



HAL
open science

Propriétés, variabilités, processus de formations et évolutions des aérosols atmosphériques : Apport des mesures in situ fixes ou mobiles

Suzanne Crumeyrolle

► **To cite this version:**

Suzanne Crumeyrolle. Propriétés, variabilités, processus de formations et évolutions des aérosols atmosphériques : Apport des mesures in situ fixes ou mobiles. Océan, Atmosphère. Université de Lille, 2024. tel-04837520

HAL Id: tel-04837520

<https://hal.univ-lille.fr/tel-04837520v1>

Submitted on 13 Dec 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Suzanne Crumeyrolle
MC-CN LOA Univ. De Lille
ED SMRE



Propriétés, variabilités, processus de formations et évolutions des aérosols atmosphériques : Apport des mesures in situ fixes ou mobiles

Soutenance : 28 juin 2024, Amphi CERLA, Cité scientifique, Université de Lille

Jury :

Garant	Mme	Chiapello	Isabelle	Univ. Lille (CR)
Rapporteur	Mme	Pont	Véronique	Univ. Toulouse (MCF)
Rapporteur	Mme	Deboudt	Karine	Univ. Lille Côte d'Opale (Professeur)
Rapporteur	Mr	Foret	Gilles	Université Paris-Est Créteil (MCF)
Membre	Mr	Petitprez	Denis	Univ. Lille (Professeur)
Président	Mr	Sauvage	Stéphane	CERI EE - IMT Douai (Professeur)
Membre	Mme	Sellegrì	Karine	Université Clermont Auvergne (DR)

Habilitations à diriger des recherches en physique de l'atmosphère

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier les membres du jury et en particulier les rapporteurs pour avoir accepté d'évaluer ce travail.

Je remercie chaleureusement ma garante d'HDR, Isabelle Chiapello, pour sa confiance et son accompagnement tout au long de ce voyage. Son soutien indéfectible, ses conseils avisés et sa disponibilité constante ont été essentiels pour mener à bien cette habilitation. Ses retours critiques et constructifs ont largement contribué à améliorer la qualité de ce travail, et je lui en suis profondément reconnaissante. « Que ton savoir continue d'illuminer mon chemin, que tes mots résonnent, puissants, dans mon esprit. Isabelle, tu brilles à travers le temps. »

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude envers toutes les personnes qui ont contribué, de près ou de loin, à l'aboutissement de ce travail d'Habilitation à Diriger des Recherches. Ce travail n'aurait jamais pu se faire sans votre bonne humeur et votre talent. Entre autres, je remercie Benjamin Hanoune, Véronique Riffault, Joel de Brito, Patrick Augustin, Marc Fourmentin, Denis Petitprez, Marie Choel, Yeni Tobon, Nicolas Visez, Harry Ten Brick, Pasquale Sellitto, Sylvain Billet, Clémence Rose, Aurélie Colomb, Karine Sellegri, Fanny Minvielle, Celine Cornet, Nicolas Pascal, Aurélien Chauvigné, la team ACTRIS France, et bien d'autres encore...

Je tiens également à exprimer mes remerciements les plus sincères aux membres de l'équipe technique et de maintenance de la station de mesure du LOA : Eric Bourrienne, Vianney Sénéchal et Romain De Filippi. Leur dévouement à assurer le bon fonctionnement de l'ensemble des instruments et à maintenir la station opérationnelle en toutes circonstances a été crucial pour mes recherches. Leur expertise et leur engagement constant ont permis d'obtenir des données de grande qualité, essentielles pour l'avancement de mes travaux. Merci la dream team !

Mes pensées vont également à tous les étudiants que j'ai eu l'occasion d'encadrer au fil des années : Alejandra, Lenka, Shuo, Valisoa, Maryam... Leurs enthousiasmes, leurs curiosités et leurs questionnements m'ont poussé à me dépasser et ont contribué à faire évoluer mes travaux de recherche.

Merci à mes collègues mais néanmoins amis du LOA. Il est agréable et indispensable de prendre des pauses déjeuner avec vous et d'oublier les tracas du quotidien !

Finalement, un merci tout particulier à ma famille Guillaume, Sarah et Zoé pour leur soutien indéfectible et leur patience tout au long de ces années. Leur présence et leurs encouragements m'ont aidé à traverser les moments de doute, à trouver le courage nécessaire pour mener à bien ce projet et à surtout relativiser.

Table des matières

CHAPITRE 1. - FORMATION DE NOUVELLES PARTICULES	39
1.1 ÉVENEMENTS DE FNP DANS UN ENVIRONNEMENT URBAIN (CRUMEYROLLE ET AL., 2023).....	42
1.2 EXTENSION HORIZONTALE/VERTICALE DES EVENEMENTS DE FNP (CRUMEYROLLE ET AL. 2010)	48
1.3 TRANSPORT DES PUF (PIKRIDAS ET AL. 2015).....	54
1.4 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	57
CHAPITRE 2 - INTERACTIONS AEROSOLS ET VAPEUR D'EAU	58
2.1 EN REGIME SOUS-SATURE	59
2.1.1 A l'échelle individuelle (Tobon et al, 2021).....	60
2.1.2 A l'échelle d'un volume (El Hajj, 2018).....	62
2.2 EN REGIME SURSATURATION (EN NUAGE)	66
2.2.1 Modification des propriétés des aérosols (Crumeyrolle et al. 2013).....	67
2.2.1 L'importance du nitrate (Crumeyrolle et al. 2021).....	69
2.3 IMPACTS DE CES INTERACTIONS (CRUMEYROLLE ET AL. 2022).....	74
2.4 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	77
CHAPITRE 3 - LIEN ENTRE PROPRIETES PHYSIQUE, CHIMIQUE ET OPTIQUE.....	79
3.1 RESTITUTION DE LA CONCENTRATION MASSIQUE (CRUMEYROLLE ET AL., 2014)	81
3.2 RESTITUTION DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES AEROSOLS (WANG ET AL., 2021)	84
3.2.1 Description de la méthode	86
3.2.1 Résultats.....	88
3.3 COEFFICIENTS D'EFFICACITE MASSIQUE (VELAZQUEZ-GARCIA ET AL., 2023).....	93
3.4 CONCLUSIONS.....	96
CHAPITRE 4 CONCLUSIONS GENERALES	98
CHAPITRE 5 REFERENCES.....	101
CHAPITRE 6 LISTE DES ACRONYMES.....	124

A. Curriculum Vitae

Suzanne Crumeyrolle
Née le 19 Décembre 1981, 42 ans,
2 enfants (2015, 2018)

Depuis 2013 Maître de Conférences au Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA),
Université de Lille

Parcours et Formation :

2011 - 2013: Post Doc - NASA Langley Research Center (LaRC), Hampton (USA). "Observations of aerosol particle properties from lidar measurements: Applicability to satellite observations". **Directeur:** Bruce Anderson (NASA LaRC, Hampton)

2011: Post Doc - CSIRO, Aspendale (Australie). « Monitoring cloud and aerosols properties to support climate change science », **Directeur:** Melita Keywood (CSIRO, Aspendale)

2008-2010: Post Doc - LaMP, Clermont Ferrand. CNRS. « Étude des propriétés physiques et chimiques des aérosols durant la campagne aéroportée EUCAARI. » . **Directeur:** Alfons Schwarzenboeck, Pr. (LaMP, Clermont Ferrand)

2004 – 2008 : PhD - CNRM – Centre National de Recherches Météorologiques, Université Paul Sabatier, Toulouse. **Titre thèse:** Impact des systèmes convectifs sur les propriétés hygroscopiques des aérosols : Analyse de deux cas d'étude durant la campagne AMMA ». **Directeur :** Jean-Louis Brenguier (IGPC) et Laurent Gomes (CR)

2003- 2004 : DEA - Laboratoire de Météorologie Physique – Clermont-Ferrand & Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement – Saclay : La pollution particulaire dans la région de Strasbourg. Encadré par P. Laj, N. Marchand & J. Sciare




Domaines d'expertises :

Mon domaine d'expertise porte sur la caractérisation des propriétés optiques, physiques et chimiques des particules d'aérosol afin de mieux estimer leur impacts climatique et sanitaire. Pour atteindre mes objectifs, mes résultats se basent sur des mesures, pour la plupart in-situ, collectées lors de campagnes aéroportées ou sol de mesures (Tableau 1) mais aussi de campagnes de mesures en laboratoire. Depuis mon affectation en 2013, je développe le parc instrumental 'in-situ' équipant ATOLL (ATmospheric Observatory in LiLle). A l'heure actuelle je suis le responsable scientifique de 5 instruments (SMPS, CPC, 2 néphélomètres, Ultra Sonic

Anemometer - USA) mesurant en continu depuis 2014 pour le plus ancien. La station ATOLL « in-situ » fait partie depuis 2019 du réseau européen ACTRIS et a été labellisé en 2022.

En collaboration avec des collègues du PC2A¹ (Univ. Lille), je développe des **mini-capteurs** pour mesurer l'exposition individuelle des populations (<https://www.apolline.science>). En effet, les moyens de mesure de la pollution atmosphérique dans la région lilloise (142 km²) sont limités, et ne s'appuient que sur des stations de mesures fixes. Dans le cadre des projets LIMON'AIR et LIMONADE financés par l'IREPSE (Institut de Recherches Pluridisciplinaires en Sciences de l'Environnement) et IRENE² en 2017, nous développons (PC2A, l'IRCICA³ et l'INRIA⁴) des systèmes, à bas-couts, fixes ou mobiles, versatiles, pour mesurer la concentration en particules (fixes et mobiles) ainsi que d'autres polluants gazeux (fixes). Ces systèmes instrumentaux sont utilisés dans le cadre de différents projets des membres du consortium dont les objectifs scientifiques sont complètement différents. Un déploiement a eu lieu sur l'université de Lille (période Pré-COVID) pour mesurer la qualité de l'environnement dans les bâtiments de l'université de Lille (PM, CO₂, NO, SO₂, bruits). Puis un déploiement a eu lieu sur les flancs de l'Etna (Sellitto et al., 2020) pour déterminer les émissions et la dispersion des cendres volcaniques et des aérosols secondaires produits dans le panache volcanique. Augustin et al. (2020) ont utilisé les mesures de ces capteurs pour étudier l'interaction entre la dynamique atmosphérique et les aérosols dans un milieu industriel côtier. Plus récemment, de nouveaux développements sont effectués afin d'adapter ces capteurs à des mesures embarquées sur drone.

Tableau 1 : Principales campagnes de mesures internationales ou nationales auxquelles j'ai participé sur le terrain ou contribué durant ma carrière.




Campagne	Année	Avio	Localisation principale	Objectifs
AMMA	2006	 ATR-42	Niamey (Niger)	améliorer la connaissance et la compréhension de la mousson d'Afrique de l'Ouest (Redelsperger et al., 2006)
EUCAARI	2008	 ATR-42	Rotterdam (Pays-bas)	Réduction de l'incertitude de l'impact des particules d'aérosol sur le climat (Kulmala et al., 2009)
MEGAPOLI	2009	 ATR-42	Paris (France)	Investiguer les interactions entre les mégapoles, la qualité de l'air et le climat (Baklanov et al., 2010)
Sydney particle study	2011	NA	Sydney (Australie)	Étudier la formation et des transformations des

¹ PC2A : Physico-Chimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère, UMR 8522 Université de Lille et CNRS

² IRENE : Innovation et Recherche en Environnement

³ IRCICA : Institut de Recherche sur les Composants logiciels et matériels pour l'Information et la Communication Avancée (IRCICA)

⁴ INRIA : Institut national de recherche en sciences et technologies du numérique

				particules dans le bassin de Sydney. (Keywood et al., 2019)
DC3	2012	 DC8		Impact des grands orages sur la concentration de l'ozone et d'autres substances dans la haute troposphère (Barth et al., 2019)
DISCOVER-AQ	2011-2014	 P3B	Washington DC, San Joaquin Valley (Californie), Houston (Texas), Denver (Colorado)*.	Deriving Information on Surface Conditions from Column and VERTically Resolved Observations Relevant to Air Quality (Crumeyrolle et al., 2014)
SEAC4RS	2013	 DC8	Houston (Texas)	Déterminer l'impact de la convection profonde sur les polluants atmosphériques (Toon et al., 2016)
SHADOW	2015	NA	M'Bour (Sénégal)	Mieux documenter les propriétés physico-chimiques des aérosols (Crumeyrolle et al., 2019)

Responsabilités scientifiques :

Depuis 2018 : Responsable de la partie Mesure in-situ de la plateforme ATOLL (réseau ACTRIS). Je suis aussi PI de 4 instruments qui mesurent en continu les propriétés des aérosols (Voir Tableau 2).

Tableau 2 : Instruments (noms et modèles) mesurant in-situ les propriétés des aérosols sur la station ATOLL. L'année de début des mesures ainsi que le responsable de chaque instrument sont indiqués (les zones grisées correspondent aux instruments dont je suis PI).

