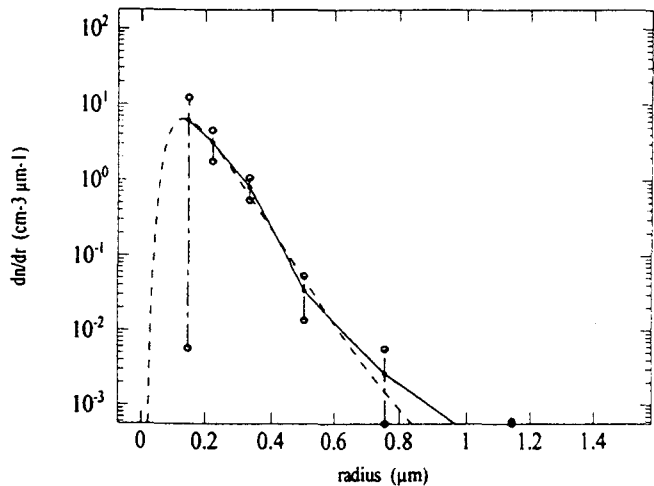
The relative error on y is

$$\frac{\Delta y}{y} = \sqrt{\frac{\left(\frac{\Delta \sigma(\lambda)}{\sigma(\lambda)}\right)^2 + \left(\frac{\Delta \sigma(1.55)}{\sigma(1.55)}\right)^2}{(\ln \sigma(\lambda) - \ln \sigma(1.55))^2}} \quad (24)$$

So a small value for the difference $\ln \sigma(\lambda) - \ln \sigma(1.550)$ can provoke an error as large as 50-100% or even more on $y(x)$ and consequently can lead to large uncertainties on r_{eff} and v_{eff} .

With the KM, r_{eff} is retrieved with a small uncertainty but it is not possible to retrieve the exact value for v_{eff} . The KM allows a good retrieval for S and V but the uncertainties on both characteristics are large because they depend on the uncertainties on size-distribution which are also important.

figure 2.a aerosol size-distribution (without channel 1.550 μm)



aerosol size-distribution (with channel 1.550 μm)

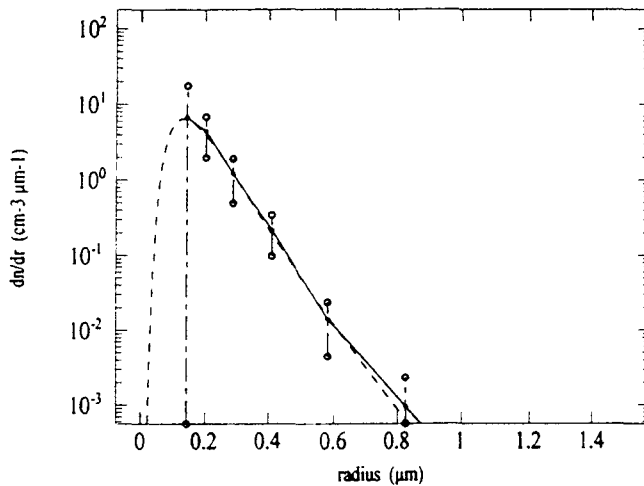
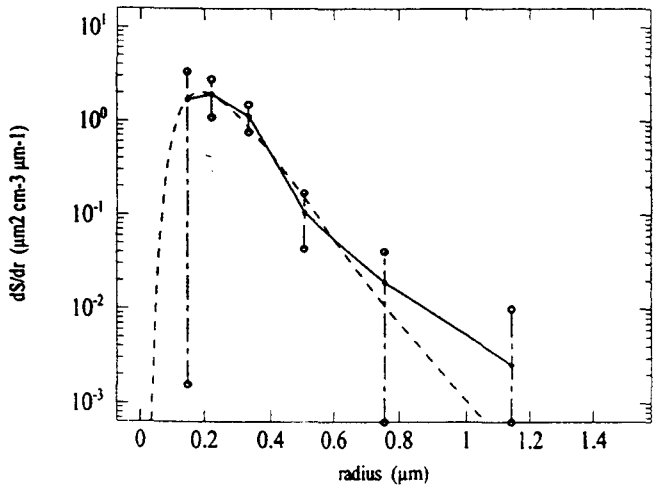


figure 2.b surface area density (without channel 1.550 μm)



surface area density (with channel 1.550 μm)

