PI-POLARIMETRE DE LABORATOIRE D'ÉVALUATION DE LA RETRODIFFUSION OPTIQUE DE QUELQUES AEROSOLS MINERAUX, SULFATES ET CARBONES

A. Miffre*, D. Cholleton and P. Rairoux
Université de Lyon, Université Claude Bernard Lyon 1, CNRS, Institut Lumière Matière, F-69622, Villeurbanne, France
*Courriel de l'orateur : alain.miffre@univ-lyon1.fr

TITLE

Laboratory Pi-Polarimeter to evaluate light backscattering by some mineral dust, sulfate and soots

RESUME

La rétrodiffusion optique d'aérosols est essentielle pour comprendre le climat terrestre, de par son rôle dans le bilan radiatif. Si la contribution de l'aérosol sulfaté est de nos jours bien connue (IPCC 2013), il n'en est pas de même pour l'aérosol minéral d'origine désertique ou encore l'aérosol carboné, à fortiori lorsque ce dernier est intriqué dans des structures complexes de type cœur-coquille comme dans les organosulfates. Dans ce contexte, la présente contribution vise à déterminer, en laboratoire, les caractéristiques polarimétriques et spectrales de la rétrodiffusion de quelques aérosols minéraux, d'agrégats de suie et d'organosulfates via un Pi-polarimètre de laboratoire, unique au monde. Cette démarche de laboratoire est essentielle pour quantifier l'effet direct de ces aérosols sur le climat. La rétrodiffusion de divers échantillons est ainsi étudiée à deux longueurs d'onde (355 et 532 nm) en s'appuyant sur le formalisme de la matrice de diffusion. Le rapport de dépolarisation est ainsi quantifié en géométrie de rétrodiffusion. Nous pensons que ce travail de laboratoire peut ouvrir de nouvelles perspectives sur notre compréhension de ces aérosols avec des applications notamment dans le domaine de la Télédétection lidar. Ces travaux coopératifs ont donné lieu à publication (Paulien et al., JQSRT, 2021), (Dubois et al., PCCP, 2021) ou sont en cours de soumission à l'automne 2021 pour ce qui concerne l'aérosol désertique.

ABSTRACT

The optical backscatter of aerosols is essential to understand the Earth's climate, because of its role in the radiation balance. If the contribution of sulfate aerosol is nowadays well-known (IPCC 2013), it is not the same for mineral aerosol of desert origin or carbonaceous aerosol, especially when the latter is embedded in complex core-shell structures such as in organosulfates. In this context, the present contribution aims at determining, in laboratory, the polarimetric and spectral characteristics of the backscattering of some mineral aerosols, soot aggregates and organosulfates via a laboratory Pi-polarimeter, unique in the world. This laboratory approach is essential to quantify the direct effect of these aerosols on climate. The backscatter of various samples is studied at two wavelengths (355 and 532 nm) using the scattering matrix formalism. The depolarization ratio is thus quantified in backscattering geometry. We believe that this laboratory work can open new perspectives for our understanding of these aerosols with applications notably in the field of lidar remote sensing. This collaborative work has been published (Paulien et al., JQSRT, 2021), (Dubois et al., PCCP, 2021) or is in the process of being submitted in fall 2021 regarding mineral dust.

MOTS-CLÉS : aérosol minéral, polarimètre, rétrodiffusion optique / **KEYWORDS:** mineral dust, scattering matrix, light backscattering

1. INTRODUCTION

Les particules minérales d'origine désertique sont un constituant important de l'atmosphère présentant une multitude d'impacts (IPCC, 2013). Les particules minérales d'origine désertique contribuent ainsi au bilan radiatif terrestre par les processus physiques de diffusion, d'absorption et d'émission du rayonnement électromagnétique (Balkanski et al., 2006 ; Mishchenko et al., 2002), d'une manière qui reste toutefois à quantifier (IPCC, 2013), en raison de la grande complexité de ces particules, qui présentent une forme irrégulière, clairement non-sphérique, et parfois même une rugosité de surface (Nousiainen, 2009). Pour des particules de forme si complexe, il n'existe pas de solution analytique aux équations de Maxwell. En particulier, la théorie de Lorentz-Mie ne peut être appliquée à ces particules qui sont inhomogènes et non-sphériques. Ainsi, malgré les progrès récents dans le domaine numérique et en laboratoire, la diffusion de la lumière par ces particules de forme complexe est difficile à quantifier. Dans ce contexte, une expérience de laboratoire contrôlée a été construite au sein de l'équipe ATMOS de l'iLM, qui complète les installations expérimentales de laboratoire existantes en fournissant une évaluation précise des éléments de la matrice de rétrodiffusion d'aérosols divers. Notre Pi-polarimètre de laboratoire fournit des évaluations précises du rapport F_{22}/F_{11} des éléments de matrice en géométrie de rétrodiffusion stricte (i.e. à 180°) et ce à deux longueurs d'onde UV et VIS simultanément, ce qui améliore la connaissance sur les aérosols. En complément, la géométrie de rétrodiffusion permet d'envisager des applications en Télédétection lidar (Winker, 2009 ; David et al., ACP, 2013).