Instrument	Modèle	Début des mesures	PI	Paramètres mesurés
SMPS	TSI3082	2017	S. Crumeyrolle	Distribution en taille des aérosols ($10 < D_p < 800\text{nm}$)
CPC	TSI3750	2022	S. Crumeyrolle	Concentration totale des aérosols
Néphélomètres	Aurora 3000 Aurora 4000	2014 2019	S. Crumeyrolle	Coefficient de diffusion dans le PM1 (3000) et le PM10 (4000)
Spectromètre de masse	Q-ACSM	2018	V. Riffault	Concentration massique des espèces majeures (sulfate, nitrate, chlorure, ammonium et fraction organique) des aérosols submicroniques non réfractaires (NR-PM1)
Aethalometre	AE33	2018	J. de Brito	Coefficient d'absorption dans la fraction PM10
Compteur optique de particules	FIDAS 200	2019	V. Riffault	Distribution en taille des aérosols ($0.18 < D_p < 18\mu\text{m}$)
Analyseur de SO2			V. Riffault	

Analyseur de Particule Ultra fines (PUF)	A12- Air modus	2024	S. Crumeyrolle	Distribution en taille des PUF ($1 < D_p < 4\text{nm}$)
--	----------------	------	----------------	---

Portage de projets de recherche (6):

- 2023-2024 : Co-PI avec F. Minvielle du projet LEFE EPOUV : Mesure de l'exposome en UV et particules des volontaires (19k€)
- 2022 – 2026** : Co-Leader avec Luc Dauchet du WP3 “ Evolution de l'exposition des populations et impacts sur la santé des populations et à l'échelle de l'individu du CPER Ecrin - Environnement Climat – Recherche et INnovation - 39,06 M€
- 2021 – 2024** : Co-PI du projet MusQUA PEARL (Programme for EARly-stage Researchers in Lille): MUlti-scale processing of Spatio-temporal data applied to air Quality in Urban Areas. Co-I. R. Rouvroy Fundings : ISITE Lille - 150k€
- 2017- 2018** : PI du projet LIMONADE Lille MOBILE Network for Air pollution - the Dunkerque Experiments. Type de projet : IREnE (Innovation et Recherche en Environnement). Financier : CPER Haut de France. Budget : 5k€
- 2017- 2018** : PI du projet LIMONAIR : Lille Mobile Network for Air Pollution Study.. Type de projet: IREPSE (Institut de Recherches Pluridisciplinaires en Sciences de l'Environnement). Financier : Université de Lille1 Budget : 3k€
- 2016-2021**: Co-PI du Projet ANR MABCaM : Multi-channel wavelength- resolved Albedometer for Black Carbon Measurement (MABCaM). Co-PI : W. Chen (LPCA, ULCO). Financier : ANR (Agence Nationale de la Recherche). Budget : 439k€

Participation à des projets nationaux (5) et internationaux (1) :

- 2024- 2025** : Participante au CDP - Cross-disciplinary Project - AREA (Aerosol at the heart of the Earth/Atmosphere system) PIs : Denis Petitprez, Frederic Parol.
- 2019- 2021** : Participante au projet pilote « Santé Environnement : du risque territorial au risque individuel » PIs : Corinne Gower-Rousseau & Luc Dauchet
- 2017- 2018** : Participation au projet EMMA : Expérience Multi-échelle Mobile Atmosphérique. PI : P. Augustin (LPCA, ULCO). Type de projet : IREnE (Innovation et Recherche en Environnement). Financier : CPER Haut de France. Budget : 5k€
- 2016–2020** : Participation au projet CPER-PO FEDER CLIMIBIO (changement CLIMatique dynamique de l'atmosphère Impacts sur la BIODiversité et la santé humaine), coordonné par Pascale Desgroux, PC2A. Ce projet pluridisciplinaire vise à mieux comprendre les conséquences du changement climatique en région Hauts-de-France et ses impacts sur la biosphère et la santé.

2016-2019 : Participation au projet ACMAP-ATAL, collab. NASA-Inde-France, Characterizing the Asian Tropopause Aerosol Layer (ATAL) and its impact on ice cloud properties in the South Asian Monsoon. PI : D. Fairlie (NASA Langley). Financier : NASA ROSES NNH16ZDA001N- ACMAP. Budget : 150k\$

2012-2024 : Participation au Labex CaPPA, coordonné par Didier Tanré (LOA) puis Denis Petitprez (PC2A) . Dans ce cadre, j'ai participé aux campagnes de terrain SHADOW2 réalisées en partenariat notamment avec le LPCA et le CERI EE à M'Bour (Sénégal). Je suis allée sur place pour mettre en place puis démonter l'instrumentation du LOA → Crumeyrolle et al. (Atmos. Environ. 2019 et EGU 2018)

Projets soumis en 2024 (8):

WP1 leader of the DICIT projet (AAPG ANR 2024) : **D**irect and **I**ndirect **C**limate Forcing of Volcanic Em**I**ssions in **T**he Mediterranean. Phase 2

PI du projet LOOKUP (Low cOst sensOr networK for Ultra-fine Particle measurement, AAPG ANR 2024) : Développement d'un réseau de mesure des particules ultra fine a partir de micro-capteur. Non sélectionné

Co-PI avec F. Minvielle du projet LEFE Resoumission pour financement de la seconde moitié du projet EPOUV: Mesure de l'exposome en UV et particules des volontaires (19k€) : Non sélectionné

Participant : PEPR (Programmes et équipements prioritaires de recherche) VBDI 2023, Caractérisation de l'impact de la rénovation de bâtiments collectifs comme solution d'adaptation et d'atténuation aux îlots de chaleur urbains RENOBAT-ICU PI: C. Schoemaeker

Participant : LIFE-2023-SAP-CLIMA-CCA, Multi Unit Building – Second Life in the context of Urban Heat Island (MUB2ndLIFE), PI: C. Schoemaeker - Liste complémentaire

Participant : Driving Urban Transitions 2024, MEthodology DEvelopment for an efficient REnovation in the context of Urban Heat Island (MEDERE-UHI). PI: C. Schoemaeker - Non sélectionné

Participante au CDP - Cross-disciplinary Project- CUMIN Plus (Campus of University with Mobility based on Innovation and carbon Neutrality) PIs : Alain Bouscayrol et Elodie Castex : Non sélectionné

Responsabilités collectives et fonctions électives

2025 - 2030 : Co responsable du nouvel axe transverse « Interactions aérosols nuages » au sein du LOA.

2024- 2028 : Élu(e) à la commission recherche de de la Faculté des Sciences et Technologies (FST)

2023 : Participation à l'évaluation HCERES du LMD (Laboratoire de météorologie dynamique) visite en octobre 2023, Président : C. Georges

Depuis 2020 : Membre du Comité Scientifique de la boutique des sciences de Lille. La Boutique accompagne les acteurs associatifs de la région Hauts-de-France confrontés à des problématiques concrètes pour co-construire des savoirs avec les acteurs de la recherche scientifique.

Depuis 2020 : Membre du Copil du réseau national « Capteurs en environnement » <https://www.reseau-capteurs.cnrs.fr/>. Ce réseau a été créé en 2020 et fédère les activités de recherche dans tous les domaines scientifiques faisant appel aux capteurs.

Depuis 2019 : Editorial Board of Atmosphere (MDPI, IF : 2.686) (Editrice d'une special issue sur le cycle de vie des aérosols) et Atmosphere and Climate (specialty section of Frontiers in Environmental Science, IF : 4,581)

Depuis 2018 : Responsable du réseau de mini capteurs dans le réseau Apolline (<https://www.apolline.science/en/accueil-english/>)

2015 -2023 : Nommée puis élue au CNU (Comité National des Universités) 37^{ème} section.

2014 - 2020, élue au conseil d'administration du département de physique de l'université de Lille.

Reviewer pour (i) des journaux scientifiques internationaux : Atmospheric environment, Atmospheric Chemistry and Physics, Atmospheric Measurement Techniques, Journal of Geophysical Research,... (ii) des projets scientifiques : ANR et ROSES (NASA).

Reviewer pour AAP ANR 2012.

Participation à des comités de sélection : 37-MCF-1436 (ouvert à l'université de Lille 1 avec affectation au LOA sur la thématique « Mesures par télédétection (spatiale ou sol) des aérosols » en 2017) et 28-MCF-1693 (ouvert à l'université de Lille 1 avec affectation au UMET sur la thématique « Propriétés de transport de composites polymères conducteurs nanostructurés » en 2015)

Encadrement doctoral et scientifique :

Danielle El Hajj (2015 à 2018) sous la direction d'Isabelle Chiapello (LOA) a travaillé sur l'étude des propriétés optiques des aérosols à fortes humidités. Des mesures en laboratoire sont effectuées à humidité relative contrôlée afin d'étudier l'évolution des propriétés optiques des aérosols. J'ai proposé ce sujet de thèse afin de compléter mes recherches sur le lien entre mesures « in-situ » et mesures par télédétection. Taux d'encadrement : 40%

Shuo Wang (2016 à 2020) en co-tutelle avec l'université de Chine sous la direction de Weijun ZHANG (LPCA). Son travail de thèse se base sur la création d'un algorithme permettant la restitution de concentrations en Black Carbon (BC), Brown Carbon (BrC) et poussières

désertiques à partir de mesures de coefficient d'absorption à plusieurs longueurs d'onde. Son travail entre dans le cadre de l'ANR MABCaM. Taux d'encadrement : 40%

Alejandra GARCIA Vasquez (2019 à 2023) sous la direction de Véronique Riffault (IMT-Douai) et Isabelle Chiapello (LOA) : Lien entre les propriétés optiques et chimiques des aérosols. Son travail consiste à étudier les équations IMPROVE (Pitchford et al. 2011) et les efficacités de l'extinction de masse afin de pouvoir déterminer les concentrations massiques des principaux composants des aérosols à partir des propriétés optiques. J'ai co-encadré à 35% cette étudiante

Maryam Rahmani actuellement en thèse (2021 à 2024) sous la direction de R. Rouvoy (Cristal): Thèse ISITE: Modélisation greycat de la dispersion des aérosols à partir de mesures faites dans l'agglomération Lilloise. L'objectif de cette thèse est d'utiliser des mesures du réseau de mini capteurs Apolline et de tous autres capteurs en fonctionnement afin de générer des cartes de qualité de l'air en temps réel. Ce travail aura pour objectif à plus long terme de générer des cadastres d'émissions pour les villes testées et de mieux comprendre l'origine des polluants stagnant dans certaines zones.

Rakotonirinjanahary Miadana Valisoa actuellement en thèse (2021 à 2024) sous la direction de B. Hanoune (PC2A): Thèse CIFRE avec la SNCF : Qualité de l'air dans l'enceinte des gares. Après une première phase d'expérimentation qui a eu lieu en 2019 et 2020 dans une gare de RER, une nouvelle phase d'expérimentation d'assainissement de l'air en gare est prévue en 2024. Celle-ci se déroulera en parallèle dans trois gares, afin de tester en conditions réelles trois technologies différentes pour **l'amélioration de la ventilation des gares et le traitement de l'air**. L'objectif de cette thèse est d'étudier la qualité de l'air dans les gares et de déterminer la méthode la plus adaptée pour l'assainissement de l'air afin d'équiper les gares du réseau.

Jerome Chesneau (2021 à 2023) sous la direction de B. Hanoune (PC2A): Cette thèse répondait aux problématiques du projet i-site : Santé Environnement : du risque territorial au risque individuel. Les objectifs principaux étaient de mesurer l'exposition individuelle de citoyens à la pollution atmosphérique et de mesurer l'association entre l'exposition environnementale et les biomarqueurs d'effets sur la santé. Cette étude permettra également de connaître leur distribution en taille, dans l'espace et le temps, et les déterminants liés à l'environnement et au comportement des personnes. Après 2 années de thèse, cet étudiant a choisi de démissionner car il n'avait pas les capacités pour faire une thèse. Je co-encadrais cet étudiant à 40%.

Master 2:

2022 – LOA : Encadrement d'un M2 (V. Sadza) : Response of atmospheric composition to COVID-19 lockdown measures during Spring in Lille : 6mois

2020 – LOA : Encadrement d'un M2 (M. Ranaivombola) : Etude de la concentration particulière au sommet de l'Etna. Durée du stage : 6 mois.

2019 – LOA : Encadrement d'un M2 (N. Yin) : Indoor/outdoor particulate matter and gas concentration in library and university campus. Durée du stage : 6 mois.

2016 – LOA : Encadrement d'un M2 (S. Iskandar) : La mesure de la qualité de l'air par satellites est elle réalisable ? Durée du stage : 6 mois.