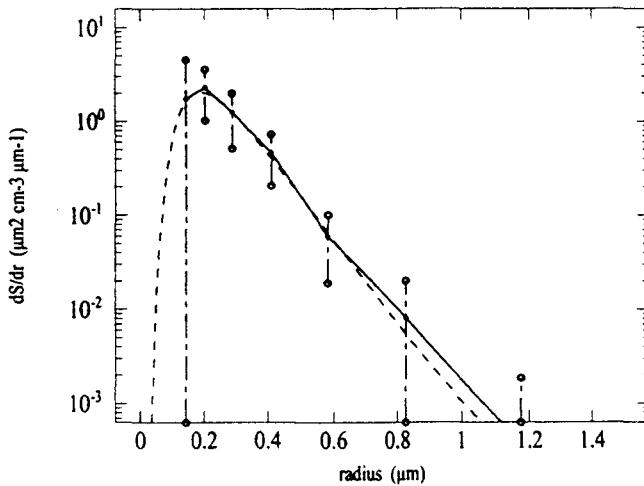
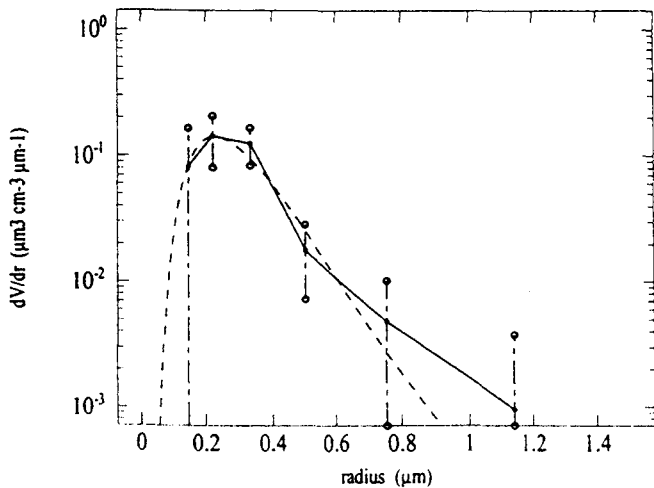


figure 2.c volume density (without channel 1.550 μm)



volume density (with channel 1.550 μm)

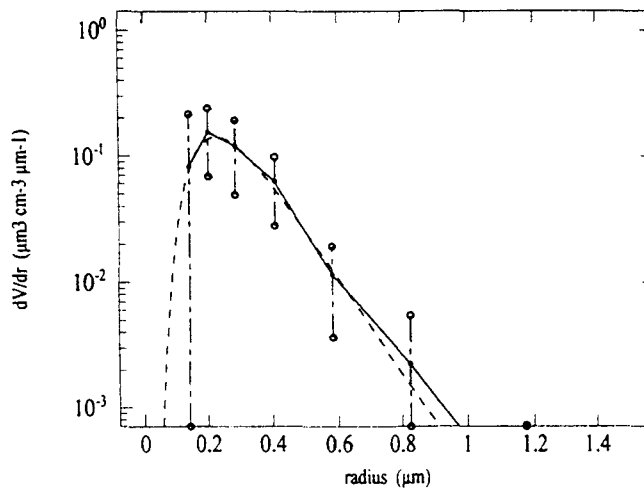


figure 2. BACKGROUND. $r_{\text{min}}=0.12 \mu\text{m}$ and $r_{\text{max}}=1.4 \mu\text{m}$.

