

Frédéric Laly^{1*}, Alexandre Marpillat¹, Vincent Crenn¹, David Le Dur¹, Julien Totems² et Patrick Chazette²

¹ ADDAIR – 189 rue Audemars, 78530 Buc, France

² CEA/LSCE – Orme des Merisiers, 91190 Saint-Aubin, France

*Courriel de l'orateur : frederic.laly@lsce.ipsl.fr

TITLE

How does humidity affect lidar-derived aerosol backscatter coefficient, and how does it compare with CAMS?

RESUME

Les lidars Raman permettent d'étudier le comportement de propriétés optiques des aérosols en fonction de l'humidité relative. Les données de deux campagnes de mesure ont été analysées. La première s'est déroulée au printemps 2020 sur le site du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) et la seconde au cours de l'été 2024 sur le site de l'Observatoire de Paris, pendant la période des jeux olympiques de Paris 2024. Au cours de la seconde campagne, un granulomètre optique FIDAS 200 ainsi qu'un analyseur « Black Carbon » étaient installés avec un lidar Raman, permettant d'affiner l'étude du contenu de l'atmosphère en aérosols. L'analyse de l'influence de la composition chimique des aérosols, réalisée avec le modèle CAMS, en lien avec l'origine des masses d'air, ainsi que leur relation avec la croissance hygroscopique des particules permettent d'affiner la compréhension des interactions entre les aérosols et la vapeur d'eau, qui constituent aujourd'hui l'une des principales sources d'incertitude dans l'évaluation du bilan radiatif de la Terre.

ABSTRACT

Raman lidars enable the study of the behaviour of aerosol optical properties as a function of relative humidity. Data from two measurement campaigns were analysed. The first took place in spring 2020 at the Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) site, and the second in summer 2024 at the Paris Observatory site, during the Paris 2024 Olympic Games. During the second campaign, a FIDAS particle size spectrometer and a Black Carbon analyser were installed with Raman lidar, enabling a more detailed study of the aerosol content of the atmosphere. The analysis of the influence of the chemical composition of aerosols, carried out using the CAMS model, in relation to the origin of air masses and their relationship with the hygroscopic growth of particles, provides a more detailed understanding of the interactions between aerosols and water vapour, which are currently one of the main sources of uncertainty in the assessment of the Earth's radiation balance.

MOTS-CLÉS : lidar, aérosol, hygroscopicité, CAMS / **KEYWORDS**: lidar, aerosol, hygroscopicity, CAMS

1. INTRODUCTION

Les interactions entre la vapeur d'eau et les aérosols constituent aujourd'hui l'une des sources d'incertitude les plus importantes concernant le forçage radiatif des particules (Haywood and Boucher, 2000; IPCC, 2023). La vapeur d'eau est à la base de la formation des nuages en interagissant avec des noyaux de condensation mais elle joue aussi un rôle fondamental sur le vieillissement des particules changeant grandement leurs propriétés radiatives. En effet, les aérosols peuvent avoir une capacité hygroscopique, qui correspond à leur aptitude à absorber la vapeur d'eau. Cette propriété a d'abord été décrite théoriquement par Hanel (Hänel, 1976), qui a montré qu'un aérosol augmente en taille et diminue en indice de réfraction complexe lorsque l'humidité augmente, modifiant ainsi ses propriétés optiques et physicochimiques. L'hygroscopicité des aérosols est dépendante de la nature et l'origine des particules ainsi que de leur vieillissement. Bien que de nombreux progrès ont été faits pour modéliser les propriétés physicochimiques des aérosols ainsi que leur transport, l'étude du pouvoir hygroscopique est encore limitée. En effet les techniques de mesure in situ, tels que les néphélomètres humidifiés en tandem, permettent une étude précise de l'hygroscopicité. Cependant la mesure est faite dans une cavité où il est possible de contrôler l'humidité, et non dans la colonne d'air où les conditions atmosphériques changent fortement. Cette différence dans les conditions de mesure peut induire des biais limitants la caractérisation du pouvoir hygroscopique des particules. C'est à cette limitation que répond la technique de télédétection active lidar qui permet, dans certaines conditions, d'étudier l'évolution de différentes propriétés optiques des aérosols en fonction de l'humidité relative. De par la non altération des particules lors des mesures, l'étude de l'hygroscopicité par lidar a un potentiel pour affiner et compléter la modélisation des interactions entre aérosols et vapeur d'eau.