2010 – LaMP : Encadrement d'un M2 (C. Barbet) : Etude de l'évolution des particules d'aérosol dans des panaches de pollution issue de l'agglomération Parisienne dans le cadre du projet MEGAPOLI. Durée du stage : 6 mois.

Diffusion et rayonnement :

2023 – 2026 : Comité de Suivi Individuel (CSI) de thèse de Sarah MARION (Université de Bourgogne, Dijon) : La pollution aux particules fines en Bourgogne Franche-Comté : variabilités à très haute résolution spatio-temporelle, modélisation, scénarisation.

2021 : Rapporteur - Jury de thèse de J. Lampilahti (Univ. de Helsinki, Finlande) : Effect of boundary layer dynamics on atmospheric new particle formation Directeur : Tuukka Petäjä.

2020 : Examinatrice -Jury de thèse de Mohamed lamine Boukhenane (IMT Douai Lille). Développement de surfaces sensibles nano-composites conductrices pour la réalisation de capteurs électroniques d'ammoniac et de nitrate d'ammonium particulaire. Directeur Patrice Coddeville.

2019 : Accueil de chercheurs étranger : Fabienne Reisen (CSIRO, Melbourne Australie) dont les thématiques de recherche portent, entre autres, sur la caractérisation des propriétés des aérosols (site Cape Grim en Tasmanie) et sur l'utilisation des micro capteurs en population générale.

2018 : Examinatrice - Jury de thèse de Euphrasie Clotilde Lovely (Université des antilles, Guadeloupe) Les poussières sahariennes et sub-sahariennes en Guadeloupe.

Principale collaboration nationale et internationale :

Je collabore avec plusieurs laboratoires de manière assez pérenne dont :

1 - le **CERI EE IMT Douai** via la plateforme ATOLL. En effet, des instruments in-situ du CERI EE IMT Douai sont actuellement installés sur la plateforme ATOLL. Nous avons réussi à encadrer une thèse ensemble (A. Velazquez Garcia) et nous avons proposé un nouveau sujet de thèse pour 2024 en cotutelle (LOA/CERI EE). Par ailleurs, nous travaillons ensemble élaborer le futur scientifique de cette plateforme scientifique.

2 – le **PC2A** dont B. Hanoune, D. Petitprez et C. Schoemaeker. Ensemble, nous développons des capteurs pour la mesure de l'exposition individuelle mais aussi pour la qualité de l'air intérieur. Grâce au soutien d'ICARE, nous développons aussi une plateforme pour la visualisation et le traitement des données qui pourrait fonctionner avec tous types de capteurs et valable nationalement. A terme, cette plateforme permettrait de faire de la science participative

avec les citoyens/volontaires portant un capteur. Par ailleurs, les mesures de gaz sur la plateforme atmosphérique ATOLL sont quasi inexistantes à l'exception du SO₂. En collaboration avec C. Schoemaeker, nous avons installé plusieurs instruments (GC-MS, FAGE) pour observer la réactivité de l'atmosphère et comprendre son impact sur les événements de formation de particules.

3 – le **LPCA** (Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère, Univ. Côte d'Opale) P. Augustin, M. Fourmentin, W. Chen. Mes collaborations avec ce labo ont pu être concrétisées par le financement de plusieurs projets dont une ANR. Le développement instrumental (Albedomètre haute résolution, Équipement drones) est au cœur de nos recherches communes. Par ailleurs, depuis 2019 un anémomètre ultrasonique est installé sur ATOLL sur l'impulsion de P. Augustin.

4 – le **LISA** (Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques, Institut Pierre Simon Laplace) P. Sellito : Après une campagne de mesures réussie en 2019 au sommet de l'Etna. Une ANR est soumise chaque année depuis pour formaliser un cadre multidisciplinaire impliquant des scientifiques de l'atmosphère/de la Terre solide et des climatologues afin de mieux comprendre les liens entre les processus volcanologiques et atmosphériques.

5 - Univ. Lund (Suede) : Dans le cadre de mes travaux de recherches sur les PUFs, je suis entré en contact avec A. Kristenssen avec qui je collabore depuis plus d'un an pour utiliser NanoMap sur les données du LOA en mode routinier.

6 - Univ. De Prague (Rep Tchèque). En 2023, j'ai accueilli via un projet MOBILEX une étudiante en thèse (L. Suchankova) pour un séjour de 6 mois (Avril – Aout 2023). Depuis ce séjour, je collabore avec plusieurs membres de son équipe encadrante et de la station de Kosetice.

Enseignement :

Mes enseignements sont effectués à l'Université de Lille, au sein du département de Physique. Les thématiques abordées ne sont pas uniquement liées à mes activités de recherche (pollution atmosphérique) : physique générale en première année de Licence, optique, mécanique (du point), projets tuteurés. Mon activité d'enseignement se concentre sur les 3 années de Licence et la première année de Master. Tous les types d'enseignements sont couverts à l'exception des cours magistraux : TD, TP, encadrement de projets et de stages, tutorats et colles. Depuis quelques années, je me concentre sur les enseignements pratiques (TP et projets encadrés/tuteurés) que j'estime capitales dans une science expérimentale telle que la physique.

Depuis 2019, je fais partie de l'équipe (constituée de 5 enseignants-chercheurs) en charge du projet nommé « **OpenLab** ». OpenLab est un projet pédagogique visant à promouvoir l'apprentissage par projet. Concrètement, il s'agit d'un FabLab auquel sera adossé une plateforme numérique qui permettra aux étudiants de réaliser des projets scientifiques avec un archivage de leur travail dans un esprit OpenSource. Dans un premier temps, il sera construit autour de nos UE de projet en Licence, Master et Licence professionnelle. Ce projet est un des projets soutenus par la Direction de l'Innovation Pédagogique de l'Université de Lille par une

réponse positive à notre proposition lors de l'appel à projet "innovation pédagogique" en juin 2019, un soutien également relayé par la FST et le département de physique. Actuellement, nous sommes dans une phase d'organisation des travaux dans le secteur concerné du bâtiment d'enseignement, de mise en place de la plateforme numérique (que je mets en place) et d'établissement de la chartre graphique.

Responsabilités pédagogiques

- Depuis 2015 : Responsable de l'UE projets tuteurés des L3PRO EREE (Energies Renouvelables et Efficacité Energétique). Nombre d'étudiants : 25.
- 2020-2021 : Responsable de l'UE Stage en laboratoire des L3 Physique fondamentale . Nombre d'étudiants : 30.
- Depuis 2022 : Responsable de l'UE projet scientifique des M1 Physique appliquée. Nombre d'étudiants : 20.
- Tuteur universitaire pour les stages en Entreprise des L3PRO
- Participation aux jurys et rapporteur pour les stages de recherche du Master 2 « Atmospheric Environment » et « Lumière Matière »

Niveau	Module	Type	17/18	18/19	19/20	20/21	21/22	22/23	23/24
L1	Physique générale (optique)	C/TD/TP	X		X	X	X	X	X
L1	Forces, Champs et Énergie	TD					X	X	X
L1	Tutorat Physique générale	TD	X						
L1	Physique appliquée aux sciences naturelles	TD			X	X		X	X
L3PRO	Projets Tuteurés (FI et FA)	TD	X		X	X	X	X	X
L3PRO	Contexte environnemental et économique	TD	X						
L3PRO	Apprentissage par projet (Météorologie Et Énergies renouvelables) – FI et FA	TD				X	X	X	X
L3PRO	Métrologie et mesure de la pollution de l'air	TD					X	X	X
M1	Atelier Thématiques de l'enseignement	TP				X	X	X	X
M1	Mesures et analyse statistiques des données	TD / TP	X		X				
M2	Démarches mesures et qualité	C/TD/TP							X
M2	Méthodes Physiques en Télé-détection	Cours	X		X		X		
ALL	Encadrement de stage / jury		X		X	X		X	X
Heures de services dues			153	0	153	153	192	192	192
Heures de services effectuées			155	5	157	157	207	202	218
CRCT				X					
Congé maternité				X					
Temps partiel (80%)			X		X	X			

B. Liste de publications

	Total	En 1 ^{er} auteur	En 2 nd auteur	Avec étudiants
Publication de Rang A	38	10	2	5
Revue internationale	1	0	0	0
Communications orales	10	8	0	0
Communications par affiche	21	9	1	4

2024

S1 A. Velazquez-Garcia, J. F. de Brito, S. Crumeyrolle, I. Chiapello, and V. Riffault. Assessment of light-absorbing carbonaceous aerosol origins and properties at the AT-OLL site in Northern France, submitted to ACP, 2023

S2 S. Crumeyrolle, J.S. Henzing, G.J.H. Roelofs, G.P.A. Kos, H.M. ten Brink. Dense fogs in the Netherlands: nitrate not sulfate is the dominant fog nuclei component, Submitted to Atmospheric Environment, 2023.

S3 M. Rahmani, S. Crumeyrolle, N. Allegri-Martiny, R. Rouvoy and A. Taherkordi. PMFORECAST: Leveraging Temporal LSTM to Deliver In situ Air Quality Predictions. Submitted to Atmospheric Pollution Research, 03/2024

S4 V. Rakotonirinjanahary, S. Crumeyrolle, M. Bogdan, B. Hanoune. A Novel method for establishing typical daily profile of PM concentrations in underground railway stations, to be submitted in April 2024

P38 S. Wang, W. Zhao, Q. Liu, J. Zhou, **S. Crumeyrolle**, X. Xu, C. Zhang, C. Ye, Yu Zheng, H. Che, W. Zhang. Strong aerosol absorption in Tibetan plateau and its radiative effects, Volume 51, Issue 6, <https://doi.org/10.1029/2023GL107833>

2023

P37 Crumeyrolle, S., Kontkanen, J., Rose, C., Velazquez Garcia, A., Bourriane, E., Catalfamo, M., Riffault, V., Tison, E., Ferreira de Brito, J., Visez, N., Ferlay, N., Auriol, F., Chiapello, I., 2022. Measurement report: Atmospheric new particle formation in a peri-urban site in Lille, Northern France. Atmospheric Chemistry and Physics. <https://doi.org/10.5194/acp-2022-436>

P36 Wang, G., Meng, L., Gou, Q., Hanoune, B., Crumeyrolle, S., Fagniez, T., Coeur, C., Akiki, R., Chen, W., 2023. Novel Broadband Cavity-Enhanced Absorption Spectrometer for Simultaneous Measurements of NO₂ and Particulate Matter. Anal. Chem. <https://doi.org/10.1021/acs.analchem.2c05237>

P35 Velazquez-Garcia, A., Crumeyrolle, S., de Brito, J.F., Tison, E., Bourriane, E., Chiapello, I., Riffault, V., 2023. Deriving composition-dependent aerosol absorption, scattering and extinction mass efficiencies from multi-annual high time resolution observations

in Northern France. *Atmospheric Environment* 298, 119613. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2023.119613>

2022

- P34 Trechera, P., Garcia-Marlès, M., Liu, X., Reche, C., Pérez, N., Savadkoohi, M., Beddows, D., Salma, I., Vörösmarty, M., Casans, A., Casquero-Vera, J. A., Hueglin, C., Marchand, N., Chazeau, B., Gille, G., Kalkavouras, P., Mihalopoulos, N., Ondracek, J., Zíková, N., Niemi, J. V., Manninen, H. E., Green, D. C., Tremper, A. H., Norman, M., Vratolis, S., Eleftheriadis, K., Gómez-Moreno, F. J., Alonso-Blanco, E., Gerwig, H., Wiedensohler, A., Weinhold, K., Merkel, M., Bastian, S., Petit, J.-E., Favez, O., Crumeyrolle, S., Ferlay, N., Dos Santos, S. M., Putaud, J.-P., Timonen, H., Lampilahti, J., Asbach, C., Wolf, C., Kaminski, H., Altug, H., Hoffmann, B., Rich, D. Q., Pandolfi, M., Harrison, R. M., Hopke, P. K., Petäjä, T., Alastuey, A. & Querol, X. (2022). Phenomenology of Ultrafine Particle Concentrations and Size Distribution Across Urban Europe. *SSRN*, 32. 10.2139/ssrn.4294020
- P33 **Crumeyrolle S.**, A. Khlystov and H. ten Brink. On the trend in below-cloud solar irradiance in the Netherlands versus that in aerosol sulphate concentration. *Atmosphere* 2022, 13(12), 2037; <https://doi.org/10.3390/atmos13122037>
- P33 Mascaut, F., Pujol, O., Brioude, J., Jensen, A., Lefranc, M., Evan, S., **Crumeyrolle, S.**, 2023. A competition–species model for water vapour–aerosol–cloud–rain interactions. *Atmospheric Research* 284, 106588. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2022.106588>