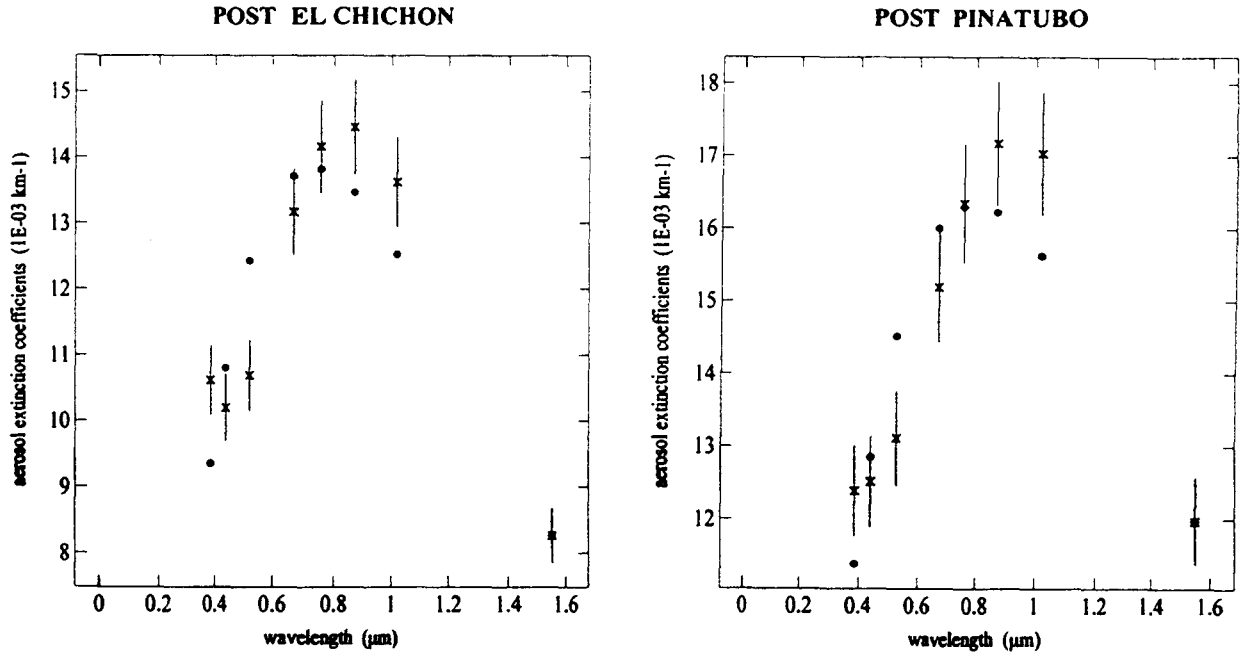
figure 2.a simulated aerosol size-distribution (dash curve) and inverted aerosol size-distribution by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 2.b simulated surface area density (dash curve) and inverted surface area density by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 2.c simulated volume density (dash curve) and inverted volume density by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

3.2 Retrieval of aerosol characteristics for post El Chichón and post M^t Pinatubo data

The simulated Mie aerosol extinction coefficients respectively for post El Chichón and for post M^t Pinatubo with corresponding uncertainties and the retrieved aerosol extinction coefficients obtained by inverting these data with the KM are shown in figures 3 and 4. It indicates that the simulated $\sigma(\lambda)$ measurements are well reproduced. For the LSFM the results are less satisfactory.



figures 3 and 4. Simulated Mie aerosol extinction coefficients for post El Chichón (on the left panel) and for post Pinatubo (on the right panel) with corresponding uncertainties (vertical bars) and retrieved aerosol extinction coefficients obtained by inverting these data with the KM (crosses) and the LSFM (dots).

The results of the LSFM and the KM are presented in tables 3 and 4 and in figures 5 and 6. These two figures represent respectively simulated aerosol size-distribution (5.a., 6.a.), surface area density (5.b., 6.b.), and volume density (5.c., 6.c.) and inverted results by KM with estimated uncertainties for the two post-volcanic eruption situations.

table 3. Comparison of the two methods for post El Chichón.

