

**Calculs de la diffusion Mie appliqués
à l'observation de l'aérosol stratosphérique**

par CHRISTIAN MULLER (*)

Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique
Avenue Circulaire, 3, B-1180 Bruxelles, Belgique

Abstract. — Computations of Mie Scattering are performed in order to determine the distribution parameters of stratospheric aerosols from recent multispectral photographic observations obtained at balloon altitudes. The Mie theory is found to represent the observed data but implies much smaller particles for the background aerosol than deduced from sampling measurements.

La théorie de la diffusion du rayonnement électromagnétique par des sphères est déjà fort ancienne. Lord Rayleigh, Lorenz, Debye et Mie, ont été les premiers à développer au début de ce siècle, un formalisme acceptable susceptible d'expliquer des phénomènes aussi divers que la polarisation de la lumière du ciel ou les couleurs brillantes des solutions colloïdales [Kerker, 1969] mais ce n'est que depuis une vingtaine d'années que le calcul quantitatif de ces phénomènes est devenu possible. Auparavant, les théoriciens devaient se contenter de deux solutions asymptotiques : celle des petites particules correspondant à la diffusion Rayleigh et celle de l'optique géométrique correspondant à des particules très grandes par rapport à la longueur d'onde considérée. Actuellement, le développement des ordinateurs permet le calcul rigoureux de nombreux résultats dont l'obtention manuelle aurait demandé plusieurs vies humaines.

Le présent travail entend montrer comment la théorie de Mie peut être utilisée pour interpréter des observations photographiques de l'aérosol stratosphérique en terme de distribution de taille et même de concentration. La précision des résultats obtenus ainsi que leur domaine de validité sera traitée et ces observations déjà publiées

(*) Présenté par M. M. NICOLET.

[Ackerman *et al*, 1981] seront comparées avec les mesures les plus récentes de l'aérosol stratosphérique.

Le vol ballon, traité ici, a eu lieu le 15 octobre 1980 à partir d'Aire sur l'Adour (Sud Ouest de la France), l'altitude atteinte était de 37,6 km et l'observation a été effectuée lors du coucher de soleil. En résumé, l'instrumentation se limite à 7 caméras télécommandées; 2 paires de 3 caméras à 180° l'une et l'autre sont équipées de filtres centrés à 440 nm, 650 nm et 860 nm. La septième caméra est chargée de film couleur et peut éventuellement fournir une vérification des résultats obtenus par les 6 autres. La nacelle peut être orientée en azimuth en fonction de la position du soleil de manière à photographier tout l'horizon. L'image atténuée du soleil fournit une référence de densité optique qui permet, après le vol, de faire une analyse quantitative des films récupérés.

Une inversion des données brutes, décrite par Ackerman *et al* [1981] permet de déduire la fonction de phase de l'aérosol stratosphérique, c'est-à-dire la distribution angulaire de l'énergie diffusée par les particules. La méthode utilisée tient compte de la diffusion Rayleigh par les molécules d'air qui a pu être éliminée pour les trois longueurs d'ondes étudiées dans la couche d'aérosol de Junge [1961], située pour cette observation à 17 km. Une seconde couche plus fine et moins intense apparaît également à 22 km d'altitude, mais le bleu à 440 nm n'a pu y être exploité, la diffusion Rayleigh croissant en λ^{-4} . Une troisième mesure à 650 et 680 nm a été également effectuée à 14 km en vue de mesurer l'aérosol en dehors de couches bien définies. Le tableau 1 donne les résultats qui servent de base au présent travail.

TABLEAU I. — Résultats de l'observation : le facteur d'asymétrie g et l'extinction du rayonnement due à la diffusion $\Sigma'Q_{sca}n\sigma$ aux trois longueurs d'onde traitées.