2021

- P32 **Crumeyrolle, S.**, Mensah, A., Khlystov, A., Kos, G. & ten Brink, H. (2021). On the importance of nitrate for the droplet concentration in stratocumulus in the North-Sea region. *Atmos. Env.*, 252(118278), 10.1016/j.atmosenv.2021.118278
- P31 Tobon, Y.A., Haji, D.E., Seng, S., Bengrad, F., Moreau, M., Visez, N., Chiapello, I., **Crumeyrolle, S.**, Choël, M., 2021. Impact of the particle mixing state on the hygroscopicity of internally mixed sodium chloride–ammonium sulfate single droplets: a theoretical and experimental study. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 23, 14391–14403. <https://doi.org/10.1039/D1CP01574E>
- P30 S. Wang, **S. Crumeyrolle**, W. Zhao, X. Xu, B. Fang, Y. Derimian, C. Chen, W. Chen, W. Zhang, Y. Huang, X. Deng, and Y. Tong. Real-time retrieval of aerosol chemical composition using effective density and the imaginary part of complex refractive index, *Atmos. Env.*, 20, 0818, 2020

2020

- P29 Pasquale Sellitto, Giuseppe Salerno, Alessandro La Spina, Tommaso Caltabiano, Simona Scollo, Antonella Boselli, Giuseppe Leto, Ricardo Zanmar Sanchez, **Suzanne**

Crumeyrolle, Benjamin Hanoune, and Pierre Briole Small-scale volcanic aerosols variability, processes and direct radiative impact at Mount Etna during the EPL-RADIO campaigns. *Sci Rep* 10, 15224 (2020). <https://doi.org/10.1038/s41598-020-71635-1>

- P28 P. Augustin, S. Billet, **S. Crumeyrolle**, K. Deboudt, E. Dieudonné, P. Flament, M. Fourmentin, S. Guilbaud, B. Hanoune, Y. Landkocz, C. Méausoone, S. Roy, F. G. Schmitt, A. Sentchey and A. Sokolov, Impact of Sea Breeze Dynamics on Atmospheric Pollutants and Their Toxicity in Industrial and Urban Coastal Environments, *Remote Sens.* 2020, 12(4), 648; <https://doi.org/10.3390/rs12040648>

2019

- P27 Hanoune B., Kassi, R., Verbeke, B. ASSY, E. CLAVIER, L. CRUMEYROLLE, Suzanne. DEGRANDE, Samuel. LE PALLEC, Xavier. ROUVOY, Romain. 2019. Conception and deployment of the Apolline sensor network for IAQ monitoring.
- P26 G. Wang, P. Kulinski, P. Hubert, A. Deguine, D. Petitprez, **S. Crumeyrolle**, E. Fertein, K. Deboudt, P. Flament, M. W. Sigrist, H. Yi, and W. Chen, "Filter-Free Light Absorption Measurement of Volcanic Ashes and Ambient Particulate Matter Using Multi-Wavelength Photoacoustic Spectroscopy", *Progress In Electromagnetics Research*, 166 (2019) 59–74 (IF=2.322)
- P25 Keywood, M., Selleck, P., Reisen, F., Cohen, D., Chambers, S., Cheng, M., Cope, M., **Crumeyrolle, S.**, Dunne, E., Emmerson, K., Fedele, R., Galbally, I., Gillett, R., Griffiths, A., Guerette, E.-A., Harnwell, J., Humphries, R., Lawson, S., Miljevic, B., Molloy, S., Powell, J., Simmons, J., Ristovski, Z., and Ward, J.: Comprehensive aerosol and gas data set from the Sydney Particle Study, *Earth Syst. Sci. Data Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/essd-2019-56>, in review, 2019.
- P24 **Crumeyrolle, S.**, Augustin, P., Rivellini, L.-H., Choël, M., Riffault, V., Deboudt, K., Fourmentin, M., Dieudonné, E., Delbarre, H., Derimian, Y., Chiapello, I., 2019. Aerosol variability induced by atmospheric dynamics in a coastal area of Senegal, North-Western Africa. *Atmospheric Environment*. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.01.041>

2018

- P23 Péré, J.-C., Rivellini, L., **Crumeyrolle, S.**, Chiapello, I., Minvielle, F., Thieuleux, F., Choël, M., Popovici, I., 2018. Simulation of African dust properties and radiative effects during the 2015 SHADOW campaign in Senegal. *Atmospheric Research* 199, 14–28. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2017.07.027>
- P22 Deroubaix, A., Flamant, C., Menut, L., Siour, G., Mailler, S., Turquety, S., Briant, R., Khvorostyanov, D., **Crumeyrolle, S.**, 2018. Interactions of atmospheric gases and

aerosols with the monsoon dynamics over the Sudano-Guinean region during AMMA. *Atmos. Chem. Phys.* 18, 445–465. <https://doi.org/10.5194/acp-18-445-2018>

- P21 Vernier, J.-P., Fairlie, T.D., Deshler, T., Venkat Ratnam, M., Gadhavi, H., Kumar, B.S., Natarajan, M., Pandit, A.K., Akhil Raj, S.T., Hemanth Kumar, A., Jayaraman, A., Singh, A.K., Rastogi, N., Sinha, P.R., Kumar, S., Tiwari, S., Wegner, T., Baker, N., Vignelles, D., Stenchikov, G., Shevchenko, I., Smith, J., Bedka, K., Kesarkar, A., Singh, V., Bhate, J., Ravikiran, V., Durga Rao, M., Ravindrababu, S., Patel, A., Vernier, H., Wienhold, F.G., Liu, H., Knepp, T.N., Thomason, L., Crawford, J., Ziemba, L., Moore, J., **Crumeyrolle, S.**, Williamson, M., Berthet, G., Jégou, F., Renard, J.-B., 2018. BATAL: The Balloon Measurement Campaigns of the Asian Tropopause Aerosol Layer. *Bulletin of the American Meteorological Society* 99, 955–973. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-17-0014.1>

2016

- P20 Ziemba, L.D., Beyersdorf, A.J., Chen, G., Corr, C.A., Crumeyrolle, S.N., Diskin, G., Hudgins, C., Martin, R., Mikoviny, T., Moore, R., Shook, M., Thornhill, K.L., Winstead, E.L., Wisthaler, A., Anderson, B.E., 2016. Airborne observations of bioaerosol over the Southeast United States using a Wideband Integrated Bioaerosol Sensor. *J. Geophys. Res. Atmos.* 121, 2015JD024669. doi:10.1002/2015JD024669

2015

- P19 Vernier, J. -P. ., Fairlie, T. D., Natarajan, M., Wienhold, F. G., Bian, J., Martinsson, B. G., **Crumeyrolle, S.**, Thomason, L. W. and Bedka, K. M. (2015), Increase in upper tropospheric and lower stratospheric aerosol levels and its potential connection with Asian pollution. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120: 1608–1619. doi: 10.1002/2014JD022372.
- P18 Tuccella, P., Curci, G., Grell, G. A., Visconti, G., **Crumeyrolle, S.**, Schwarzenboeck, A., and Mensah, A. A.: A new chemistry option in WRF-Chem v. 3.4 for the simulation of direct and indirect aerosol effects using VBS: evaluation against IMPACT-EUCAARI data, *Geosci. Model Dev.*, 8, 2749–2776, <https://doi.org/10.5194/gmd-8-2749-2015>, 2015.
- P17 Pikridas, M., Sciare, J., Freutel, F., **Crumeyrolle, S.**, von der Weiden-Reinmüller, S.-L., Borbon, A., Schwarzenboeck, A., Merkel, M., Crippa, M., Kostenidou, E., Psychoudaki, M., Hildebrandt, L., Engelhart, G. J., Petäjä, T., Prévôt, A. S. H., Drewnick, F., Baltensperger, U., Wiedensohler, A., Kulmala, M., Beekmann, M., and Pandis, S. N.: In situ formation and spatial variability of particle number concentration in a European

megacity, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 10219-10237, <https://doi.org/10.5194/acp-15-10219-2015>, 2015.

2014

- P16 **Crumeyrolle, S.**, Chen, G., Ziemba, L., Beyersdorf, A., Thornhill, L., Winstead, E., Moore, R. H., Shook, M. A., Hudgins, C., and Anderson, B. E.: Factors that influence surface PM_{2.5} values inferred from satellite observations: perspective gained for the US Baltimore–Washington metropolitan area during DISCOVER-AQ, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 2139-2153, doi:10.5194/acp-14-2139-2014, 2014.
- P15 Moore Richard H., Luke D. Ziemba , Dabrina Dutcher , Andreas J. Beyersdorf , Kevin Chan , **Suzanne Crumeyrolle** , Timothy M. Raymond , Kenneth L. Thornhill , Edward L. Winstead , Bruce E. Anderson, Mapping the Operation of the Miniature Combustion Aerosol Standard (Mini-CAST) Soot Generator *Aerosol Science and Technology* ,Vol. 48, Iss. 5, 2014
- P14 Eck, T. F., Holben, B. N., Reid, J. S., Arola, A., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., **Crumeyrolle, S. N.**, Berkoff, T. A., Welton, E. J., Lolli, S., Lyapustin, A., Wang, Y., Schafer, J. S., Giles, D. M., Anderson, B. E., Thornhill, K. L., Minnis, P., Pickering, K. E., Loughner, C. P., Smirnov, A., and Sinyuk, A.: Observations of rapid aerosol optical depth enhancements in the vicinity of polluted cumulus clouds, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 11633-11656, doi:10.5194/acp-14-11633-2014, 2014.
- P13 Freney, E. J., Sellegri, K., Canonaco, F., Colomb, A., Borbon, A., Michoud, V., Dousin, J.-F., **Crumeyrolle, S.**, Amarouche, N., Pichon, J.-M., Bourriane, T., Gomes, L., Prevot, A. S. H., Beekmann, M., and Schwarzenböeck, A.: Characterizing the impact of urban emissions on regional aerosol particles: airborne measurements during the MEGAPOLI experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1397-1412, doi:10.5194/acp-14-1397-2014, 2014.

2013

- P12 **Crumeyrolle, S.**, Schwarzenboeck, A., Roger, J. C., Sellegri, K., Burkhart, J. F., Stohl, A., Gomes, L., Quennehen, B., Roberts, G., Weigel, R., Villani, P., Pichon, J. M., Bourriane, T., and Laj, P.: Overview of aerosol properties associated with air masses sampled by the ATR-42 during the EUCAARI campaign (2008), *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 4877-4893, doi:10.5194/acp-13-4877-2013, 2013.

- P11 **Crumeyrolle S.**, R. Weigel, K. Sellegri, G. Roberts, L. Gomes, A. Stohl, P. Laj, G. Mombisse, T. Bourianne, V. Puygrenier, F. Burnet, F. Chosson, J.L. Brenguier, J.M. Etcheberry, P. Villani, J.M. Pichon, A. Schwarzenboeck, Airborne investigation of the aerosols–cloud interactions in the vicinity and within a marine stratocumulus over the North Sea during EUCAARI (2008), *Atmospheric Environment*, Volume 81, December 2013, Pages 288-303, ISSN 1352-2310,
- P10 Ziemba L., K. Thornhill, R. Ferrare, J. Barrick, A. Beyersdorf, G. Chen, S. **Crumeyrolle**, J. Hair, C. Hostetler, C. Hudgins, M. Obland, R. Rogers, A. Scarino, E. Winstead, B.E. Anderson : Airborne observations of aerosol extinction by in-situ and remote-sensing techniques: Evaluation of particle hygroscopicity, *Geophys. Res. Lett.*, 2013.