Parameter	Post El Chichón		without channel 1.550 μm ^ψ		with channel 1.550 μm	
	exact value	KM	LSFM	KM	LSFM	
r_{eff} (μm)	0.58	0.60±0.04	0.68 (0.61< r_{eff} <1.00)	0.60±0.05	0.61 (0.54< r_{eff} <0.65)	
r. d. [†] (%)		3.4	17.2	3.4	5.2	
v_{eff}	0.10	0.07±0.03	0.14 (0.01< v_{eff} <0.99)	0.08±0.05	0.10 (0.02< v_{eff} <0.20)	
r. d. [†] (%)		30.0	40.0	20.0	0	
Surface Area	16.90	21.40±8.60	31.00	19.90±10.00	27.75	
Density (μm ² cm ⁻³)						
r. d. [†] (%)		27.0	83.2	17.6	64.1	
Volume Density	3.25	4.25±1.50	7.00	3.95±1.60	5.65	
(μm ³ cm ⁻³)						
r. d. [†] (%)		31.4	116.0	21.5	73.5	

[†] relative difference with the exact value = (retrieval-exact value)/exact value

^ψ without channel 1.550 μm, for LSFM the channel 1.020 μm is chosen as reference in the expression (18)

table 4. Comparison of the two methods for post Pinatubo.

Post M ¹ Pinatubo		without channel 1.550 μm [‡]		with channel 1.550 μm	
Parameter	exact value	KM	LSFM	KM	LSFM
r _{eff} (μm)	0.67	0.66±0.15	0.73 (0.64<r _{eff} <1.00)	0.67±0.18	0.69 (0.63<r _{eff} <0.71)
r. d. [†] (%)		1.5	10.1	0.0	3.0
v _{eff}	0.10	0.08±0.13	0.12 (0.02<v _{eff} <0.38)	0.09±0.14	0.12 (0.02<v _{eff} <0.32)
r. d. [†] (%)		20.0	20.0	10.0	20.0
Surface Area (μm ² cm ⁻³)	20.10	22.80±20.45	24.15	22.00±34.25	22.15
r. d. [†] (%)		13.6	20.1	9.5	10.2
Volume Density (μm ³ cm ⁻³)	4.50	5.00±3.60	5.85	4.90±5.60	5.10
r. d. [†] (%)		11.8	30.7	8.9	13.4

[†] relative difference with the exact value = (retrieval-exact value)/exact value

[‡] without channel 1.550 μm, for LSFM the channel 1.020 μm is chosen as reference in the expression (18)

Firstly the results are better with channel 1.550 μm than without it. The two methods have a good ability of retrieving r_{eff} and v_{eff} in particular for post El Chichón case. For post M¹ Pinatubo situation the uncertainties for those two parameters are more important because with the KM we have four ranges of particles with errors larger than 100% for the retrieval of the size-distribution (against three ranges with errors larger than 100% for post El Chichón).

Besides for post M¹ Pinatubo even if the uncertainties are large, the two methods have a good ability of retrieving S and V with small relative differences (<10%) with the exact values probably because the bimodal log-normal size-distribution looks like an unimodal log-normal size-distribution. On the contrary for post El Chichón we have more important relative differences with the exact values (about 20% for KM and about 70% for LSFM).

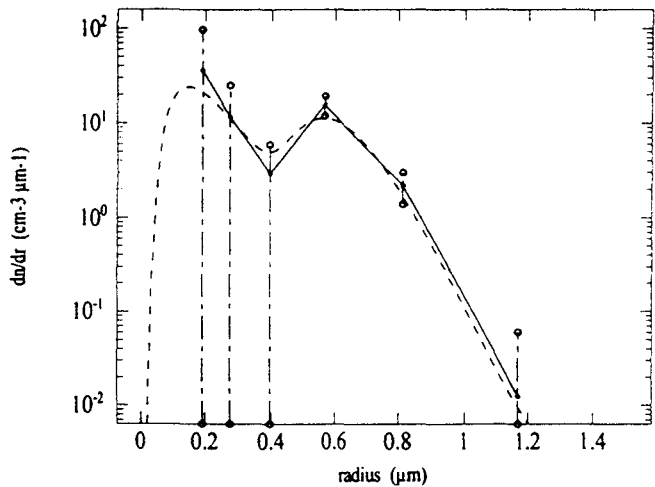
4 CONCLUSION

The results derived from the two techniques are consistent in unimodal and bimodal cases. The Least Squares Fit Method is much faster than the King Method but leads to larger uncertainties. Even if these uncertainties are large we must emphasize that relative differences with exact values are small in particular with the King Method (<10% for Background and post Pinatubo and <20% for post El Chichón). This study has shown that the aerosol parameters, effective radius, effective variance, surface area density and volume density, which are used to determine the radiative and chemical effects of stratospheric aerosols can be retrieved more accurately with the addition of the wavelength 1.550 μm.