	14 km	17 km	22 km
g_{440}	—	0,6	—
g_{650}	0,55	0,60	0,50
g_{860}	0,52	0,56	0,45
$\Sigma Q_{sca}n\sigma_{440} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	—	$3,2 \times 10^{-8}$	—
$\Sigma'Q_{sca}n\sigma_{650} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$0,4 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-8}$	$2,9 \times 10^{-9}$
$\Sigma'Q_{sca}n\sigma_{860} \text{ (cm}^{-1}\text{)}$	$1,9 \times 10^{-9}$	$2,7 \times 10^{-9}$	$9,3 \times 10^{-10}$

Les deux données mesurées aux 3 altitudes : la fonction de phase et sa valeur absolue doivent être modélisées pour permettre de déterminer la taille et la concentration des particules diffusantes, le seul outil disponible est la théorie de Mie. Des exposés classiques en ont été faits par van de Hulst [1957], Kerker [1969], Bayvel et Jones [1981] ; il en ressort qu'elle n'est rigoureusement valable que dans le cas de particules sphériques. Cependant, dans la plupart des cas atmosphériques elle peut être appliquée [Schuerman, 1979], soit qu'on puisse ramener une population de particules non sphériques à une population de sphères équivalentes, ce qui sera vrai lorsque le rayon moyen est largement inférieur à la longueur d'onde des particules ; soit que les gouttelettes d'aérosols soient liquides et affectent une forme quasi-sphérique.

L'analyse d'aérosols prélevés par Rosen [1971] et Toon et Pollack [1973] a conduit à une composition de 75 % d'acide sulfurique et de 25 % d'eau pour les particules aux altitudes inférieures à 25 km. Ce mélange présente un indice de réfraction réel de 1,55 et est transparent ; dans la troposphère par contre, on se trouve en présence de brumes de vapeur d'eau d'un indice de 1,33 pour lesquelles la plupart des travaux théoriques ont été effectués et aussi de divers types de poussières et de suies arrachés au sol ou provenant de phénomènes de pollution. Certains de ces aérosols ne sont plus transparents et présentent un indice de réfraction imaginaire important [Shettle et Fenn, 1979]. Ce travail n'entend pas non plus traiter le nuage de poussière consécutif à une explosion volcanique récente tel qu'il a pu être observé après l'éruption du Mont St. Helens [Ackerman *et al*, 1980]. L'aérosol liquide décrit ici est probablement d'origine volcanique indirecte, le dioxyde de soufre (SO_2) et le sulfure de carbone (COS), étant transportés dans la stratosphère et transformés en acide sulfurique (H_2SO_4) [Turco *et al*, 1979].

Muni des propriétés physiques de l'aérosol, les quantités suivantes doivent être calculées [notation de Kerker, 1969] : le facteur d'asymétrie g de la fonction de phase et l'efficacité de diffusion Q_{sca} ; g est la moyenne sur tout le cercle, du cosinus de l'angle de diffusion distribué suivant l'amplitude du rayonnement diffusé ; par exemple, pour une diffusion isotrope g vaudra 0, comme c'est le cas pour la diffusion Rayleigh, pour une diffusion vers l'avant g tendra vers 1 tandis qu'une rétrodiffusion totale conduit à $g = -1$. Des valeurs de g négatives nécessitent un indice de réfraction imaginaire élevé et ne seront pas traitées

ici. Des valeurs de g proches de 1 correspondent à de grandes particules transparentes tandis que les valeurs quasi nulles correspondent aux molécules. L'aérosol stratosphérique requiert l'étude des cas intermédiaires. Q_{sca} s'obtient en divisant la section efficace de diffusion par la section géométrique πr^2 . Le paramètre de taille utilisé sera $x = \pi r / \lambda$ où λ est la longueur d'onde observée. De plus, ces quantités doivent tenir compte de populations de particule et il faudra introduire une distribution de taille.