2011

- P9 Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Schmale, J., Schneider, J., Sodemann, H., Stohl, A., Ancellet, G., **Crumeyrolle, S.**, and Law, K. S.: Physical and chemical properties of pollution aerosol particles transported from North America to Greenland as measured during the POLARCAT summer campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10947-10963, doi:10.5194/acp-11-10947-2011, 2011.
- P8 **Crumeyrolle S.**, Tulet P., Gomes L., Garcia-Carreras L., Flamant C., Parker D. J., Matsuki A., Formenti P., and A. Schwarzenboeck : Transport of dust particles from the Bodélé region to the monsoon layer – AMMA case study of the 9–14 June 2006 period, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 479-494, doi:10.5194/acp-11-479-2011, 2011.
- P7 Kulmala, M., Asmi, A., Lappalainen, H. K., Baltensperger, U., Brenguier, J.-L., Facchini, M. C., Hansson, H.-C., Hov, Ø., O'Dowd, C. D., Pöschl, U., Wiedensohler, A., Boers, R., Boucher, O., de Leeuw, G., Denier van der Gon, H. A. C., Feichter, J., Krejci, R., Laj, P., Lihavainen, H., Lohmann, U., McFiggans, G., Mentel, T., Pilinis, C., Riipinen, I., Schulz, M., Stohl, A., Swietlicki, E., Vignati, E., Alves, C., Amann, M., Ammann, M., Arabas, S., Artaxo, P., Baars, H., Beddows, D. C. S., Bergström, R., Beukes, J. P., Bilde, M., Burkhardt, J. F., Canonaco, F., Clegg, S. L., Coe, H., **Crumeyrolle, S.**, D'Anna, B., Decesari, S., Gilardoni, S., Fischer, M., Fjaeraa, A. M., Fountoukis, C., George, C., Gomes, L., Halloran, P., Hamburger, T., Harrison, R. M., Herrmann, H., Hoffmann, T., Hoose, C., Hu, M., Hyvärinen, A., Hörrak, U., Iinuma, Y., Iversen, T., Josipovic, M., Kanakidou, M., Kiendler-Scharr, A., Kirkevåg, A., Kiss, G., Klimont, Z., Kolmonen, P., Komppula, M., Kristjánsson, J.-E., Laakso, L., Laaksonen, A., Labonnote, L., Lanz, V. A., Lehtinen, K. E. J., Rizzo, L. V., Makkonen, R., Manninen, H. E., McMeeking, G., Merikanto, J., Minikin, A., Mirme, S., Morgan, W. T., Nemitz, E., O'Donnell, D., Panwar, T. S., Pawlowska, H., Petzold, A., Pienaar, J. J., Pio, C., Plass-Duelmer, C., Prévôt, A. S. H., Pryor, S., Reddington, C. L., Roberts, G., Rosenfeld, D., Schwarz, J., Seland, Ø., Sellegri, K.,

Shen, X. J., Shiraiwa, M., Siebert, H., Sierau, B., Simpson, D., Sun, J. Y., Topping, D., Tunved, P., Vaattovaara, P., Vakkari, V., Veefkind, J. P., Visschedijk, A., Vuollekoski, H., Vuolo, R., Wehner, B., Wildt, J., Woodward, S., Worsnop, D. R., van Zadelhoff, G.-J., Zardini, A. A., Zhang, K., van Zyl, P. G., Kerminen, V.-M., Carslaw, K., and Pandis, S. N.: General overview: European Integrated project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions (EUCAARI) – integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 13061-13143, <https://doi.org/10.5194/acp-11-13061-2011>, 2011.

2010

- P6 **Crumeyrolle S.**, Manninen, H. E., Sellegri, K., Roberts, G., Gomes, L., Kulmala, M., Weigel, R., Laj, P., and Schwarzenboeck, A.: New particle formation events measured on board the ATR-42 aircraft during the EUCAARI campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 6721-6735, doi:10.5194/acp-10-6721-2010, 2010.
- P5 Matsuki, A., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., **Crumeyrolle, S.**, Venzac, H., Laj, P., and Gomes, L.: Temporal and vertical variations of aerosol physical and chemical properties over West Africa: AMMA aircraft campaign in summer 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 8437-8451, doi:10.5194/acp-10-8437-2010, 2010.
- P4 Matsuki, A., Schwarzenboeck, A., Venzac, H., Laj, P., **Crumeyrolle, S.**, and Gomes, L.: Cloud processing of mineral dust: direct comparison of cloud residual and clear sky particles during AMMA aircraft campaign in summer 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1057-1069, doi:10.5194/acp-10-1057-2010, 2010.
- P3 Reeves, C. E., Formenti, P., Afif, C., Ancellet, G., Attié, J.-L., Bechara, J., Borbon, A., Cairo, F., Coe, H., **Crumeyrolle, S.**, Fierli, F., Flamant, C., Gomes, L., Hamburger, T., Jambert, C., Law, K. S., Mari, C., Jones, R. L., Matsuki, A., Mead, M. I., Methven, J., Mills, G. P., Minikin, A., Murphy, J. G., Nielsen, J. K., Oram, D. E., Parker, D. J., Richter, A., Schlager, H., Schwarzenboeck, A., and Thouret, V.: Chemical and aerosol characterisation of the troposphere over West Africa during the monsoon period as part of AMMA, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7575-7601, doi:10.5194/acp-10-7575-2010, 2010.

2009

- P2 Tulet, P., Kaku-Crahan, M., Leriche, B., Aouizerats, and **S. Crumeyrolle**. Mixing of dust aerosols into a mesoscale convective system. Generation, filtering and possible feedbacks on ice anvils, *Atmos. Res.*, 2009.

- P1 **Crumeyrolle, S.**, Gomes, L., Tulet, P., Matsuki, A., Schwarzenboeck, A., and Crahan, K.: Increase of the aerosol hygroscopicity by cloud processing in a mesoscale convective system: a case study from the AMMA campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 6907-6924, doi:10.5194/acp-8-6907-2008, 2008.

Publications dans des revues internationales à comité de lecture

Meyer C.P. (Mick), Fabienne Reisen, Melita Keywood and **Suzanne Crumeyrolle**. Impacts of smoke from regeneration burning on air quality in the Huon Valley, Tasmania, 2011.

Communications orales (52):

- S. CRUMEYROLLE, J. KONTKANEN, C. ROSE, A. VELAZQUEZ-GARCIA, E. BOURRIANNE, M. CATALFAMO, V. RIFFAULT, E. TISON, J. FERREIRA DE BRITO, N. VISEZ, N. FERLAY, F. AURIOL, I. CHIAPELLO, New particle formation observed in the close vicinity of a French megalopolis: Lille, Environnement Urbain, Jussieu (Paris), 8-9 juin 2023.
- S. CRUMEYROLLE, J. KONTKANEN, C. ROSE, A. VELAZQUEZ-GARCIA, E. BOURRIANNE, M. CATALFAMO, V. RIFFAULT, E. TISON, J. FERREIRA DE BRITO, N. VISEZ, N. FERLAY, F. AURIOL, I. CHIAPELLO, New particle formation observed in the close vicinity of a French megalopolis: Lille, CAPPA Science meeting, Lille, 10 November 2022.
- A. VELAZQUEZ-GARCIA, S. CRUMEYROLLE, J. F. DE BRITO, E. TISON, E. BOURRIANNE, I. CHIAPELLO, V. RIFFAULT, Linking long-term aerosol chemical composition and optical properties measured at the ATOLL platform in Lille, northern France, Poster, 1st ACTRIS Science Conference, Online, 11-13 mai 2022.
- A. VELAZQUEZ-GARCIA, H. CHEBAICHEB, J. F. DE BRITO, E. TISON, S. CRUMEYROLLE, O. FAVEZ, I. CHIAPELLO, V. RIFFAULT, Multi-annual source apportionment and absorbing properties of organic aerosols in northern France, Communication orale, 13th International Conference on Air Quality, Thessaloniki (Greece) & Online, 27 juin – 1er juillet 2022.
- VELAZQUEZ-GARCIA, H. CHEBAICHEB, J. F. DE BRITO, E. TISON, S. CRUMEYROLLE, O. FAVEZ, I. CHIAPELLO, V. RIFFAULT, Multi-annual source apportionment and absorbing properties of organic aerosols in northern France, 13th International Conference on Air Quality, Thessaloniki (Greece) & Online, 27 juin – 1er juillet 2022.
- Gaoxuan Wang, Karine Deboudt, Pascal Flament, Denis Petitprez, Suzanne Crumeyrolle, Markus W. Sigrist, Dean Venables, and Weidong Chen, "Photoacoustic spectroscopy for

- filter-free measurement of aerosol particle light absorption", 4th International Conference on Atmospheric Dust, Monopoli, Italy, 4-7 October 2021.
- Riffault V., S. Crumeyrolle, A. Velazquez-Garcia, E. Tison, J. Brito, I. Chiapello, Lille observations: Spatial representativeness of the site and physical, chemical and optical properties of the PM₁ fraction, Communication orale, Workshop virtuel des acteurs et utilisateurs d'ACTRIS-FR, 10-13 novembre 2020.
- Crumeyrolle S., V. Riffault, L.-H. Rivellini, E. Tison, M. Catalfamo, C. Deroo, R. De Fillipi, Caractérisation d'épisodes de pollution particulaire observés in situ sur la plateforme d'observations de Lille, Poster, Workshop des acteurs et utilisateurs d'ACTRIS-FR, 21-24 mai 2019, Saint-Pierre d'Oléron.
- Crumeyrolle S., V. Riffault, L.-H. Rivellini, E. Tison, M. Catalfamo, C. Deroo, R. De Fillipi, Caractérisation d'épisodes de pollution particulaire observés in situ sur la plateforme d'observations de Lille, Poster, 2ème Journée scientifique Climibio, 22 mai 2019, Villeneuve d'Ascq.
- Crumeyrolle S., V. Riffault, L.-H. Rivellini, E. Tison, M. Catalfamo, C. Deroo, R. De Fillipi, Caractérisation d'épisodes de pollution particulaire observés in situ sur la plateforme d'observations de Lille, Poster, Conseil scientifique du Labex CaPPA, 1 juillet 2019, Villeneuve d'Ascq.
- Brito J., V. Riffault, E. Tison, E. Perdrix, S. Crumeyrolle, I. Chiapello, S. De Sa, S. Carbone, AMS/ACSM intercomparison with co-located instruments in northern France and other locations, Communication orale, COST COLOSSAL meeting, 5-6 mars 2019, London (Royaume-Uni).
- Wang G., Yalin A., Coeur C., Crumeyrolle S., Akiki R., Fertein E. and Chen W., Development of a Prism-based Broadband Optical Cavity (400 – 1600 nm) for High-Sensitivity Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy, 6th International Workshop on Infrared technologies, Octobre 2019, Princeton, New Jersey.
- G. Wang, C. Coeur, N. Houzel, S. Crumeyrolle, R. Akiki, E. Fertein, A. Yalin, W. Chen, "Prism-based broadband optical cavity (400-1100 nm) for high-sensitivity cavity enhanced absorption spectroscopy", *JSM-Créteil*, France, 21-23 May 2019
- L. Meng, G. Wang, P. Augustin, F. Cazier, D. Dewaele, M. Fourmentin, S. Crumeyrolle, B. Hanoune, E. Dieudonné, H. Delbarre, E. Fertein, C. Coeur, A. Tomas, W. Chen, "Measurement of Aerosol Particles Using Incoherent Broadband Cavity-Enhanced Absorption Spectrometer and Lidar in a Coastal Industrialized City" (poster), *EGU 2019*, Vienna, Austria, 7-12 April 2019
- G. Wang, L. Meng, B. Hanoune, S. Crumeyrolle, E. Fertein, T. Fagniez, C. Coeur, W. Chen, "Simultaneous measurement of NO₂ and particulate matter (PM) by broadband cavity enhanced absorption spectroscopy using supercontinuum light" (poster), 41st *PIERS* 17-20 June 2019, Rome, Italy

- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 April 2018.
- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. International Aerosol Conference 2018, St Louis USA, 2-7 September 2018.
- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. Aerosol Technology 2018 – Bilbao Spain 18-20 June 2018
- Crumeyrolle S.**, Patrick Augustin, Laura-Helena Rivellini, Marie Choël, Veronique Riffault, Karine Deboudt, Marc Fourmentin, Elsa Dieudonné, and Isabelle Chiapello. Investigation of aerosol variability induced by sea breezes in a coastal area of Senegal, North-Western Africa. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 April 2018.
- Augustin P., Sylvain Billet, Fabrice Cazier, S. Crumeyrolle, Jason Debailleul, Karine Deboudt, Hervé Delbarre, Dorothee Dewaele, Elsa Dieudonné, Benoit Escorne, Pascal Flament, Marc Fourmentin, Paul Genevray, Sarah Guilbaud, Benjamin Hanoune, Yann Landkocz, C. Meausoone, Anton Sokolov, and Coralie Vandembilcke and the Service Technique CGU DK and IRENE, Influence of sea breeze dynamics on aerosols physicochemical properties and toxicity in an industrialized city. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 April 2018.
- L.-H. Rivellini*, I. Chiapello, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, T. Podvin, E. Tison, V. Riffault , Chemical composition and optical properties of aerosols measured in Senegal during the SHADOW campaign, International Conference on Aerosol Cycle, March 21th-23th 2017, Villeneuve d'Ascq (France).
- Crumeyrolle S.**, Luke ZIEMBA, Bruce ANDERSON, Tomas MIKOVINY, Andreas BEYERSDORF, Kenneth THORNHILL, Edward WINSTEAD, Kristopher BEDKA, Armin WISTHALER, Richard MOORE, Gao CHEN, Carolyn BUTLER, Johnathan HAIR, Martha FENN. Biomass burning and cloud interactions observed during the DC3 field campaign over Colorado (USA) ; EAC 2016.
- L.-H. Rivellini*, I. Chiapello, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, T. Podvin, E. Tison, V. Riffault : Chemical characterization and optical properties of submicron particles measured in m'bour, Senegal during 2015/2016 dry season., EAC 2016
- Popovici *I. E.*, P. Goloub, T. Podvin, L. Blarel, R. Loisil, A. Mortier, F. Ducos, C. Deroo, M. Choël, **S. Crumeyrolle**, S. Victori, N. Sohne : Study of aerosol spatial variability by means of a mobile observing system. EAC 2016
- L.-H. Rivellini*, V. Riffault, P. Coddeville, I. Chiapello, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, T. Podvin, E. Tison, Chemical characterization and optical properties of submicron particles measured in M'Bour, Sénégal during 2015/2016 dry season, 5th international symposium

"Environnement et Développement Durable" - Changements climatiques : causes, impacts atténuation et adaptation, October 10th-15th, 2016, Rabat (Maroc).