2. LE LIDAR RAMAN

Le lidar WALI (Weather and Aerosol Lidar, <https://metclim-lidars.aeris-data.fr/wali/>) est un système mobile développé au LSCE qui échantillonne la troposphère pour l'étude des propriétés optiques des aérosols

(Chazette et al., 2016), la vapeur d'eau (Laly et al., 2024; Totems et al., 2019) et la température (Baron et al., 2022). Il fonctionne dans la partie ultraviolette du spectre, à la longueur d'onde de ~355 nm, avec un champ de vision de 2 mrad permettant un recouvrement complet des trajets d'émission et de réception au-delà de ~200-300 m. Plusieurs paramètres optiques des aérosols sont extraits de deux canaux à polarisation croisée couplés à un canal Raman sur la molécule de diazote de l'air à ~387 nm (Royer et al., 2011) : i) le coefficient de rétrodiffusion des aérosols, ii) le rapport lidar (rapport des coefficients d'extinction et de rétrodiffusion des aérosols) qui dépend de la taille et de la composition chimique des particules, iii) le rapport de dépolarisation linéaire en volume, iv) le rapport de dépolarisation linéaire des particules qui permet d'identifier la nature des particules et v) l'épaisseur optique de l'aérosol qui renseigne sur le contenu intégré d'aérosol dans la colonne d'air. Le rapport de mélange de la vapeur d'eau est également dérivé des canaux Raman à ~387 et ~407 nm pour le diazote et la vapeur d'eau, respectivement. La température est dérivée de deux canaux Raman rotationnels combinant les lignes Raman du diazote et du dioxygène à proximité de la ligne élastique de Cabannes centrée à 354,7 nm. L'humidité relative (RH) est calculée en utilisant la mesure du rapport de mélange et la température. Une photo de l'instrument est présentée Figure 1.



Figure 1. Photo de la station MAS (Mobile Atmospheric Station) prise sur le site de l'Observatoire de Paris. Le lidar WALL est implémenté à bord du camion. Sur le toit de la station sont installés un appareil de mesure FIDAS ainsi qu'un analyseur de particules Black Carbon.

3. OBSERVATIONS

La théorie d'Hänel (Hänel, 1976) permet l'étude du pouvoir hygroscopique des aérosols. Afin de l'étudier par lidar, on utilise la fonction de rétrodiffusion f_{β_a} , selon la formule :

$$f_{\beta_a}(RH) = \frac{\beta_a(RH)}{\beta_a(RH_{ref})} = \left(\frac{1 - RH}{1 - RH_{ref}} \right)^{-\gamma} \quad (1)$$

Où RH est l'humidité relative et β_a le coefficient de rétrodiffusion des aérosols. γ est le coefficient d'Hänel. Généralement compris entre 0 et 1,5, ce paramètre renseigne sur les propriétés hygroscopiques des particules. Plus il est élevé, plus les aérosols sont dits hygroscopiques et peuvent capter de l'eau. Les aérosols de type poussières sont ainsi peu hygroscopiques ($\gamma \sim 0,2$), alors que les sels de mer le sont fortement ($\gamma \sim 1 - 1,5$). Dans la loi Eq.1 apparaît une humidité relative de référence (RH_{ref}). Cette valeur est généralement choisie au moment où l'aérosol commence à grossir, ce qui correspond à peu près au point de déliquescence (DRH), généralement entre 40 % et 60 % selon les composés chimiques (Randriamiarisoa et al., 2006). Un exemple de mesure d'hygroscopicité par lidar est présenté Figure 2. Il est important de noter que l'étude de l'hygroscopicité par lidar ne peut se faire que dans certaines conditions de stabilité atmosphérique : i) le gradient de température potentiel dans la couche étudiée doit être faible, ii) le rapport de mélange en vapeur d'eau doit être quasi constant dans la zone d'étude. Ces conditions permettent de s'assurer que l'hygroscopicité des aérosols est uniquement liée à l'augmentation de l'humidité relative. Elles garantissent également une homogénéité de la composition et de la granulométrie des particules (Chazette et al., 2005).

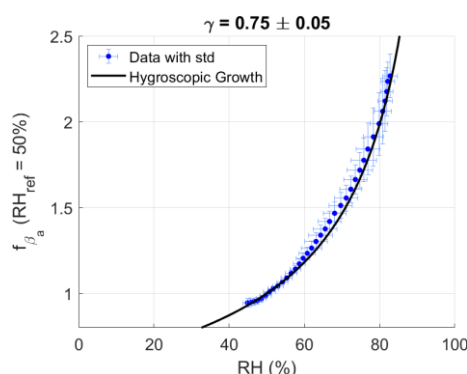


Figure 2. Évolution de la fonction de rétrodiffusion en fonction de l'humidité relative. Les mesures ont été effectuées sur le site du LSCE le 27/05/2020 entre 19h et 20h30 (UTC). Le coefficient d'Hänel correspondant à la courbe est donné au-dessus de la figure avec son incertitude.

Dans une étude présentée dans l'article Laly et al. (2025), 8 études de cas d'hygroscopicité mesurées par lidar ont été analysées. Afin de renseigner sur la composition des particules présentes dans chaque étude de cas, les auteurs ont utilisé les analyses et réanalyses du CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service, <https://ads.atmosphere.copernicus.eu/datasets>) donnant le rapport de mélange de différentes espèces d'aérosols (Figure 3). Les valeurs ainsi trouvées par lidar sont cohérentes avec les compositions estimées par les modèles CAMS ainsi qu'avec celles trouvées dans littérature par d'autres auteurs (Laly et al., 2025). La synergie des mesures lidars avec les outils de modélisation de chimie-transport des particules atmosphériques permet ainsi de décrire le comportement hygroscopique de différents types d'aérosols.