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2022-27947 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs

2. AEROSOLS ETUDIES

Les aérosols étudiés sont de nature diverse (minérale, sulfaté ou encore organique). Afin de souligner la complexité de l'aérosol, l'étude sera préférentiellement centrée sur l'aérosol minéral d'origine désertique, dont la complexité, notamment de forme, n'est plus à démontrer. Dans ce contexte, des échantillons de silice, composé majoritaire dans l'aérosol minéral mais aussi d'hématite (composé minoritaire) ont été étudiés. En complément, des études des propriétés spectrales et polarimétriques de mélanges de ces deux constituants seront présentées donnant lieu à deux aérosols désertiques de minéralogie différente (silica-rich, hematite-rich). Grâce à l'instrumentation disponible au laboratoire, une granulométrie de ces échantillons a pu être réalisée. En particulier, deux distributions de taille simulant les modes fins et grossiers présents dans l'atmosphère ont ainsi pu être générées en laboratoire.

3. PI-POLARIMETRE DE LABORATOIRE EN RETROFFUSION OPTIQUE

La figure 1 présente le polarimètre de laboratoire construit à l'iLM en géométrie d'exacte rétrodiffusion au prix d'un alignement très précis (1 mm / 10 mètres). La rétrodiffusion des particules générées est différenciée de celle due à l'air ambiant en mesurant le temps de vol de l'impulsion laser pour parcourir le chemin optique source-particules-détecteur. Le fonctionnement du polarimètre est décrit par le formalisme de la matrice de diffusion dont l'élément F_{22} diffère de F_{11}, du fait la non-sphéricité des particules minérales étudiées. Le polarimètre évalue le rapport F_{22}/F_{11} avec précision (< 1 %) pour la distribution de taille de l'aérosol généré et ce à deux longueurs d'onde (355 et 532 nm). Pour ce faire, l'intensité rétrodiffusée est analysée pour différents états de polarisation et l'ajustement, via le formalisme de la matrice de diffusion, de cette loi de variation, permet une évaluation très précise du rapport F_{22}/F_{11} (Miffre et al., JQSRT, 2016).

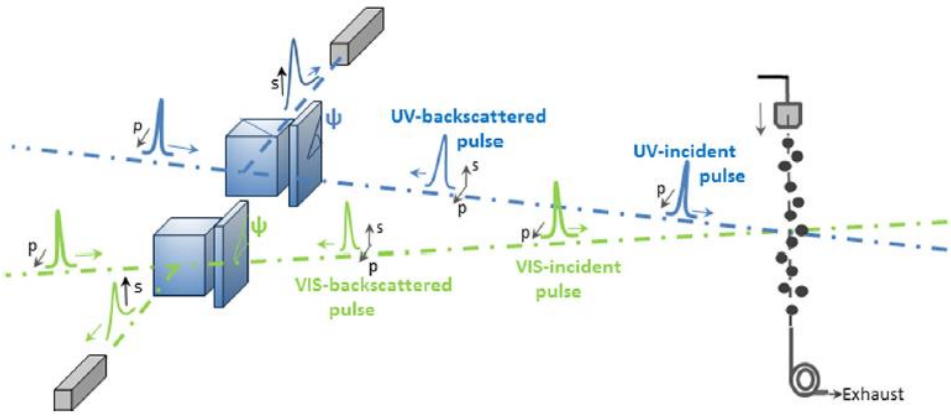

Figure 1. Schéma de principe du polarimètre de laboratoire en géométrie d'exacte rétrodiffusion (Miffre et al., JQSRT 2016). L'expérience est réalisée simultanément dans l'UV et le VIS.

4. RÉSULTATS EXPERIMENTAUX ET DISUCSSION

La Table 1 présente l'évaluation des éléments de la matrice de diffusion pour les quatre échantillons étudiés, et aux deux longueur d'onde λ_{UV} et λ_{VIS}. Les incertitudes de mesure sont suffisamment faibles pour mettre en évidence que ces quatre aérosols, lorsqu'ils sont contenus dans l'air ambiant, présentent des caractéristiques spectrales et polarimétriques de diffusion optique différentes. Un point important est que, en géométrie de rétrodiffusion, la dépolarisation de l'aérosol minéral est particulièrement sensible à la distribution de taille (SD) ainsi qu'à la minéralogie de l'aérosol considéré. Si dans la littérature, on voit souvent des dépolarisations d'aérosol désertique atteindre 30 %, notre mesure de laboratoire montre que ce résultat est en effet adapté mais pour une distribution de taille, une minéralogie et une longueur d'onde d'étude bien définies.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2022-27947 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs

Table 1 : Élément de matrice $f_{22} = F_{22}/F_{11}$ en rétrodiffusion pour les différents échantillons considérés (silice, hématite, sable d'Arizona, sable d'Asie) et dépolarisation associée.