REFERENCES

1. King, M. D., D. M. Byrne, B. M. Herman and J. A. Reagan, „Aerosol size distributions obtained by inversion of spectral optical depth measurements”, *J. Atmos. Sci.*, **35**, pp. 2153-2167, 1978.
2. Brogniez, C., and J. Lenoble, „Size distribution of stratospheric aerosols from SAGE II multiwavelength extinction”, in *Aerosols and Climate*, edited by P. V. Hobbs and M. P. McCormick, pp. 305-312, A. Deepak, Hampton, Va., 1988.
3. Yamamoto, G., and M. Tanaka, „Determination of aerosol size-distribution from spectral attenuation measurements”, *Appl. Opt.* **8**, pp. 447, 1969.
4. Hansen, J. E., and L. D. Travis, „Light scattering in planetary atmospheres”, *Space Sci. Rev.*, **16**, pp. 527-610, 1974.
5. Russell, P.B. and P. Hamill, „Spatial variation of stratospheric aerosol acidity and model refractive index: implication of recent results”, *J. Atmos. Sci.*, **41**, pp 1781-1790. 1984.

figure 5.a aerosol size-distribution (without channel 1.550 μm)



aerosol size-distribution (with channel 1.550 μm)

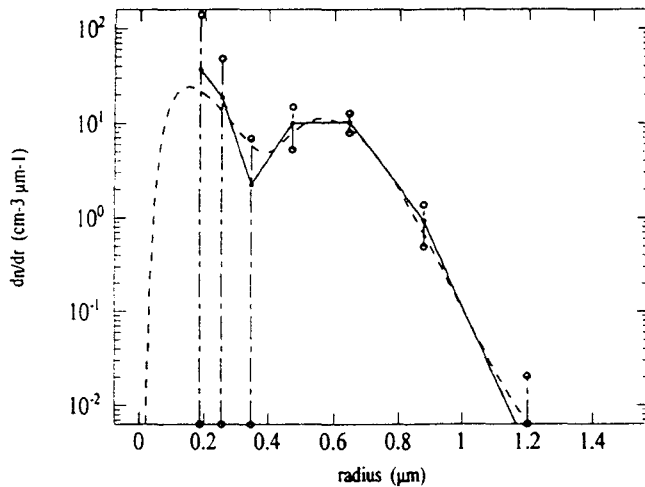
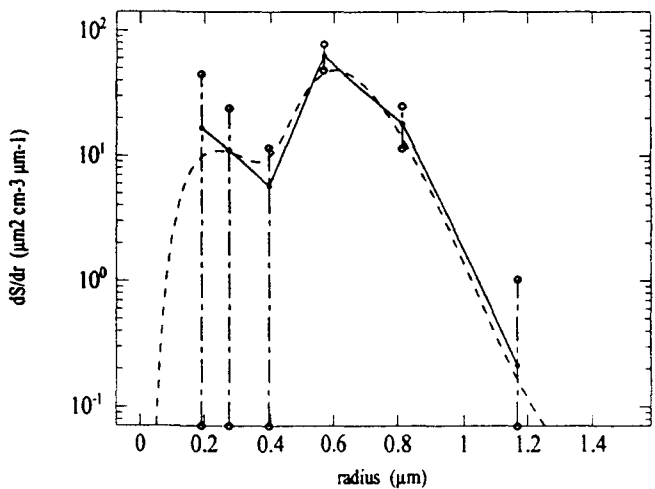


figure 5.b surface area density (without channel 1.550 μm)



surface area density (with channel 1.550 μm)