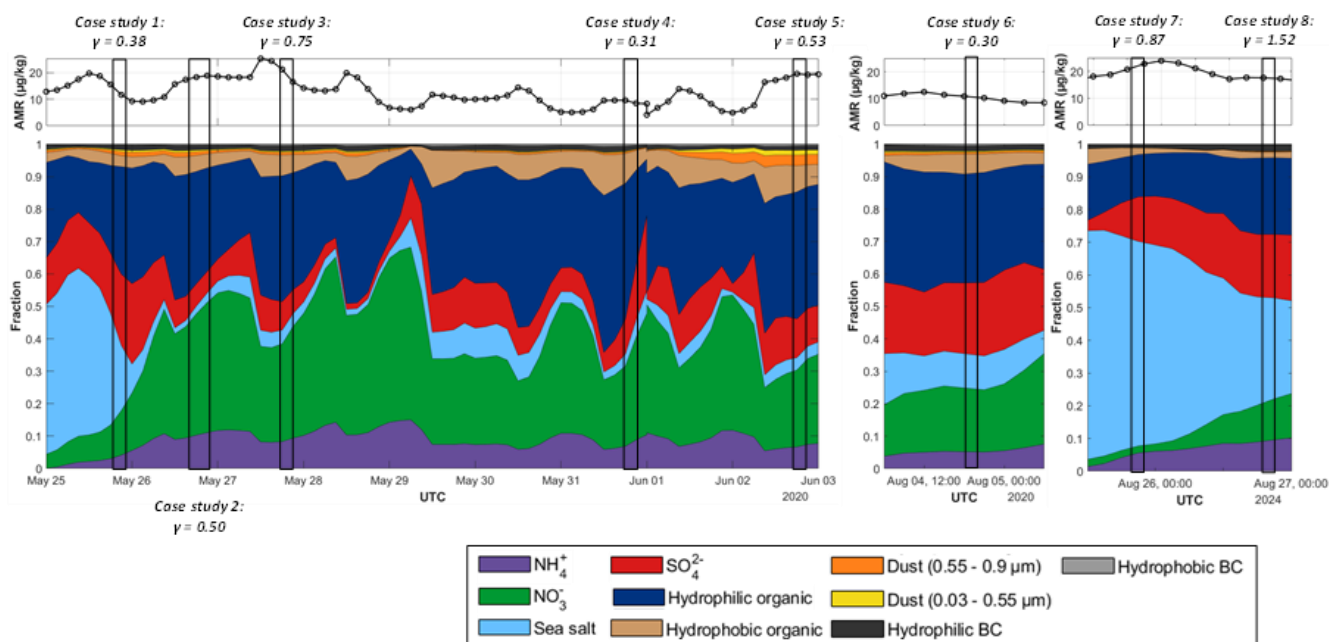


Figure 3. Évolution temporelle de la fraction des différents composés atmosphériques. Au-dessus est tracée l'évolution temporelle du rapport de mélange des aérosols (AMR en $\mu\text{g.kg}^{-1}$) pour toutes les espèces combinées. Les rectangles noirs indiquent la période de chaque étude de cas avec le coefficient d'Hänel (γ) associé, basé sur l'humidogramme du coefficient de rétrodiffusion des aérosols mesuré par lidar. Les couleurs représentent les différents composés chimiques des aérosols, comme indiqué dans la légende. Pour ces figures, les résultats de l'analyse et de la réanalyse CAMS ont été combinés, avec le contenu chimique extrait entre 950 et 850 hPa, comprenant les couches d'aérosols pertinentes. Figure tirée de Laly et al. (2025).

4. CONCLUSION

Les instruments lidar, tels que ceux développés au LSCE, offrent une capacité unique de mesure simultanée des propriétés optiques des aérosols et de l'humidité relative, avec une haute résolution verticale et temporelle. Ces observations permettent d'accéder au caractère hygroscopique des aérosols, contribuant ainsi à une meilleure compréhension des interactions entre vapeur d'eau et particules atmosphériques, interactions encore aujourd'hui sources majeures d'incertitude dans les bilans radiatifs et les prévisions climatiques. De plus, la concentration massique en particules peut être déduite en utilisant un étalonnage comme celui

proposé par Raut et Chazette (2009), renforçant l'intérêt de cette technologie pour les études intégrées air-climat. À ce jour, le lidar demeure la seule technologie capable d'échantillonner la troposphère avec une telle résolution et continuité, ouvrant la voie à une meilleure représentation de la variabilité spatio-temporelle des aérosols et l'étude de leurs propriétés optiques et physicochimiques. Dans un contexte de changement climatique et d'enjeux croissants de santé publique, cette capacité d'observation constitue un atout majeur pour l'adaptation et la gestion des épisodes extrêmes de pollution ou de météorologie. Les travaux menés conjointement par l'École des Ponts et Chaussées et le CEA ont déjà montré l'apport du lidar dans l'amélioration de la prédictivité météorologique (Wang et al., 2013). Plus récemment, son potentiel pour la prévision des événements extrêmes de précipitation a été confirmé dans le cadre du programme scientifique WaLiNeAs (Flamant et al., 2021; Laly & Chazette, 2025). Ainsi, la technologie lidar atteint aujourd'hui un niveau de maturité suffisant pour répondre aux besoins opérationnels de la météorologie et de la qualité de l'air. Son intégration dans les réseaux de surveillance nationaux offrirait une avancée majeure pour le suivi en temps réel et la prévision des conditions atmosphériques, renforçant le lien entre observation, modélisation et action publique.