- Augustin P., **S. Crumeyrolle**, *L.-H. Rivellini*, M. Fourmentin, V. Riffault, K. Deboudt, Y. Derimian, M. Choël, I. Chiapello, L. Blarel, V. BOVCHALIUK, H. DELBARRE, A. DIALLO, E. DIEUDONNE, C. GENGEMBRE, P. GOLOUB, R. LOISIL, T. NDIAYE, T. PODVIN, A. SOKOLOV, D. TANRE, E. TISON, B. TORRES, F. UNGA, I. VESELOVSKII, Harmattan, sea breeze, Nocturnal Low-Level Jet dynamics and aerosol variability in a coastal area of Senegal, Western Africa, Atelier thématique « Propriétés et impacts des poussières terrigènes sur le climat et l'environnement », March 2nd-3rd, 2016, Créteil (France).
- J.-P Vernier, T. D. Fairlie, M. Natarajan, T. Wegner, K. Bedka, H. Gadhavi, A. Jayaraman, A. K. Pandit, F. Wienhold, J. Bian, **S. Crumeyrolle**, L. Ziemba, J. Crawford, T. Knepp, L. W. Thomason and B.G. Martinsson, Current knowledge and required observations of the Asian Tropopause Aerosol Layer, ACAM workshop, Bangkok, June 2015.
- A.J. Beyersdorf, B.A. Anderson, G. Chen, C. Corr, **S. Crumeyrolle**, R. Martin, R.H. Moore, M. Shook, K.L. Thornhill, L.D. Ziemba, R. Ferrare, and J. Lin., Spatial Distribution of Aerosols in Four U.S. Regions: Impacts on Satellite Measurements, AAAR, Minneapolis, 2015.
- L.-H. Rivellini, V. Riffault, I. Chiapello, E. Tison, S. Crumeyrolle, P. Goloub, A. Diallo, T.-M Ndiaye, Instrumentation in situ pour les mesures chimiques, physiques et optiques de la pollution particulaire durant la campagne SHADOW, April 2015, M'Bour (Senegal).
- L.-H. Rivellini, V. Riffault, I. Chiapello, E. Tison, S. Crumeyrolle, P. Goloub, Preliminary analysis of in situ and optical measurements of particulate pollution during winter 2014/2015 at Lille, 2nd Scientific Day of CaPPA Labex, February 17th, 2015, Villeneuve d'Ascq (France).
- L.D. Ziemba, A.J. Beyersdorf, G. Chen, C. Corr, **S. Crumeyrolle**, D. Giles, B. Holben, C. Hudgins, R. Martin, R.H. Moore, M. Shook, K.L. Thornhill, E.L. Winstead, and B.A. Anderson Vertical Profiles of Light-Absorbing Aerosol: A Combination of In-situ and AERONET Observations during NASA DISCOVER-AQ, AGU, San Francisco, 2014.
- A.J. Beyersdorf, L.D. Ziemba, B.A. Anderson, G. Chen, C. Corr, **S. Crumeyrolle**, R.H. Moore, M. Shook, K.L. Thornhill and E.L. Winstead : The Effects of Long-Range Transport of Agricultural Smoke on AOD in Houston, TX: Insights from NASA SEAC4RS and DISCOVER-AQ, AGU, San Francisco, 2014.
- Tuccella, P., Curci, G., **S. Crumeyrolle**, G. Visconti, Simulation aerosol-clouds interaction over Europe with the meteorology-chemistry-radiation eulerian model WRF/Chem, 33rd International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Applications, 26-30 August 2013, Miami, FL, USA, 2013.
- L.D. Ziemba, Venkateswaran, K, Froyd, K, Dibb, J E, A.J. Beyersdorf, G. Chen, **S. Crumeyrolle**, C. Hudgins, J.J. Lin, R.H. Moore, K.L. Thornhill, E.L. Winstead, and B.A.

- Anderson A Survey of Airborne Observations of Biological Aerosol over the Continental United States during NASA SEAC4RS, AGU, San Francisco, 2013.
- Thornhill K.L., G. Chen, E.L. Winstead, B.A. Anderson, L.D. Ziemba, A.J. Beyersdorf, **S. Crumeyrolle**, R.H. Moore, M. Shook, and M.M. Klebb: Comparison of airborne and ground-based aerosol optical measurements made during DISCOVER-AQ California, AGU, San Francisco, 2013.
- A.J. Beyersdorf, **S. Crumeyrolle**, L.D. Ziemba, S.E. Pusede, J.B. Nowak, S.P. Burton, G. Chen, R.C. Cohen, K. Duffey, R.A. Ferrare, C.A. Hostetler, R. Martin, R.H. Moore, K.L. Thornhill, E.L. Winstead and B.A. Anderson : Aerosol Composition and Variability in the San Joaquin Valley Measured during DISCOVER-AQ, AGU, San Francisco, 2013.
- Crumeyrolle S.**, Luke Ziemba, Andreas Beyersdorf, Lee Thornhill, Edward Winstead, Gao Chen, Joel Schafer, Brent Holben, Richard Moore, Bruce Anderson, Reconciling Surface-Based Aerosol Retrievals with In-situ Aircraft Measurements in the Baltimore-Washington Area during DISCOVER-AQ, American Association for Aerosol Research, Minneapolis, Octobre 2012.
- Crumeyrolle S.**, Z. Liu, T.D. Fairlie, L.D. Ziemba, B.E. Anderson, A.J. Beyersdorf, K.L. Thornhill, E.L. Winstead, J. Dibb, R. Moore, G. Chen, Long range transport of African dust over the Atlantic Ocean : Case study from the GRIP field campaign, AGU, San Francisco, 2012.
- Crumeyrolle S., R. Weigel, K. Sellegri, G.C. Roberts, L. Gomes, A. Stohl, P. Laj, T. Bourriane, J.M. Etcheberry, P. Villani, J.M. Pichon, and A. Schwarzenboeck. Impact of cloud processes on aerosol particle properties: results from two ATR-42 flights in an extended stratocumulus cloud layer during the EUCAARI campaign (2008), International Global Atmospheric Chemistry, Beijing, China, 2012.
- Crumeyrolle S.**, L.D. Ziemba, G. Chen, K.L. Thornhill, A.J. Beyersdorf, E.L. Winstead, R.H. Moore, and B.A. Anderson : The relevance of column integrated measurements in the Baltimore-Washington area during Discover-AQ, International Global Atmospheric Chemistry, Beijing, China, 2012.
- Crumeyrolle S.**, M. Keywood, R. Fedele, J. Powell, S Lawson, J. Ward, P. Selleck, M. Cheng, R. Gillett, I. Galbally, E. Dunne, S. Molloy, F. Reisen, M. Cope : Aerosol in situ measurements by CSIRO. Australian Aerosol Conference, Camberra, Australia, 2011.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Garcia-Carreras, L. Gomes, C. Flamant, D.J. Parker, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck and P. Formenti. Transport of dust particles from the Bodélé region to the monsoon layer: AMMA case study of the 9–14 June 2006 period. International Aerosol Conference, Helsinki, Finland, 2010.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodele region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 june 2006 period. AGU, San Francisco, 2010.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodele region to the monsoon

layer. Case study of the 9-14 June 2006 period. AMS Hurricanes Meeting, Tucson, United-States, Mai 2010.

Crumeyrolle S., L. Gomes, P. Tulet, A. Matsuki and A. Schwarzenboeck. ATR-42 observations and modelisation of dust particles during the AMMA campaign. AMMA Aerosol and Chemistry Joint Meeting, 11-13 February 2009, Toulouse, France.

Crumeyrolle S., A. Schwarzenboeck, L. Gomes, H.E. Manninen, R. Weigel, J.-M. Pichon, K. Sellegri, P. Laj. Airborne in-situ measurements of physical and chemical aerosol properties during EUCAARI/IMPACT (May 2008). EUCAARI annual meeting, November 2009, Stockholm, Suede.

Crumeyrolle S., P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodele region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 June 2006 period. 3rd International AMMA conference, July 2009, Ouagadougou, Burkina-Faso.

Crumeyrolle S., L. Gomes, P. Tulet. The impact of the mesoscale convective systems (MCS) on aerosol physical and chemical properties, focusing on hygroscopicity, during the AMMA campaign. EGU, 16 April 2008, Vienna, Austria.

Crumeyrolle S., L. Gomes, P. Tulet, A. Matsuki and A. Schwarzenboeck. The role of mesoscale convective systems in the change of aerosol hygroscopic properties: a case study from the AMMA campaign. 2nd HyMeX workshop, 2-4 June 2008, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France.

Crumeyrolle S., P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodélé region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 June 2006 period. 3rd International AMMA Conference, 19-24 July 2008, Ouagadougou, Burkina-Faso.

Crumeyrolle S., L. Gomes and P. Tulet. The impact of the mesoscale convective systems (MCS) on aerosol physical and chemical properties: focusing on hygroscopicity during the AMMA campaign. 2nd International AMMA Conference, 26-30 November 2007, Karlsruhe, Germany.

Crumeyrolle S., L. Gomes, P. Tulet, A. Matsuki and A. Schwarzenboeck. Bilan de la Veine Communautaire, Workshop AMMA WP.2.4, 26 April 2007, Paris, France.

Proceedings à comité de lecture (52) :

Crumeyrolle S., Q. Bergougnoux, V. Bizet, C. Delegove, R. Loisil, R. Kassi, X. Le Pallec, R. Rouvroy, B. Hanoune, « Expériences participatives pour l'évaluation de l'exposition aux particules », Instrumentation pour le suivi environnemental – Cycle d'ateliers Nationaux 2021, online

- Riffault V., S. Crumeyrolle, A. Velazquez-Garcia, E. Tison, J. Brito, I. Chiapello, Lille observations: Spatial representativeness of the site and physical, chemical and optical properties of the PM1 fraction, Communication orale, Workshop virtuel des acteurs et utilisateurs d'ACTRIS-FR, 10-13 novembre 2020.
- Crumeyrolle S., B. Hanoune, R. Rouvoy, R. Kassi, R. Loasil, C. Delegove. Apolline : Le réseau lillois de capteurs de pollution. Defi-15 du CNRS. Banuyls, Janvier 2020
- Crumeyrolle S., V. Riffault, L.-H. Rivellini, E. Tison, M. Catalfamo, C. Deroo, R. De Fillipi, Caractérisation d'épisodes de pollution particulaire observés in situ sur la plateforme d'observations de Lille, Poster, Workshop des acteurs et utilisateurs d'ACTRIS-FR, 21-24 mai 2019, Saint-Pierre d'Oléron.
- Crumeyrolle S., V. Riffault, L.-H. Rivellini, E. Tison, M. Catalfamo, C. Deroo, R. De Fillipi, Caractérisation d'épisodes de pollution particulaire observés in situ sur la plateforme d'observations de Lille, Poster, 2ème Journée scientifique Climibio, 22 mai 2019, Villeneuve d'Ascq.
- Crumeyrolle S., V. Riffault, L.-H. Rivellini, E. Tison, M. Catalfamo, C. Deroo, R. De Fillipi, Caractérisation d'épisodes de pollution particulaire observés in situ sur la plateforme d'observations de Lille, Poster, Conseil scientifique du Labex CaPPA, 1 juillet 2019, Villeneuve d'Ascq.
- Brito J., V. Riffault, E. Tison, E. Perdrix, S. Crumeyrolle, I. Chiapello, S. De Sa, S. Carbone, AMS/ACSM intercomparison with co-located instruments in northern France and other locations, Communication orale, COST COLOSSAL meeting, 5-6 mars 2019, London (Royaume-Uni).
- Wang G., Yalin A., Coeur C., Crumeyrolle S., Akiki R., Fertein E. and Chen W., Development of a Prism-based Broadband Optical Cavity (400 – 1600 nm) for High-Sensitivity Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy, 6th International Workshop on Infrared technologies, Octobre 2019, Princeton, New Jersey.
- G. Wang, C. Coeur, N. Houzel, S. Crumeyrolle, R. Akiki, E. Fertein, A. Yalin, W. Chen, "Prism-based broadband optical cavity (400-1100 nm) for high-sensitivity cavity enhanced absorption spectroscopy", *JSM-Créteil*, France, 21-23 May 2019
- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 Avril 2018.
- El Hajj D., Crumeyrolle S., Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. International Aerosol Conference 2018, St Louis USA, 2-7 September 2018.
- Wang G., Yalin A., Coeur C., Crumeyrolle S., Akiki R., Fertein E. and Chen W., Development of a Prism-based Broadband Optical Cavity (400 – 1600 nm) for High-Sensitivity Cavity Enhanced Absorption Spectroscopy, 6th International Workshop on Infrared technologies, Octobre 2019, Princeton, New Jersey.