Le calcul des quantités de Mie s'effectue à partir d'un programme développé par Wiscombe [1980] pour l'ordinateur Cray 1 du National Center for Atmospheric Research (États Unis) et aimablement com-

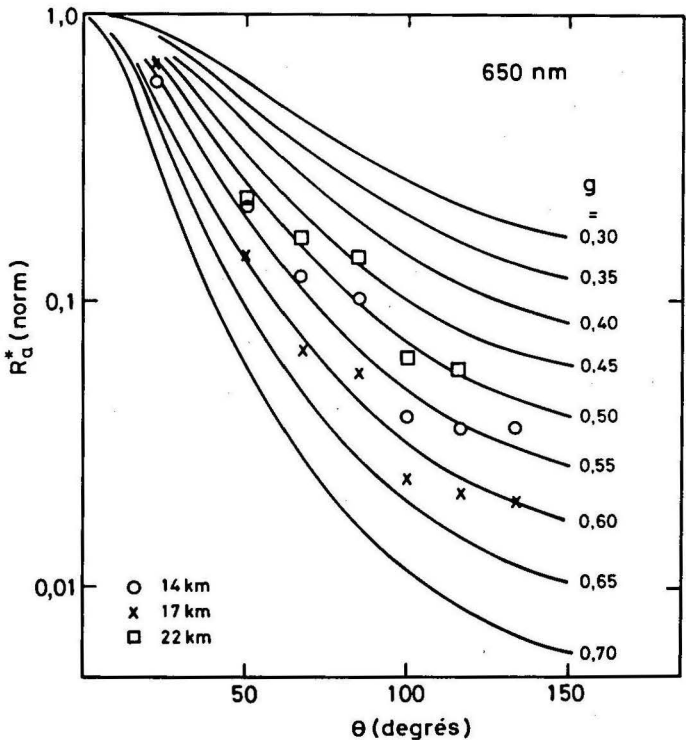


FIG. 1. — Fonctions de phase de Henyey-Greenstein montrant la luminance normalisée à 1 pour $\theta = 0$ et indiquant les points observés [Ackerman *et al*, 1981] aux altitudes de 14, 17 et 22 km. On voit que les données de 17 km correspondent à la valeur du paramètre d'asymétrie g la plus élevée et qu'aucune courbe ne peut être représentée par la valeur $g = 0,7$ communément admise pour l'aérosol stratosphérique.

munié par l'auteur. Une version, adaptée à l'ordinateur Univac 1100/40 a été mise au point et vérifiée pour des paramètres de taille atteignant 100 et diverses valeurs des indices réels et imaginaires. Des valeurs de x supérieures à 5000 sont possibles au moyen du programme original mais, elles correspondent à des tailles qui n'ont pas de sens dans le cas des aérosols traités, par contre, elles deviendraient importantes s'il fallait tenir compte des gouttes de $100 \mu\text{m}$ de rayon parfois considérées en physique des nuages. La méthode de Wiscombe [1980] présente l'avantage d'un calcul beaucoup plus rapide que celle de Dave [1969], généralement utilisée, elle est aussi protégée contre les difficultés numériques qui peuvent apparaître lors de la génération des fonctions de Bessel impliquées par la théorie de Mie.