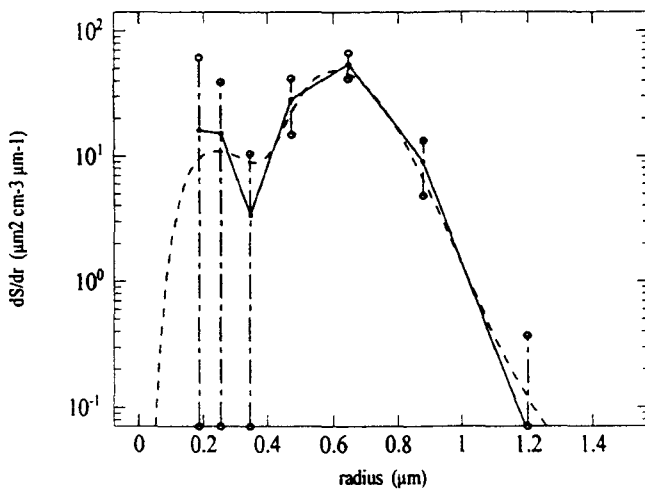
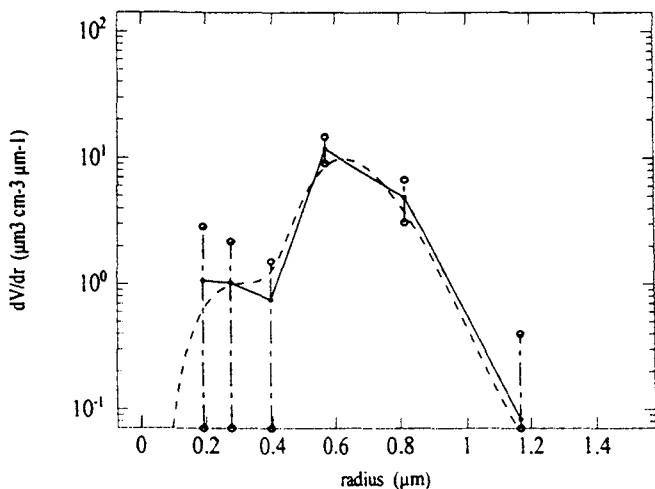


figure 5.c volume density (without channel 1.550 μm)



volume density (with channel 1.550 μm)

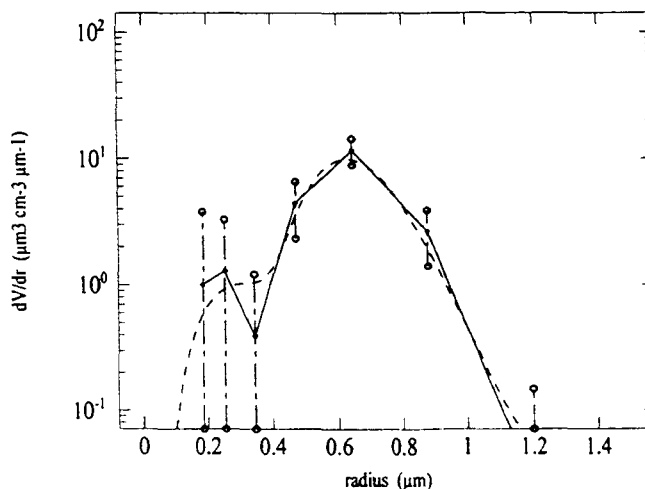


figure 5. POST EL CHICHON. min=0.16 μm and rmax=1.4 μm .

figure 5.a simulated aerosol size-distribution (dash curve) and inverted aerosol size-distribution by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 5.b simulated surface area density (dash curve) and inverted surface area density by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 5.c simulated volume density (dash curve) and inverted volume density by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 6.a aerosol size-distribution (without channel 1.550 μm)

aerosol size-distribution (with channel 1.550 μm)