- G. Wang, C. Coeur, N. Houzel, **S. Crumeyrolle**, **R. Akiki**, E. Fertein, A. Yalin, **W. Chen**, "Prism-based broadband optical cavity (400-1100 nm) for high-sensitivity cavity enhanced absorption spectroscopy", *JSM-Créteil*, France, 21-23 May 2019
- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 Avril 2018.
- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. International Aerosol Conference 2018, St Louis USA, 2-7 September 2018.
- L.-H. Rivellini, I. Chiapello, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, T. Podvin, E. Tison, V. Riffault , Chemical composition and optical properties of aerosols measured in Senegal during the SHADOW campaign, International Conference on Aerosol Cycle, March 21th-23th 2017, Villeneuve d'Ascq (France).
- Crumeyrolle S.**, Luke ZIEMBA, Bruce ANDERSON, Tomas MIKOVINY, Andreas BEYERSDORF, Kenneth THORNHILL, Edward WINSTEAD, Kristopher BEDKA, Armin WISTHALER, Richard MOORE, Gao CHEN, Carolyn BUTLER, Johnathan HAIR, Martha FENN. Biomass burning and cloud interactions observed during the DC3 field campaign over Colorado (USA) ; EAC 2016.
- J.-P Vernier, T. D. Fairlie, M. Natarajan, T. Wegner, K. Bedka, H. Gadhavi, A. Jayaraman, A. K. Pandit , F. Wienhold, J. Bian, **S. Crumeyrolle**, L. Ziemba, J. Crawford, T. Knepp, L. W. Thomason and B.G. Martinsson, Current knowledge and required observations of the Asian Tropopause Aerosol Layer, ACAM workshop, Bangkok, June 2015.
- Tuccella, P., Curci, G., **S. Crumeyrolle**, G. Visconti, Simulation aerosol-clouds interaction over Europe with the meteorology-chemistry-radiation eulerian model WRF/Chem, 33rd International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Applications , 26-30 August 2013, Miami, FL, USA, 2013.
- Crumeyrolle S.**, Luke Ziemba, Andreas Beyersdorf, Lee Thornhill, Edward Winstead, Gao Chen, Joel Schafer, Brent Holben, Richard Moore, Bruce Anderson, Reconciling Surface-Based Aerosol Retrievals with In-situ Aircraft Measurements in the Baltimore-Washington Area during DISCOVER-AQ, American Association for Aerosol Research, Minneapolis, Octobre 2012.
- Crumeyrolle S.**, M. Keywood, R. Fedele, J. Powell, S Lawson, J. Ward, P. Selleck, M. Cheng, R. Gillett, I. Galbally, E. Dunne, S. Molloy, F. Reisen, M. Cope : Aerosol in situ measurements by CSIRO. Australian Aerosol Conference, Camberra, Australia, 2011.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Garcia-Carreras, L. Gomes, C. Flamant, D.J. Parker, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck and P. Formenti. Transport of dust particles from the Bodélé region to the monsoon layer: AMMA case study of the 9–14 June 2006 period. International Aerosol Conference, Helsinki, Finland, 2010.

- Crumeyrolle S.**, L. Gomes, P. Tulet, A. Matsuki and A. Schwarzenboeck. ATR-42 observations and modelisation of dust particles during the AMMA campaign. AMMA Aerosol and Chemistry Joint Meeting, 11-13 February 2009, Toulouse, France.
- Crumeyrolle S.**, L. Gomes, P. Tulet. The impact of the mesoscale convective systems (MCS) on aerosol physical and chemical properties, focusing on hygroscopicity, during the AMMA campaign. EGU, 16 April 2008, Vienna, Austria.
- Crumeyrolle S.**, L. Gomes and P. Tulet. The impact of the mesoscale convective systems (MCS) on aerosol physical and chemical properties: focusing on hygroscopicity during the AMMA campaign. 2nd International AMMA Conference, 26-30 November 2007, Karlsruhe, Germany.
- Crumeyrolle S.**, L. Gomes, P. Tulet, A. Matsuki and A. Schwarzenboeck. Bilan de la Veine Communautaire, Workshop AMMA WP.2.4, 26 April 2007, Paris, France.
- L. Meng, G. Wang, P. Augustin, F. Cazier, D. Dewaele, M. Fourmentin, S. Crumeyrolle, B. Hanoune, E. Dieudonné, H. Delbarre, E. Fertein, C. Coeur, A. Tomas, W. Chen, "Measurement of Aerosol Particles Using Incoherent Broadband Cavity-Enhanced Absorption Spectrometer and Lidar in a Coastal Industrialized City" (poster), *EGU 2019*, Vienna, Austria, 7-12 April 2019
- G. Wang, L. Meng, B. Hanoune, S. Crumeyrolle, E. Fertein, T. Fagniez, C. Coeur, W. Chen, "Simultaneous measurement of NO₂ and particulate matter (PM) by broadband cavity enhanced absorption spectroscopy using supercontinuum light" (poster), 41st *PIERS* 17-20 June 2019, Rome, Italy
- El Hajj D., **Crumeyrolle S.**, Choël M., Seng S., Tobon Y., and I. Chiapello : Modification of aerosol properties due to relative humidity. Aerosol Technology 2018 – Bilbao Spain 18-20 June 2018
- Crumeyrolle S.**, Patrick Augustin, Laura-Helena Rivellini, Marie Choël, Veronique Riffault, Karine Deboudt, Marc Fourmentin, Elsa Dieudonné, and Isabelle Chiapello. Investigation of aerosol variability induced by sea breezes in a coastal area of Senegal, North-Western Africa. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 April 2018.
- Augustin P.*, Sylvain Billet, Fabrice Cazier, **S. Crumeyrolle**, Jason Debailleul, Karine Deboudt, Hervé Delbarre, Dorothée Dewaele, Elsa Dieudonné, Benoit Escorne, Pascal Flament, Marc Fourmentin, Paul Genevray, Sarah Guilbaud, Benjamin Hanoune, Yann Landkocz, C. Meausoone, Anton Sokolov, and Coralie Vandenbilcke and the Service Technique CGU DK and IRENE, Influence of sea breeze dynamics on aerosols physicochemical properties and toxicity in an industrialized city. European Geosciences Union General Assembly 2018 - Vienna Austria, 8–13 April 2018.
- L.-H. Rivellini*, I. Chiapello, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, T. Podvin, E. Tison, V. Riffault : Chemical characterization and optical properties of submicron particles measured in m'bour, Senegal during 2015/2016 dry season., EAC 2016

- Popovici I. E.*, P. Goloub, T. Podvin, L. Blarel, R. Loisil, A. Mortier, F. Ducos, C. Deroo, M. Choël, **S. Crumeyrolle**, S. Victori, N. Sohne : Study of aerosol spatial variability by means of a mobile observing system. EAC 2016
- L.-H. Rivellini*, V. Riffault, P. Coddeville, I. Chiapello, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, T. Podvin, E. Tison, Chemical characterization and optical properties of submicron particles measured in M'Bour, Sénégal during 2015/2016 dry season, 5th international symposium "Environnement et Développement Durable" - Changements climatiques : causes, impacts atténuation et adaptation, October 10th-15th, 2016, Rabat (Maroc).
- Augustin P., **S. Crumeyrolle**, *L.-H. Rivellini*, M. Fourmentin, V. Riffault, K. Deboudt, Y. Derimian, M. Choël, I. Chiapello, L. Blarel, V. BOVCHALIUK, H. DELBARRE, A. DIALLO, E. DIEUDONNE, C. GENGEMBRE, P. GOLOUB, R. LOISIL, T. NDIAYE, T. PODVIN, A. SOKOLOV, D. TANRE, E. TISON, B. TORRES, F. UNGA, I. VESELOVSKII, Harmattan, sea breeze, Nocturnal Low-Level Jet dynamics and aerosol variability in a coastal area of Senegal, Western Africa, Atelier thématique « Propriétés et impacts des poussières terrigènes sur le climat et l'environnement », March 2nd-3rd, 2016, Créteil (France).
- A.J. Beyersdorf, B.A. Anderson, G. Chen, C. Corr, **S. Crumeyrolle**, R. Martin, R.H. Moore, M. Shook, K.L. Thornhill, L.D. Ziemba, R. Ferrare, and J. Lin., Spatial Distribution of Aerosols in Four U.S. Regions: Impacts on Satellite Measurements, AAAR, Minneapolis, 2015.
- L.-H. Rivellini*, V. Riffault, I. Chiapello, E. Tison, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, A. Diallo, T.-M Ndiaye, Instrumentation in situ pour les mesures chimiques, physiques et optiques de la pollution particulaire durant la campagne SHADOW, April 2015, M'Bour (Senegal).
- L.-H. Rivellini*, V. Riffault, I. Chiapello, E. Tison, **S. Crumeyrolle**, P. Goloub, Preliminary analysis of in situ and optical measurements of particulate pollution during winter 2014/2015 at Lille, 2nd Scientific Day of CaPPA Labex, February 17th, 2015, Villeneuve d'Ascq (France).
- L.D. Ziemba, A.J. Beyersdorf, G. Chen, C. Corr, **S. Crumeyrolle**, D. Giles, B. Holben, C. Hudgins, R. Martin, R.H. Moore, M. Shook, K.L. Thornhill, E.L. Winstead, and B.A. Anderson Vertical Profiles of Light-Absorbing Aerosol: A Combination of In-situ and AERONET Observations during NASA DISCOVER-AQ, AGU, San Francisco, 2014.
- A.J. Beyersdorf, L.D. Ziemba, B.A. Anderson, G. Chen, C. Corr, **S. Crumeyrolle**, R.H. Moore, M. Shook, K.L. Thornhill and E.L. Winstead : The Effects of Long-Range Transport of Agricultural Smoke on AOD in Houston, TX: Insights from NASA SEAC4RS and DISCOVER-AQ, AGU, San Francisco, 2014.
- L.D. Ziemba, Venkateswaran, K, Froyd, K, Dibb, J E, A.J. Beyersdorf, G. Chen, **S. Crumeyrolle**, C. Hudgins, J.J. Lin, R.H. Moore, K.L. Thornhill, E.L. Winstead, and B.A. Anderson A Survey of Airborne Observations of Biological Aerosol over the Continental United States during NASA SEAC4RS, AGU, San Francisco, 2013.

- Thornhill K.L., G. Chen, E.L. Winstead, B.A. Anderson, L.D. Ziemba, A.J. Beyersdorf, **S. Crumeyrolle**, R.H. Moore, M. Shook, and M.M. Klebb: Comparison of airborne and ground-based aerosol optical measurements made during DISCOVER-AQ California, AGU, San Francisco, 2013.
- A.J. Beyersdorf, **S. Crumeyrolle**, L.D. Ziemba, S.E Pusede, J.B. Nowak, S.P. Burton, G. Chen, R.C. Cohen, K. Duffey, R.A. Ferrare, C.A. Hostetler, R. Martin, R.H. Moore, K.L. Thornhill, E.L. Winstead and B.A. Anderson : Aerosol Composition and Variability in the San Joaquin Valley Measured during DISCOVER-AQ, AGU, San Francisco, 2013.
- Crumeyrolle S.**, Z. Liu, T.D. Fairlie, L.D. Ziemba, B.E. Anderson, A.J. Beyersdorf, K.L. Thornhill, E.L. Winstead, J. Dibb, R. Moore, G. Chen, Long range transport of African dust over the Atlantic Ocean : Case study from the GRIP field campaign, AGU, San Francisco, 2012.
- Crumeyrolle S., R. Weigel, K. Sellegri, G.C. Roberts, L. Gomes, A. Stohl, P. Laj, T. Bourriane, J.M. Etcheberry, P. Villani, J.M. Pichon, and A. Schwarzenboeck. Impact of cloud processes on aerosol particle properties: results from two ATR-42 flights in an extended stratocumulus cloud layer during the EUCAARI campaign (2008), International Global Atmospheric Chemistry, Beijing, China, 2012.
- Crumeyrolle S., L.D. Ziemba, G. Chen, K.L. Thornhill, A.J. Beyersdorf, E.L. Winstead, R.H. Moore, and B.A. Anderson : The relevance of column integrated measurements in the Baltimore-Washington area during Discover-AQ, International Global Atmospheric Chemistry, Beijing, China, 2012.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodele region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 june 2006 period. AGU, San Francisco, 2010.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodele region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 june 2006 period. AMS Hurricanes Meeting, Tucson, United-States, Mai 2010.
- Crumeyrolle S.**, A. Schwarzenboeck, L. Gomes, H.E. Manninen, R. Weigel, J.-M. Pichon, K. Sellegri, P. Laj. Airborne in-situ measurements of physical and chemical aerosol properties during EUCAARI/IMPACT (May 2008). EUCAARI annual meeting, November 2009, Stockholm, Suede.
- Crumeyrolle S.**, P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodele region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 june 2006 period. 3rd International AMMA conference, July 2009, Ouagadougou, Burkina-Faso.
- Crumeyrolle S.**, L. Gomes, P. Tulet, A. Matsuki and A. Schwarzenboeck. The role of mesoscale convective systems in the change of aerosol hygroscopic properties: a case study from the AMMA campaign. 2nd HyMeX workshop, 2-4 June 2008, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France.