- Baron, A., Chazette, P., & Totems, J. (2022). Extreme temperature events monitored by Raman lidar: Consistency and complementarity with spaceborne observations and modelling. *Meteorological Applications*, 29(5). <https://doi.org/10.1002/met.2062>
- Chazette, P., Randriamiarisoa, H., Sanak, J., Couvert, P., & Flamant, C. (2005). Optical properties of urban aerosol from airborne and ground-based in situ measurements performed during the Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France (ESQUIF) program. *Journal of Geophysical Research D: Atmospheres*, 110(2). <https://doi.org/10.1029/2004JD004810>
- Chazette, P., Totems, J., Ancellet, G., Pelon, J., & Sicard, M. (2016). Temporal consistency of lidar observations during aerosol transport events in the framework of the ChArMEx/ADRIMED campaign at Minorca in June 2013. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(5). <https://doi.org/10.5194/acp-16-2863-2016>
- Flamant, C., Chazette, P., Caumont, O., Di Girolamo, P., Behrendt, A., Sicard, M., Totems, J., Lange, D., Fourrié, N., Brousseau, P., Augros, C., Baron, A., Cacciani, M., Comerón, A., De Rosa, B., Ducrocq, V., Genau, P., Labatut, L., Muñoz-Porcar, C., ... Wulfmeyer, V. (2021). A network of water vapor Raman lidars for improving heavy precipitation forecasting in southern France: introducing the WaLiNeAs initiative. *Bulletin of Atmospheric Science and Technology*, 2(1–4). <https://doi.org/10.1007/s42865-021-00037-6>
- Hänel, G. (1976). The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with the surrounding moist air. *Advances in Geophysics*, 19(C). [https://doi.org/10.1016/S0065-2687\(08\)60142-9](https://doi.org/10.1016/S0065-2687(08)60142-9)
- Haywood, J., & Boucher, O. (2000). Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: A review. In *Reviews of Geophysics* (Vol. 38, Issue 4). <https://doi.org/10.1029/1999RG000078>
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC). (2023). Climate Change 2021 – The Physical Science Basis. In *Climate Change 2021 – The Physical Science Basis*. <https://doi.org/10.1017/9781009157896>
- Laly, F., & Chazette, P. (2025). Comparative analysis of ERA5 and Raman lidar-derived moisture profiles in the framework of the WaLiNeAs field campaigns. June, 1–26. <https://doi.org/10.1002/qj.5044>
- Laly, F., Chazette, P., Totems, J., Lagarrigue, J., Forges, L., & Flamant, C. (2024). Water vapor Raman-lidar observations from multiple sites in the framework of WaLiNeAs. <https://doi.org/10.5194/essd-2024-73>
- Laly, F., Chazette, P., Totems, J., Crenn, V., Ledur, D., & Marpillat, A. (2025). How does humidity affect lidar-derived aerosol optical properties, and how do they compare with CAMS?. *EGUsphere*, 2025, 1-27.
- Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., & Mégie, G. (2006). Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(5). <https://doi.org/10.5194/acp-6-1389-2006>
- Raut, J. C., & Chazette, P. (2009). Assessment of vertically-resolved PM10 from mobile lidar observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(21). <https://doi.org/10.5194/acp-9-8617-2009>
- Royer, P., Chazette, P., Lardier, M., & Sauvage, L. (2011). Aerosol content survey by mini N2-Raman lidar: Application to local and long-range transport aerosols. *Atmospheric Environment*, 45(39). <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.11.001>
- Totems, J., Chazette, P., & Raut, J. C. (2019). Accuracy of current Arctic springtime water vapour estimates, assessed by Raman lidar. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 145(720). <https://doi.org/10.1002/qj.3492>
- Wang, Y., Sartelet, K. N., Bocquet, M., & Chazette, P. (2013). Assimilation of ground versus lidar observations for PM10 forecasting. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(1). <https://doi.org/10.5194/acp-13-269-2013>