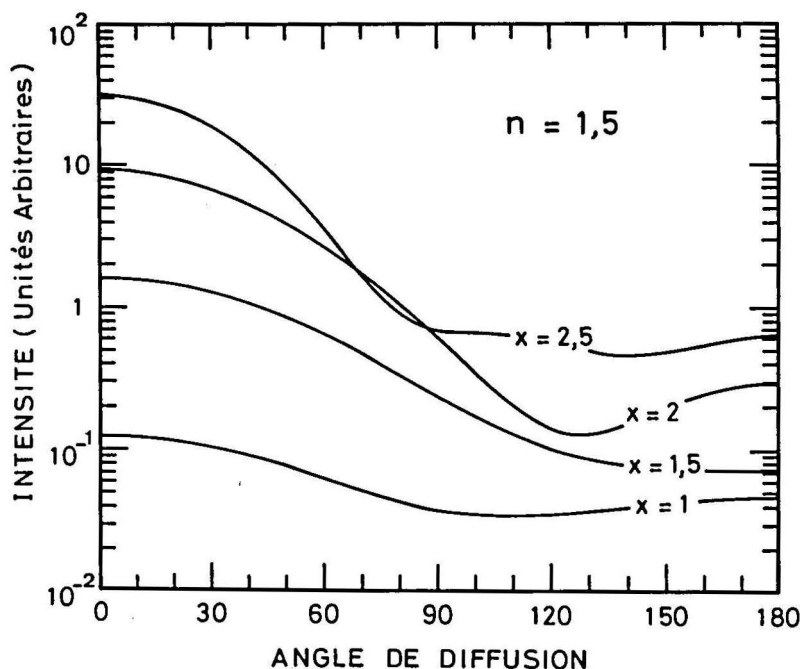


FIG. 2. — Fonctions de phase calculées par la théorie de la diffusion Mie pour des paramètres de taille $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$ allant de 1 à 2,5. L'échelle des ordonnées est proportionnelle à l'intensité de diffusion par particule, on voit qu'à population égale, une augmentation de taille se traduit par un fort accroissement de la diffusion et que les fonctions de Henyey-Greenstein cessent déjà de représenter la fonction de phase pour $x = 2,5$.

Cependant, quelques soient les précautions prises, le fait que les calculs soient physiquement invérifiables par une opération manuelle requiert de reproduire les résultats publiés les plus proches avant de pouvoir travailler sur de nouveaux cas.

Le facteur d'asymétrie, g a été déduit de l'observation en reportant celle-ci sur un réseau de courbes d'Henry-Greenstein [1941] que l'expérience [Grams, 1981], montre bien en accord avec des mesures *in situ* de l'aérosol stratosphérique (Fig. 1). La validité de cette opération est montrée aux figures 2 et 3, la fonction de phase y est calculée pour des valeurs de x s'échelonnant de 0,5 à 4,5. On voit que l'accord avec le type de courbes de la figure 1 peut être conservé jusqu'à 2,5 mais qu'au-delà, il commence à s'établir des oscillations qui s'atténuent à nouveau si une distribution de particules est considérée plutôt qu'une

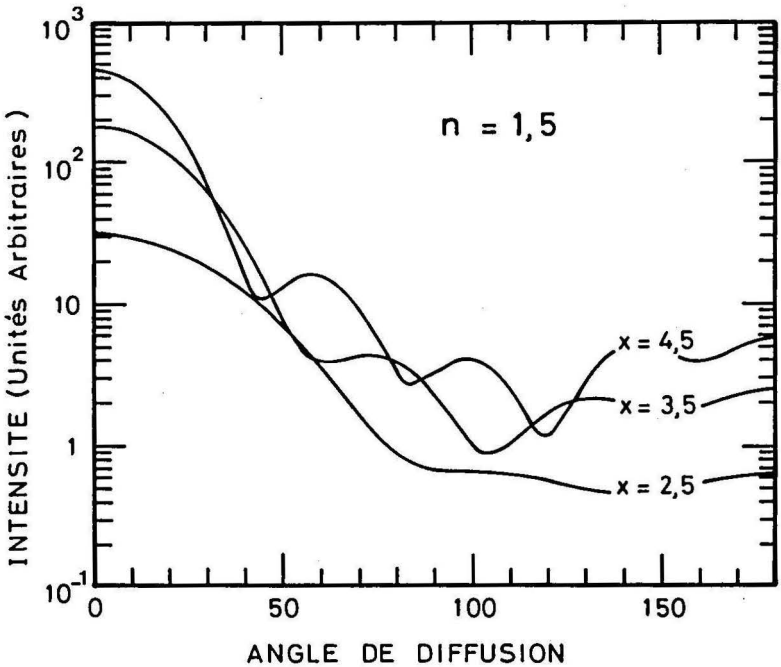


FIG. 3. — Fonctions de phase calculées par la théorie de la diffusion Mie pour des paramètres de taille $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$ allant de 2,5 à 4,5. On voit qu'il s'établit des oscillations. Contrairement à la figure précédente, on n'observe plus de variations importantes du facteur d'asymétrie g lorsque x croît.

population homogène, ce qui rend l'usage de ces courbes de Henyey-Greenstein encore possible pour des x jusqu'à 10.

La mesure de g à diverses longueurs d'onde revient à établir sa variation en fonction de x . Il suffit donc de construire un réseau de courbes donnant la variation de g en fonction du paramètre de taille d'une distribution pour diverses valeurs du paramètre d'élargissement et de trouver une combinaison qui soit en accord avec l'observation pour obtenir la distribution de l'aérosol à l'altitude considérée (fig. 4). Une valeur unique de g ne pourrait que fournir une indication très limitée, c'est-à-dire, le rayon correspondant dans le cas d'une distribution homogène.

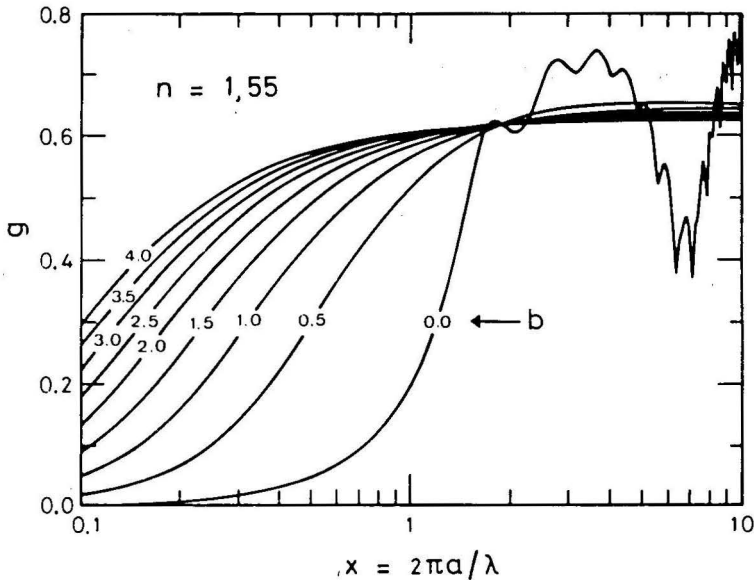


FIG. 4. — Facteur d'asymétrie g en fonction du paramètre de taille $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$ où a est le rayon effectif (équation 1) pour diverses valeurs de b . Ce réseau de courbes permet, à partir de deux mesures de g à des valeurs de a différentes de déterminer simultanément a et b .

La forme de distribution proposée par Hansen et Travis [1974] a été choisie :

$$n(r) = A r^{(1-3b)/b} e^{-r/ab} \quad (1)$$

où A est une constante, r , le rayon de la particule, a , le paramètre

central et b , le paramètre de dispersion. De nombreuses distributions ont déjà été introduites pour décrire les aérosols [Deepack et Box, 1979] mais toutes se heurtent au problème de l'interprétation physique de leurs paramètres. Le paramètre central idéal serait

$$r_{sca} = \frac{\int_0^{\infty} r \pi r^2 Q_{sca} n(r) dr}{\int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{sca} n(r) dr} \quad (2)$$

correspondant au rayon des particules dont la diffusion est la plus observée, en effet, pour les zones de rayon où Q_{sca} est nul, la situation est la même que s'il n'y avait aucune particule dans ces intervalles. L'efficacité de diffusion Q_{sca} tend vers 0 lorsque r tend vers 0 (fig. 5)