		Fine SD		Coarse SD	
	Wavelength	$f^{\lambda}_{22,d}$	δ^{λ}_{d}(%)	$f^{\lambda}_{22,d}$	δ^{λ}_{d} (%)
Silica (SiO_2)	λ_{UV}	0.62 ± 0.03	23.3 ± 1.1	0.51 ± 0.02	32.8 ± 1.1
	λ_{VIS}	0.75 ± 0.05	14.2 ± 1.0	0.62 ± 0.03	23.6 ± 1.3
Hematite (Fe_2O_3)	λ_{UV}	0.81 ± 0.20	10.8 ± 2.7	0.82 ± 0.06	9.7 ± 0.7
	λ_{VIS}	0.65 ± 0.12	21.1 ± 4.1	0.72 ± 0.05	16.6 ± 1.2
Arizona Dust	λ_{UV}	0.51 ± 0.01	32.6 ± 1.0	0.49 ± 0.02	33.9 ± 1.3
	λ_{VIS}	0.51 ± 0.02	32.2 ± 1.6	0.47 ± 0.02	36.2 ± 1.4
Asian Dust	λ_{UV}	0.60 ± 0.02	24.7 ± 0.7	0.60 ± 0.02	24.8 ± 0.9
	λ_{VIS}	0.61 ± 0.03	24.4 ± 1.2	0.56 ± 0.02	28.4 ± 1.0

5. CONCLUSION

Nos mesures de laboratoire, uniques au monde à notre connaissance, montrent que la rétrodiffusion de la lumière polarisée est un processus complexe, fortement dépendant de la taille de l'aérosol mais aussi de sa minéralogie. Ce résultat a pu être établi en tirant parti de la sensibilité et de la précision extrême d'un Pi-polarimètre de laboratoire à aérosols (Miffre et al., JQSRT, 2016). Ce travail sera soumis à publication à l'automne 2021. Si le temps le permet, la rétrodiffusion d'agrégats de suie de combustion, réalisée en coopération avec l'ONERA (Paulien et al., JQSRT, 2021) et celle d'organosulfates, réalisée en coopération avec l'IRCELYON (Dubois et al., PCCP, 2021), sera aussi présentée. Ainsi, pour la première fois, le rapport de dépolarisation des particules des agrégats de suie fraîchement émis a pu être évalué en laboratoire (Paulien et al., JQSRT, 2021). De plus, dans les limites de la sensibilité et de la précision de notre polarimètre Pi de laboratoire, nous avons pu mettre en évidence une diminution nette de la rétrodiffusion de la lumière par l'aérosol de sulfate en présence de composés organiques, donnant lieu à des structures cœur-coquille (Dubois et al., PCCP, 2021). Les composés organiques étant parmi les plus importants précurseurs d'aérosols organiques secondaires dans l'atmosphère, cette découverte de laboratoire pourrait s'avérer essentielle pour quantifier le forçage radiatif direct des sulfates en présence de composés organiques, ce qui permettrait de déterminer plus clairement l'impact de ces particules d'aérosol sur le climat de la Terre.

Balkanski, Y. and Schulz, M. and Claquin, T. and Guibert, S. (2007): Reevaluation of Mineral aerosol radiative forcings suggests a better agreement with satellite and AERONET data, Atm. Chem. Phys., 7, 1, 81-95.

David G., B. Thomas, E. Coillet, A. Miffre and P. Rairoux (2013): Polarization-resolved exact light backscattering by an ensemble of particles in air, Opt. Express, 21, 16, 18624-18639.

Dubois, C., D. Cholleton, R. Gemayel, Y. Chen, J.D. Surratt, C. George, P. Rairoux, A. Miffre and M. Riva, Decrease in sulfate aerosol light backscattering due to reactive uptake of epoxydiols, Phys. Chem. Chem. Phys, 23:5927-5935, 2021.

Nousiainen T.: Optical modeling of mineral dust particles: a review (2009) : J. Quant. Spec. Rad. Transf., 110, 1261-1279.

IPCC: Climate Change (2013): The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 1535 pp.

Miffre A., Mehri T., Francis M., Rairoux P : UV– VIS depolarization from Arizona Test Dust particles at exact backscattering angle (2016):J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., 169 , 79 –90.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2022-27947 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs

Mishchenko M.I., L.D. Travis and A.A. Lacis (2002): Scattering, absorption and emission of Light by small particles, 3rd edition, Cambridge University Press, UK.

Paulien, L., R. Ceolato, F. Foissard, P. Rairoux and A. Miffre, (UV, VIS) Laboratory evaluation of the lidar depolarization ratio of freshly emitted soot aggregates from pool fire in ambient air at exact backscattering angle, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 260:107451, 2021.

Winker, D.M., Pelon, J., Coakley, J.A., Ackerman, S.A., Charlson, R.J., Colarco, P.R., Flamant, P., Fu, Q., Hoff, R.M., Kittaka, C., Kubar, T.L., Le Treut, H., McCormick, M.P., Mégie, G., Poole, L., Powell, K., Trepte, C., Vaughan, M.A., Wielicki, B.A. (2010): The CALIPSO mission: a global 3D view of aerosols and clouds. Bull. Am. Meteorol. Soc. 91 (9), 1211–1229.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2022-27947 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs