PROPRIÉTÉS OPTIQUES SPECTRALES DES AÉROSOLS ABSORBANTES – DE LA SIMULATION DE LABORATOIRE AUX EFFETS SUR LE CLIMAT ET APPORT À LA TÉLÉDÉTECTION

C. Di Biagio*[1], P. Formenti[1], J. Heuser[2], L. Fayad[1], C. Baldo[1,2], P. Alalam[1], M. Cazaunau[2], E. Pangui[2], A. Bergé[2], B. Picquet Varrault[2], et J. F. Doussin[2]

[1]Université Paris Cité and Univ Paris Est Creteil, CNRS, LISA, F-75013 Paris, France
[2]Univ Paris Est Creteil and Université Paris Cité, CNRS, LISA, F-94010 Créteil, France
*Courriel de l'orateur : claudia.dibiagio@lisa.ipsl.fr

TITLE

Spectral optical properties of absorbing aerosols – from laboratory simulation studies to the effects on climate and contribution to remote sensing

RESUME

Les aérosols absorbants (poussières minérales et aérosols contenant du Black Carbon, BC, ou du Brown Carbon, BrC) ont un rôle clé dans le bilan radiatif et le climat. Malgré cela, ils restent peu connus en termes de leurs propriétés optiques spectrales (i.e. indice complexe de réfraction, sections efficaces d'absorption/diffusion), ce qui empêche de bien les représenter dans les modèles globaux et algorithmes de télédétection sol/satellite. Afin de progresser dans ce domaine de recherche, une approche originale consistant à étudier les propriétés optiques spectrales des aérosols via la simulation expérimentale de laboratoire a été développée au sein de la chambre de simulation CESAM (Chambre de Simulation Atmosphérique Multiphasique) du LISA. Cette présentation vise à fournir une vision des activités menées à CESAM sur l'étude des poussières minérales, BC et BrC, et illustrera son apport clé à la modélisation et télédétection par des études récentes et perspectives futures.

ABSTRACT

Absorbing aerosols (mineral dust and carbonaceous aerosols containing black carbon, BC, or brown carbon, BrC) play a key role in the radiative budget and climate. Despite, little is known about their spectral optical properties (i.e., complex refractive index, absorption/scattering cross sections), which prevents them from being properly represented in global models and ground/satellite remote sensing algorithms. In order to progress in this research field, an original approach to study the spectral optical properties of aerosols via experimental laboratory simulation in the CESAM simulation chamber (Experimental Multiphasic Atmospheric Simulation Chamber) has been developed at LISA. This presentation aims to provide an overview of the activities carried out at CESAM to study mineral dust, BC and BrC, and will illustrate its key contribution to modelling and remote sensing through recent studies and future perspectives.

MOTS-CLÉS: poussières désertiques, aérosols carbonées, indice de réfraction, simulation de laboratoire, transfert radiatif / **KEYWORDS:** mineral dust, carbonaceous aerosols, refractive index, laboratory simulations, radiative transfer

1. LES AEROSOLS ABSORBANTES DANS LE SYSTEME CLIMATIQUE

Les aérosols ont un rôle clé dans le système climatique. Par absorption et diffusion du rayonnement solaire et infrarouge les aérosols modifient le bilan énergétique planétaire (effet radiatif direct) avec des conséquences sur le cycle hydrologique et des rétroactions sur les champs météorologiques, la dynamique atmosphérique, ainsi que les émissions des espèces particulaires elles-mêmes (Foster et al., 2007; Boucher et al., 2013). Parmi les aérosols, ceux ayant un impact le plus important sur le bilan radiatif sont les espèces absorbantes, c'est-à-dire les poussières minérales générées par érosion éolienne depuis les déserts globaux (Knippertz and Stuut, 2014), et les aérosols contenant du Black Carbon (BC) ou du Brown Carbon (Brc) (Bond et al., 2013; Andreae, M. O. and Gelencsér, 2006). Ces derniers sont issus de la combustion incomplète des combustibles fossiles ou de la biomasse ou encore peuvent etre générés comme des aérosols organiques secondaires à partir des précurseurs anthropiques et biogéniques (Laskin et al., 2015). Les poussières et le BC/BrC particulaires absorbent le rayonnement de l'UV (ultraviolet) jusqu'à l'IR (infrarouge), avec des signatures spectrales caractéristiques qui les rendent « détectables » par observations depuis le sol et par les satellites (e.g., Sokolik et al., 2002).

Les aérosols absorbants jouent un rôle très important dans le climat présent, et l'impact de ces aérosols devrait augmenter à l'avenir en raison de la désertification de plusieurs régions du monde, ainsi que de l'augmentation de la fréquence des incendies liée au changement climatique et à l'anthropisation croissante des pays en cours de développement. Malgré cela, l'évaluation de l'effet radiatif direct des aérosols absorbants par les

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2024-40096 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs

modèles reste à ce jour l'une des plus grandes incertitudes dans l'évaluation du forçage climatique (Szopa et al., 2021). En effet, à ce jour, ni l'amplitude ni même le signe du terme de forçage radiatif direct de ces aérosols ne sont connus (Bellouin et al., 2021). Une des raisons pour cela repose sur l'incapacité à représenter les propriétés optiques spectrales de ces aérosols (tels que l'indice complexe de réfraction ou les sections efficaces d'absorption/diffusion) en fonction des différentes voies de formation des particules et leurs modifications liées à différents processus de vieillissement atmosphérique, ainsi qu'à définir leurs liens avec la composition et la morphologie des particules (e.g., Samset et al., 2018).

2. L'APPROCHE DE SIMULATION DE LABORATOIRE DEVELOPPE' À LA CHAMBRE CESAM

Afin de progresser dans ce domaine de recherche, une approche originale consistant à étudier les aérosols via la simulation expérimentale de laboratoire a été développée au sein de la chambre de simulation CESAM (Chambre de Simulation Atmosphérique Multiphasique, https://cesam.cnrs.fr/; Wang et al., 2011) du LISA (Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques), instrument nationale du CNRS/INSU (Institut National des Sciences de l'Univers) et plateforme exploratoire du réseau ACTRIS-EU (The Aerosol, Clouds, and Trace Gases Research Infrastuscture, https://www.actris.eu/). L'approche de simulation de laboratoire permet d'étudier les différents types d'aérosols dans des conditions réalistes mais contrôlées, permettant d'accéder à des mesures souvent difficilement accessibles en atmosphère et aussi d'étudier du point de vue mécanistique des processus divers et complexes (Doussin et al., 2023).

La chambre CESAM (Figure 1) est une enceinte de 4.2 m^3 en acier inoxydable où les aérosols, à la fois de type primaire et secondaires, peuvent etre générées, suspendus, et vieilli et leurs propriétés physico-chimiques et optiques mesurées grâce à la suite instrumentale de la chambre, ce qui permet d'en étudier leurs variations couplées. La chambre est équipée d'un système d'irradiation permettant de reproduire le spectre solaire, et des processus de chimie multiphasiques peuvent etre simulées. Les aérosols ont un temps de vie en CESAM que varie entre quelque heures et > 24 heures selon la taille des particules. Un système de génération des poussières minérales qui se base sur l'agitation mécanique des sols naturels a été développé à la chambre CESAM permettant de réaliser des études innovantes sur les propriétés optiques spectrales des aérosols minéraux (Di Biagio et al., 2017, 2019; Baldo et al., 2020, 2023). Egalement, des études originaux sur les processus de formation et propriétés des aérosols carbonées ont été réalisées dans les années récents (e.g., Heuser et al., 2023 ; De Haan et al., 2017; 2019).

Figure 1. Photo de la chambre CESAM.

La simulation expérimentale de laboratoire est aujourd'hui une approche phare pour faire progresser notre compréhension sur les propriétés optiques spectrales des aérosols au cours de leur cycle de vie et ainsi améliorer la modélisation du climat et la télédétection sol/satellite. Cette présentation vise à fournir une vision des activités menées à la chambre CESAM sur l'étude des propriétés optiques spectrales des poussières minérales, BC et BrC, et illustrera son apport clé à la modélisation et télédétection par des études récentes et perspectives futures.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2024-40096 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs

Ce travail a été soutenu par le CNRS-INSU (Institut National des Sciences de l'Univers), le projet d'infrastructure EUROCHAMP-2020 (Grant Agreement No 730997), le LEFE/INSU (Les Enveloppes Fluides et l'Environnement), le PNTS/INSU (Programme Nationale de Télédétection Spatiale), l'OSU-EFLUVE (Observatoire des Sciences de l'Univers-Enveloppes Fluides de la Ville a l'Exobiologie), l'Agence Nationale de la Recherche (projet B2C, ANR-19-CE01-0024 CLIMDO, ANR-19-CE01-0008), le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales), et l'infrastructure de recherche ACTRIS-FR. Les données de la chambre CESAM sont distribué via le data center EUROCHAMP (https://data.eurochamp.org/) maintenu par le pôle des données AERIS (www.aeris- data.fr).

Andreae, M. O. and Gelencsér, A.: Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols, Atmos. Chem. Phys., 6, 3131–3148, https://doi.org/10.5194/acp-6-3131-2006, 2006.

Baldo, C., Formenti, P., Nowak, S., Chevaillier, S., Cazaunau, M., Pangui, E., Di Biagio, C., Doussin, J.-F., Ignatyev, K., Dagsson-Waldhauserova, P., Arnalds, O., MacKenzie, A. R., and Shi, Z.: Distinct chemical and mineralogical composition of Icelandic dust compared to northern African and Asian dust, Atmos. Chem. Phys., 20, 13521–13539, https://doi.org/10.5194/acp-20-13521-2020, 2020.

Baldo, C., Formenti, P., Di Biagio, C., Lu, G., Song, C., Cazaunau, M., Pangui, E., Doussin, J.-F., Dagsson-Waldhauserova, P., Arnalds, O., Beddows, D., MacKenzie, A. R., and Shi, Z.: Complex refractive index and single scattering albedo of Icelandic dust in the shortwave part of the spectrum, Atmos. Chem. Phys., 23, 7975–8000, https://doi.org/10.5194/acp-23-7975-2023, 2023.

Bellouin, N., Quaas, J., Gryspeerdt, E., Kinne, S., Stier, P., Watson-Parris, D., et al. (2020). Bounding global aerosol radiative forcing of climate change. Reviews of Geophysics, 58, e2019RG000660.

Bond, T. C., et al. (2013), Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment, J. Geophys. Res. Atmos., 118, 5380–5552, doi:10.1002/jgrd.50171.

Boucher, O., D. Randall, P. Artaxo, C. Bretherton, G. Feingold, P. Forster, V.-M. Kerminen, Y. Kondo, H. Liao, U. Lohmann, P. Rasch, S.K. Satheesh, S. Sherwood, B. Stevens and X.Y. Zhang, 2013: Clouds and Aerosols. In: 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, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.

De Haan, David O. ; Hawkins, Lelia N. ; Welsh, Hannah G. ; Pednekar, Raunak ; Casar, Jason R. ; Pennington, Elyse A. ; de Loera, Alexia ; Jimenez, Natalie G. ; Symons, Michael A. ; Zauscher, Melanie ; Pajunoja, Aki, Lorenzo Caponi, Mathieu Cazaunau, Paola Formenti, Aline Gratien, Edouard Pangui, Jean-Francois Doussin, Brown Carbon Production in Ammonium-or Amine-Containing Aerosol Particles by Reactive Uptake of Methylglyoxal and Photolytic Cloud Cycling, Environmental Science and Technology, 51**,** 7458-7466, 10.1021/acs.est.7b00159, 2017

D. de Haan, A. Pajunoja, L. Hawkins, H. Welsh, N. Jimenez, A. de Loera, M. Zauscher, A. Andretta, B. Joyce, A. de Haan, M. Riva,T. Cui, J. Surratt, Mathieu Cazaunau, Paola Formenti, Aline Gratien, Edouard Pangui, Jean-Francois Doussin, Methylamine's Effects on Methylglyoxal-Containing Aerosol: Chemical, Physical, and Optical Changes, ACS Earth and Space Chemistry, ACS, 3 (9)**,** 1706-1716, https://doi.org/10.1021/acsearthspacechem.9b00103, 2019

Di Biagio, C., Formenti, P., Styler, S. A., Pangui, E., & Doussin, J.-F. (2014). Laboratory chamber measurements of the longwave extinction spectra and complex refractive indices of African and Asian mineral dusts. Geophysical Research Letters, 41, 6289–6297. https://doi.org/10.1002/2014GL060213.

Di Biagio, C., Formenti, P., Balkanski, Y., Caponi, L., Cazaunau, M., Pangui, E., et al. (2017). Global scale variability of the mineral dust long-wave refractive index: A new dataset of in situ measurements for climate modeling and remote sensing. Atmospheric Chemistry and Physics, 17(3), 1901–1929. https://doi.org/10.5194/acp-17-1901-2017

Di Biagio, C., Formenti, P., Balkanski, Y., Caponi, L., Cazaunau, M., Pangui, E., et al. (2019). Complex refractive indices and single scattering albedo of global dust aerosols in the shortwave spectrum and relationship to iron content and size. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 19(24), 15,503–15,531. https://doi.org/10.5194/acp-2019-145

Doussin, J.-F.; Fuchs, H.; Kiendler-Scharr, A.; eakins, P.; Wenger, J. A S Practical Guide to Atmospheric Simulation Chambers; Springer: Berlin/Heidelberg, Germany, 2023.

Forster, P., V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, R. Betts, D.W. Fahey, J. Haywood, J. Lean, D.C. Lowe, G. Myhre, J. Nganga, R. Prinn, G. Raga, M. Schulz and R. Van Dorland, 2007: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M.Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.

Heuser, J., C. Di Biagio, L. Renzi, A. Marinoni, J. Yon M. Zanatta, C. Yu, A. Bergé, M. Cazaunau, S. Chevaillier, P. Laj, D. Massabo', G. Noyalet, E. Pangui, P. Prati, B. Temime-Roussell, R. Vecchi, V. Bernardoni, V. Vernocchi, and J.F. Doussin, Simulation chamber study of the spectral mass absorption, scattering, and extinction cross-sections (MAC, MSC, MEC) of fresh and aged combustion aerosols, EGU General Assembly, 23-28 April 2023, Wien, Austria.

Knippertz, P., & Stuut, J.-B. W. (2014). Mineral Dust a Key Player in the Earth System. Dordrecht: Springer.

Laskin, A.; Laskin, J.; Nizkorodov, S. A. Chemistry of Atmospheric Brown Carbon. Chem. Rev. 2015, 115, 4335–4382.

Samset, B.H., Stjern, C.W., Andrews, E. *et al.* Aerosol Absorption: Progress Towards Global and Regional Constraints. *Curr Clim Change Rep* 4, 65–83 (2018). https://doi.org/10.1007/s40641-018-0091-4.

Sokolik, I. N.: The spectral radiative signature of windblown mineral dust: Implications for remote sensing in the thermal IR region, Geophys. Res. Lett., 29, 2154, doi:10.1029/2002GL015910, 2002.

Szopa, S., V. Naik, B. Adhikary, P. Artaxo, T. Berntsen, W.D. Collins, S. Fuzzi, L. Gallardo, A. Kiendler-Scharr, Z. Klimont, H. Liao, N. Unger, and P. Zanis, 2021: Short-Lived Climate Forcers. In Climate Change 2021: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 817–922, doi: 10.1017/9781009157896.008.

Wang, J., Doussin, J. F., Perrier, S., Perraudin, E., Katrib, Y., Pangui, E., and Picquet-Varrault, B.: Design of a new multi-phase experimental simulation chamber for atmospheric photosmog, aerosol and cloud chemistry research, Atmos. Meas. Tech., 4, 2465–2494, https://doi.org/10.5194/amt-4-2465-2011, 2011.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2024-40096 Cet article est publié sous la seule responsabilité de ses auteurs