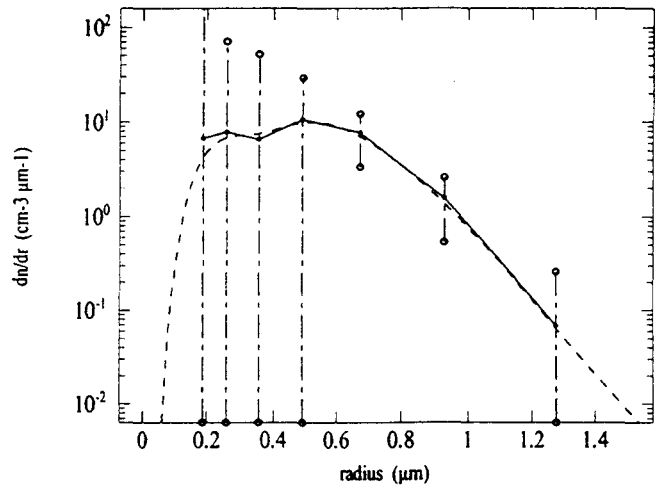
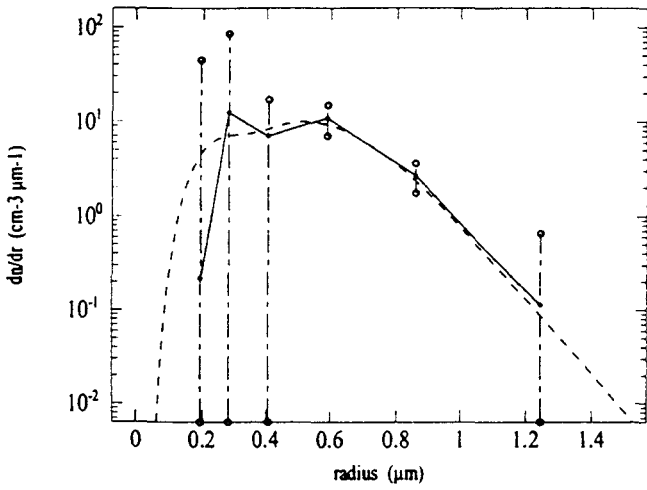


figure 6.b surface area density (without channel 1.550 μm)

surface-area density (with channel 1.550 μm)

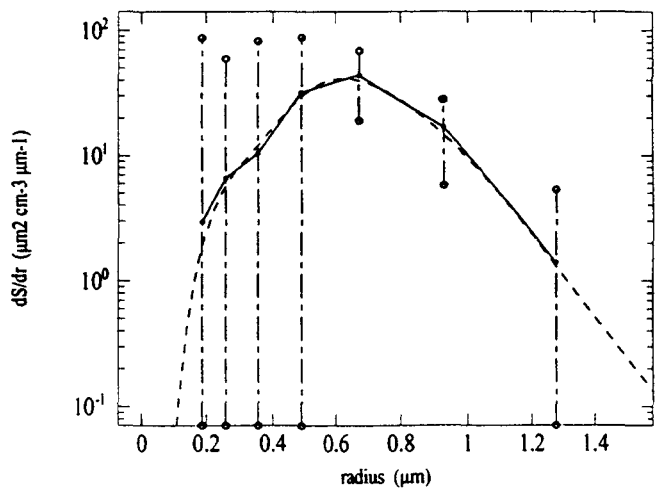
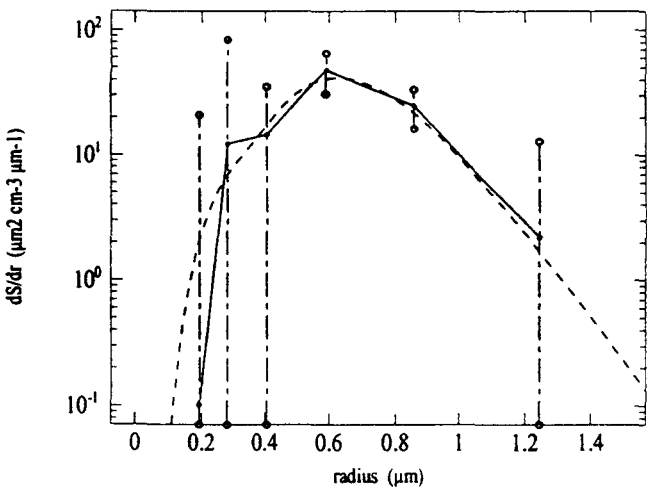


figure 6.c volume density (without channel 1.550 μm)

volume density (with channel 1.550 μm)