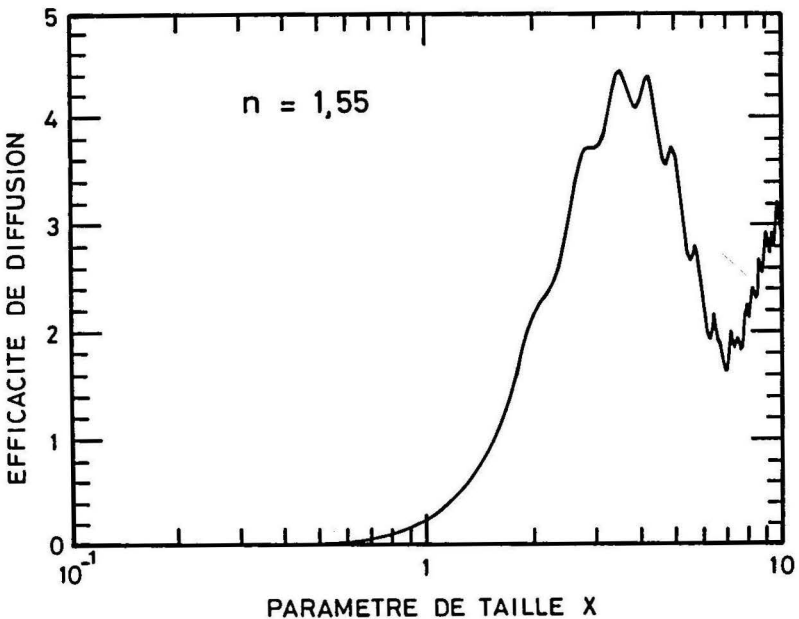


FIG. 5. — Efficacité de diffusion Q_{sca} en fonction du paramètre de diffusion $x = \frac{2\pi r}{\lambda}$, la diffusion la plus importante se produit non vers $x = 3$ qui correspond au maximum de Q_{sca} mais à des valeurs de x voisines ou inférieures à 1 suivant les altitudes considérées en raison de la distribution des particules.

et oscille pour des particules d'un x supérieur à environ 5, si on introduit une distribution, ces oscillations se compensent et on se trouve alors en présence d'une valeur quasi-constante. Là où on peut considérer que Q_{sca} cesse d'être dépendant de r , il peut sortir de l'intégrale (2) et r_{sca} se trouve remplacé par le rayon effectif

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

Cette quantité est égale à a dans le cas de la distribution (1). De même b est la variance effective de la distribution. Les courbes de g représentées à la figure 4 ont été obtenues par l'expression suivante :

$$g = \frac{\int_0^{\infty} g\pi r^2 Q_{sca} n(r) dr}{\int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{sca} n(r) dr} \quad (4)$$

calculée en faisant varier a dans (1). Dans le cas $0,1 < a < 1$ où la variation de Q_{sca} en fonction de x ne peut être négligée, a représente un rayon légèrement supérieur à celui des particules les plus nombreuses à diffuser. L'information la plus significative consiste en la distribution elle-même prise dans le domaine de x où la diffusion Mie peut être différenciée de la diffusion Rayleigh, c'est-à-dire là où le facteur d'asymétrie g peut être considéré comme significativement non nul. Pour les tailles inférieures, la diffusion par les particules ne peut plus être séparée de la diffusion par l'air et les moyens de l'éliminer introduiraient un modèle théorique supplémentaire. Dans notre cas, à $0,65 \mu\text{m}$, la taille en-dessous de laquelle la méthode devient insensible est de $0,02 \mu\text{m}$, ce résultat étant obtenu sur la base de l'examen des courbes de la figure 4 et de divers essais numériques.

Le paramètre b de la distribution (1) doit en principe être inférieur à 0,5 pour représenter la variance de la distribution [Hansen et Travis, 1974] cependant, dans nos trois cas, l'accord n'est obtenu que pour des

valeurs de b supérieures à 0,5 (tabl. II) et ce surtout aux altitudes où les a sont les plus petits : à 14 et à 22 km. L'explication en est que pour reproduire l'observation, il a fallu introduire un grand nombre de particules, à la limite de sensibilité de la méthode, le produit $n(r)Q_{\text{sca}} g$ tendant toujours vers 0 en même temps que r . Là, de nouveau, il faut tronquer la distribution ou donner la distribution cumulée c'est-à-dire, le nombre de particules au-dessus d'un certain rayon, correspondant au rayon minimal de sensibilité de la méthode.

TABLEAU II. — Valeurs déduites de l'observation : a et b : paramètres de la distribution (1), $n(> \lambda \pi m)$, nombre de particules de diamètres $> \lambda$ par cm^3 .

	14 km	17 km	22 km
a (μm)	0,042	0,15	0,045
b	3,6	0,6	1,8
$n(> 0,5 \mu\text{m})$ (cm^{-3})	0,35	0,4	0,085
$n(> 0,1 \mu\text{m})$ (cm^{-3})	20	20	40

L'observation fournit également l'intégrale $\int_0^{\infty} Q_{\text{sca}} n(r) \pi r^2$ à partir

des radiances absolues mesurées sur les clichés. La possession de a et de b permet, dans les trois cas considérés de donner la quantité totale de particules par cm^3 et par intervalle de taille. Ce résultat autorise une comparaison quantitative avec les résultats d'autres techniques montrée à la figure 6, pour la couche de Junge [Hofmann, 1982]. Les autres instruments utilisés sont tous basés sur des techniques de prélèvement et sont très peu sensibles en dehors de cette couche volcanique et ne peuvent donc fournir de vérification des valeurs observées aux altitudes de 14 et de 22 km. Les résultats obtenus par Grams [1981] au moyen d'un néphélomètre polaire entre 10 et 12 km d'altitude fournissent cependant une confirmation des faibles valeurs du paramètre d'asymétrie observée à ces deux altitudes ($0,4 < g < 0,6$). Ces résultats comme ceux de cet article, sont en contradiction avec les modèles précédents, qui sur la base d'un grand nombre de particules plus grosses mesurées lors des premiers échantillonnages prédisaient des valeurs de g proches de 0,7 [Toon et Pollack, 1976]. Cette différence peut être expliquée par la théorie de Mie en introduisant une popula-

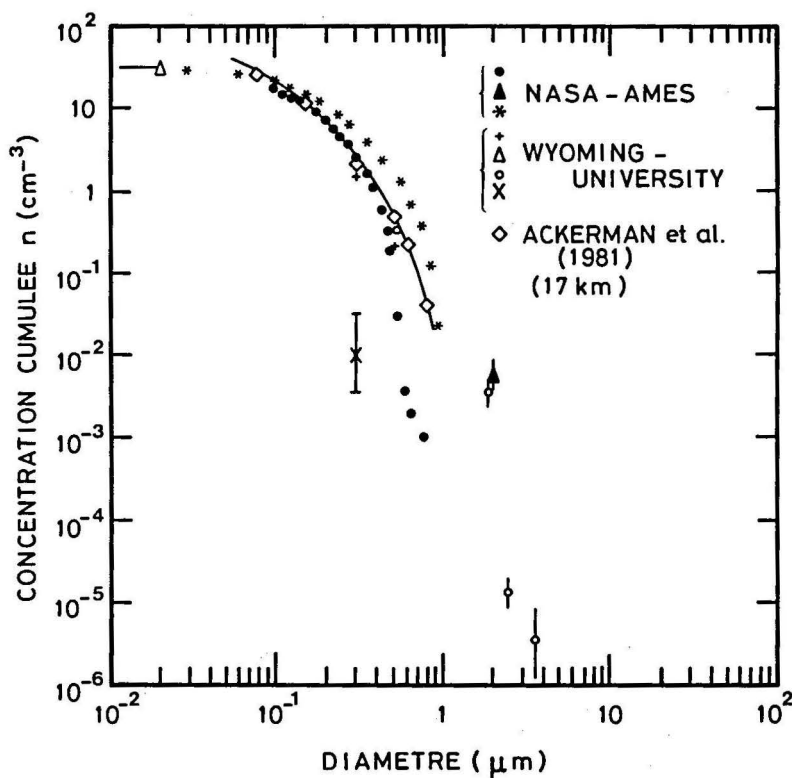


FIG. 6. — Comparaison des résultats obtenus dans la couche de Junge, à 18 km, lors d'une intercomparaison de mesures d'aérosols effectuées en juillet 1981 dans la couche de Junge et ceux du présent travail [Ackerman *et al.*, 1981, 17 km]. Les points indiqués Nasa-Ames ont été obtenus en avion et ceux de l'Université du Wyoming, en ballon. Tous les instruments impliqués utilisaient des techniques de prélèvement [Hofman, 1982].

tion élevée de petites particules. La taille de ces particules pourrait cependant être augmentée si l'on admettait un indice de réfraction plus élevé, en effet, pour des $x > 10$, g vaut $\cong 0,6$ pour $n = 2,5$ mais ceci postulerait une composition différente de l'aérosol dans la couche de Junge et en dehors qui n'a été détectée jusqu'à maintenant lors d'aucune mesure par prélèvement et qu'aucun modèle stratosphérique ne prédit.

En conclusion, la théorie de Mie constitue l'instrument idéal pour l'interprétation d'observations optiques de la stratosphère où les limitations théoriques et expérimentales coïncident ; elle est par contre un

outil à manier avec beaucoup de prudence quand il s'agit de déduire des propriétés radiatives à partir d'observations par prélèvement. De nouvelles observations doivent être effectuées en vue de déterminer la diffusion par les aérosols à plus de longueurs d'onde en vue de pouvoir vérifier également l'indice de réfraction en fonction de l'altitude tandis que seules des mesures simultanées par prélèvement pourraient déterminer les compositions correspondantes.

REMERCIEMENTS

L'auteur a à cœur de remercier Monsieur le Professeur Nicolet de son intérêt constant, par delà les modes passagères, pour les problèmes stratosphériques.

RÉFÉRENCES

- ACKERMAN, M., LIPPENS, C. et LECHEVALLIER, M., 1980. Volcanic material from Mount St. Helens in the stratosphere over Europe, *Nature*, **287**, 614.
- ACKERMAN, M., LIPPENS, C. et MULLER, C., 1981. Stratospheric aerosol properties from earth limb photography, *Nature*, **292**, 587.
- BAYVEL, L. P et JONES, A. R., 1981. *Electromagnetic scattering and its application*, Applied Science, Barking.
- DAVE, J. V., 1968. Scattering of visible light by large water spheres, *Applied Optics*, **8**, 155.
- DEEPAK, A. et BOX, G. P., 1979. *Analytic modeling of aerosol size distributions*, Nasa Contractor Report 159170, Institute for Atmospheric Optics and Remote Sensing, Hampton, Virginia 23666, USA.
- GRAMS, G. W., 1981. In situ measurements of scattering phase functions of stratospheric aerosol particles in Alaska during July 1979, *Geophys. Res. Lett.*, **8**, 12.
- HANSEN, J. E. et TRAVIS, L. D., 1974. Light scattering in planetary atmospheres, *Space Sci. Rev.*, **16**, 527.
- HENYEY, L. G. et GREENSTEIN, J. L., 1941. Diffuse radiation in the galaxy, *Astrophys. J.*, **93**, 70.
- HOFMANN, D. J., 1982. Communication privée.
- JUNGE, C. E. et MANSON, J. E., 1961. Stratospheric aerosol studies, *J. Geophys. Res.*, **66**, 2163.
- KERKER, M., 1969. *The scattering of light and other electromagnetic radiation*, Academic Press, New York.
- ROSEN, J. M., 1971. The boiling point of stratospheric aerosols, *J. Appl. Meteorol.*, **10**, 1044.

Calculs de la diffusion Mie appliqués

- SCHUERMAN, D. W., 1979. *Light scattering by irregularly shaped particles*, Plenum, New York.
- SHETTL, E. P. et FENN, R. W., 1979. *Models for the aerosols of the lower atmosphere and the effects of humidity variations on their optical properties*, Air Force Geophysics Laboratory, AFGL-TR-79-0214.
- TOON, O. B. et POLLACK, J. B., 1973. Physical properties of the stratospheric aerosols, *J. Geophys. Res.*, **78**, 7051.
- TOON, O. B. et POLLACK, J. B., 1976. A global average model of atmospheric aerosols for radiative transfer calculations, *J. Appl. Meteor.*, **15**, 225.
- TURCO, R. P., HAMILL, P., TOON, O. B., WHITTEN, R. C. et KIANG, C. S., 1979. A one dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere. I. Physical processes and mathematical analogs, *J. Atmos. Sci.*, **36**, 699.
- VAN DE HULST, H. C., 1957. *Light scattering by small particles*, Wiley, New York.
- WISCOMBE, W. J., 1980. Improved Mie scattering algorithms, *Appl. Opt.*, **19**, 1505.