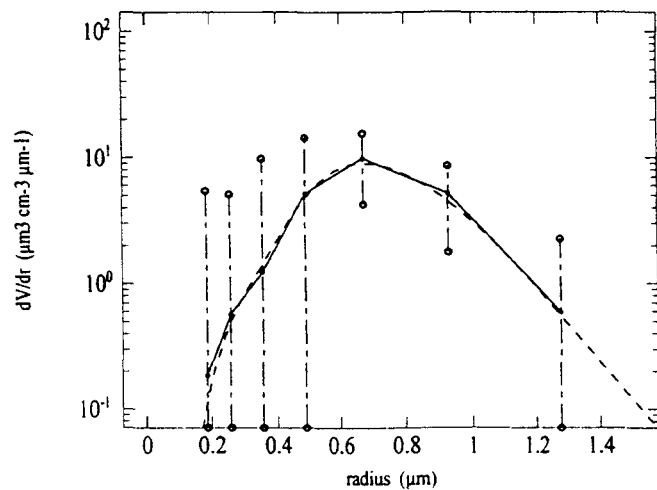
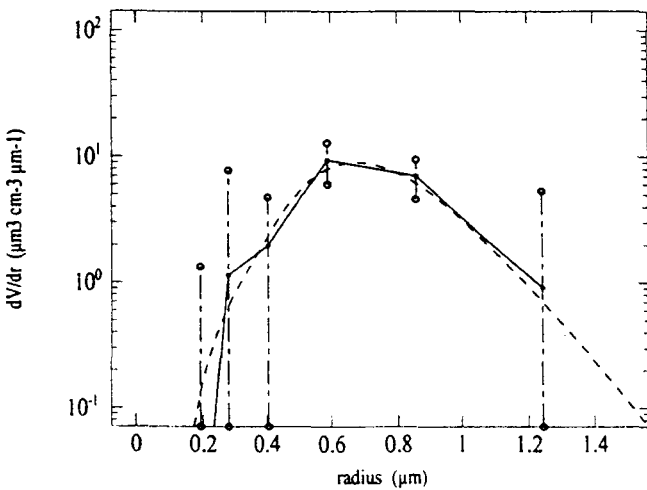


figure 6. POST PINATUBO. $r_{\text{min}}=0.16 \mu\text{m}$ and $r_{\text{max}}=1.5 \mu\text{m}$.

figure 6.a simulated aerosol size-distribution (dash curve) and inverted aerosol size-distribution by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 6.b simulated surface area density (dash curve) and inverted surface area density by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

figure 6.c simulated volume density (dash curve) and inverted volume density by King Method (solid curve) with estimated uncertainties.

6. Russell, P. B., J. M. Livingston, R. F. Pueschel, J. J. Bauman, J. B. Pollack, S. L. Brooks, P. Hamill, L. W. Thomason, L. L. Stowe, T. Deshler, E. G. Dutton, and R. W. Bergstrom, „Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses”, *J. Geophys. Res.*, **101**, pp 18745-18763, 1996.
7. King, M. D., „Sensitivity of constrained linear inversions to the selection of the Lagrange multiplier”, *J. Atmos. Sci.*, **39**, pp. 1356-1369, 1982.
8. Twomey, S., „On the numerical solution of Fredholm integral equations of the first kind by the inversion of the linear system produced by quadrature”, *J. Assoc. Comput. Mach.*, **10**, pp 97-101, 1963.
9. Spinhorne, J. D., and M. D. King, „Latitudinal variation of spectral optical thickness and columnar size distribution of the El Chichón stratospheric aerosol layer”, *J. Geophys. Res.*, **90**, pp 10607-10619, 1985.
10. Wang, P.-H., G. S. Kent, M. P. McCormick, L. W. Thomason and G. K. Yue, „Retrieval analysis of aerosol size-distribution with simulated extinction measurements at SAGE III wavelengths”, *Appl. Opt.* **35**, pp. 433-440, 1996.

For further author information -

- L. C. (correspondence): email: cazier@loa.univ-lille1.fr; Telephone: (33)-3-20-43-40-63; Fax: (33)-3-20-43-43-42
- C. B.: email: col@loa.univ-lille1.fr; Telephone: (33)-3-20-43-66-43
- J. L.: email: lenoble@loa.univ-lille1.fr; Telephone: (33)-3-20-43-46-76
- C. D.: email: devaux@loa.univ-lille1.fr; Telephone: (33)-3-20-43-45-32