Crumeyrolle S., P. Tulet, L. Gomes, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, H. Venzac and T. Bourriane. Transport of dust particles from the Bodélé region to the monsoon layer. Case study of the 9-14 June 2006 period. 3rd International AMMA Conference, 19-24 July 2008, Ouagadougou, Burkina-Faso.

Conférences grand public

Crumeyrolle S. La pollution de l'air – Conférence Liliad – Univ Lille 2019

Crumeyrolle S. Energie et qualité de l'air : approche en recherche participative, Maison Européennes des Sciences de l'Homme et de la Société - Lille, 2019

Crumeyrolle S. La pollution de l'air – Conférence Maison Régionale de l'Environnement et des Solidarités - Lille 2020

Crumeyrolle S. Capteurs de polluants : qualité de l'air et impacts, Conférence POPSU (Plateforme d'observation des projets et stratégies urbaines) – Dijon, Juillet 201

Ateliers (4/an entre 2019 et 2022) dans le cadre d'un projet de recherche participative non financé avec l'Association du Droit au Vélo (ADAV) et co-organisés par la boutique des sciences.

Crumeyrolle S. État des lieux de la qualité de l'air : Retour d'expérience sur Lille, Conférence POPSU, Dijon, Septembre 2023.

C. Travaux de Recherche

Contexte et questions scientifiques

L'une des questions environnementales les plus importantes auxquelles nos sociétés sont confrontées est la compréhension du système climatique et météorologique et de leurs changements actuels et futurs (GIEC, 2021). Les premières prises de conscience collectives de l'effet des activités humaines sur l'atmosphère ont eu lieu avec la découverte d'événements identifiables tels que les pluies acides, le trou dans la couche d'ozone, le transport de particules radioactives ou l'augmentation significative des concentrations de CO₂ sur tous les sites d'observations. Les gaz à effet de serre, tel que le CO₂, contribuent à l'effet de serre, un processus naturel vital qui maintient la Terre à une température habitable en piégeant une partie de la chaleur du soleil dans l'atmosphère. Cependant, les activités humaines ont amplifié cet effet, conduisant à des perturbations dans le système climatique global. Le changement climatique est défini comme tout changement dans le temps des paramètres statistiques du climat global par rapport à la période préindustrielle qu'il soit dû à une variabilité naturelle ou anthropogénique.

Le dernier rapport du GIEC (6^{ième} rapport publié en septembre 2021) rapporte ainsi une augmentation de la température moyenne de la surface du globe de +1.2°C entre 1901 et 2020 alors que le précédent rapport (5^{ième} rapport du GIEC publié en 2018) évoquait +1°C entre 1906 et 2012. On recense plusieurs empreintes de ce réchauffement comme l'élévation du niveau des mers, l'accentuation des événements climatiques extrêmes (sécheresses, inondations, cyclones, ...), entraînant la déstabilisation des forêts, les menaces sur les ressources d'eau douce, les difficultés agricoles, la réduction de la biodiversité, l'extension des maladies tropicales ...

Les particules atmosphériques influencent le bilan radiatif terrestre en modifiant la quantité de rayonnement atteignant la surface du globe et ainsi le climat. Les aérosols exercent ainsi un effet radiatif direct en diffusant et en absorbant le rayonnement solaire qui atteint le système terrestre. Ce phénomène conduit à un effet de refroidissement ou de réchauffement des couches atmosphériques. C'est ce qu'on appelle **l'effet radiatif direct** des aérosols. Contrairement à l'effet de serre généré principalement par les gaz à effet de serre, la capacité diffusante des aérosols conduit principalement à l'effet contraire, diminuant alors la quantité de rayonnement atteignant la surface (effet parasol : refroidissement des températures de surface). Le forçage radiatif annuel global des aérosols dû à l'effet radiatif direct a été estimé à -0,35 W.m⁻² avec une plage d'incertitude de -0,85 à +0,15 W.m⁻² (Myhre et al., 2013). L'effet de réchauffement local dû aux particules absorbantes induit également des changements dans les profils verticaux de température, l'humidité relative et la stabilité de la colonne atmosphérique, ce qui modifie les conditions de formation des nuages (Boucher et al., 2013; Ramanathan et al., 2001). Cet effet est connu sous le nom **d'effet semi-direct**.

Les aérosols peuvent aussi avoir un impact radiatif important via les nuages (**effet indirect**, Figure 1). En effet, les particules sont capables d'offrir à la vapeur d'eau atmosphérique

une surface solide pour condenser. Ce processus constitue l'activation des particules d'aérosol en gouttelettes d'eau nuageuse. L'hygroscopicité d'une particule désigne sa capacité à adsorber l'eau liquide à sa surface et dépend essentiellement des caractéristiques physico-chimiques des aérosols. Lorsqu'elles sont activables, les particules d'aérosols sont appelées noyaux de condensation nuageux (CCN). Une augmentation de la concentration en noyaux de condensation nuageuse conduit généralement à une augmentation de la concentration de gouttelettes dans un système nuageux. Pour un contenu en eau constant dans le nuage, l'augmentation de la concentration de gouttelettes induit alors une diminution de leur taille, mais une augmentation de la surface totale des gouttelettes dans le nuage. L'albédo du nuage augmentant, la part d'énergie réfléchiée par les nuages s'accroît, refroidissant d'avantage le système. Il s'agit de l'**effet indirect du premier ordre**, ou effet **Twomey** (1977), qui est extrêmement difficile à quantifier expérimentalement (IPCC, 2001). **Le deuxième effet indirect** découle du premier ; si les gouttelettes sont plus petites, elles atteignent plus difficilement la taille critique au-delà de laquelle elles peuvent précipiter. Cet effet a donc tendance à retarder le processus de formation des précipitations et modifier la dynamique du système nuageux. Dans le cas de nuages fins de couche limite, les gouttelettes ne pouvant jamais atteindre cette taille critique, les précipitations sont inhibées. Albrecht et al. (1989) a montré que cet effet aurait tendance à augmenter le contenu en eau nuageuse, tandis que Ackerman et al. (2004) ont démontré que le contenu en eau diminuerait par effet d'entraînement au sommet du nuage. La couverture nuageuse moyenne au-dessus de la Terre serait donc, selon les études, plus ou moins importante, entraînant un accroissement ou une décroissance du forçage négatif des nuages.

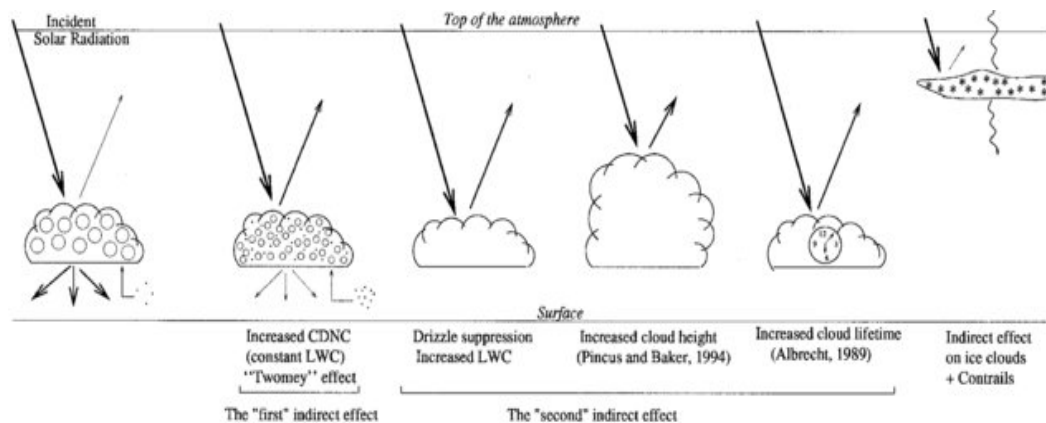


Figure 1: Effets indirects des particules sur les nuages (Boucher et al., 2013)

En plus de leur impact radiatif, des particules atmosphériques ont un effet sur la santé humaine qui figure comme parmi les effets les plus décelables et rapides. Le rapport de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) de 2014 affirme que la pollution de l'air extérieur entraîne la mort prématurée de 3,7 millions de personnes par an, contre 4,3 millions morts par an pour la pollution de l'air intérieur. Une étude de l'OMS (Pascal et al., 2013) sur des mesures menées entre 2004 et 2006 montre que pour 25 villes européennes, les concentrations en particules fines (particules d'aérosols dont les diamètres sont inférieurs à $2,5 \mu\text{m}$) de 24 de ces villes se situent en moyenne au-dessus du seuil annuel de concentration recommandés par l'OMS (seuil de $\text{PM}_{2.5} = 10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Dans cette étude, la ville présentant la concentration en particules fines la

moins importante est Stockholm (789 000 habitants) avec en moyenne $9,4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, et la plus polluée est Bucarest (1,913 millions d'habitants) avec $38,2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ représentant alors 22,1 mois d'espérance de vie en moins pour ses habitants. A Lille (1,146 millions d'habitants), la concentration moyenne de ces particules fines ($\text{PM}_{2.5}$) pour les 4 dernières années (2018-2021) de mesures atteint $13,6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et entraîne ainsi une diminution de l'espérance de vie de ses habitants de 5 mois environ.

Néanmoins, (Fung et al., 2022) ont montré que la concentration massique n'était pas un paramètre suffisant pour estimer de façon précise l'impact sanitaire de la pollution particulaire. En particulier, les particules ultrafines (PUF, $D_p < 100 \text{ nm}$) représentent une fraction très faible de la masse de particules en suspension, mais dominant par leur concentration en nombre. En effet, les PUFs représentent 80% de la concentration en nombre de particules dans un environnement urbain (Morawska et al., 1998) mais ne sont toujours pas réglementées en air ambiant. En raison de leur petite taille, les PUFs peuvent pénétrer profondément dans le système respiratoire, atteignant les régions pulmonaires les plus distales, les alvéoles (Xi and Longest, 2008), et affectant également les systèmes cardiovasculaire et nerveux central (Costa et al., 2019). En raison de leur surface totale, les PUF peuvent adsorber de grandes quantités de polluants atmosphériques toxiques (par exemple, des gaz oxydants tels que l'ozone, l'oxyde d'azote, des composés organiques et des métaux de transition), ce qui conduit à des aérosols plus dangereux (Terzano et al., 2010). Les PUF sont émises par diverses sources primaires telles que les véhicules automobiles, les centrales électriques au charbon, les installations au gaz et la combustion de biomasse, mais également de source secondaire la conversion gaz-particules (Junkermann and Hacker, 2018). Cette dernière entraîne la formation de nouvelles particules (FNP), au cours de laquelle des amas de taille nanométrique se forment par nucléation à partir de gaz condensables, puis, au fil des jours, atteignent des diamètres de $\sim 100 \text{ nm}$ (Kulmala, 2003). Ces particules fines présentent une grande variabilité spatiale et temporelle (Karumanchi et al., 2021), en fonction de leurs sources, des vents locaux, de la turbulence et de la dynamique de l'air (Augustin et al., 2020). Des inhomogénéités d'un facteur 2 à 9 dans la concentration moyenne en nombre de particules ont été mesurées dans des villes européennes (Birmili et al., 2013; Mishra et al., 2012).

Les grandes incertitudes liées au rôle des particules dans les effets sanitaires et climatiques sont principalement dues à une connaissance partielle et insuffisante des propriétés des aérosols et de leurs variations durant leur transport atmosphérique. En effet, les aérosols atmosphériques sont soumis à des processus de vieillissement lors des interactions entre les particules et les gaz, rendant leurs propriétés physiques, chimiques, optiques, hygroscopiques, pour n'en citer que quelques-unes, en constante évolution (Zhang et al., 2008). Ainsi, les particules atmosphériques sont le siège (i) de la condensation de composés gazeux non volatils ou semi-volatils formés par réaction photochimique (Robinson et al., 2007), (ii) de réactions chimiques hétérogènes à leur surface (Li et al., 2016), (iii) de la coagulation avec d'autres particules (Ramabhadran et al., 1976) et (iv) de cycles nuageux entraînant des changements importants de leur taille et de leur composition (Levin et al., 1996). Les aérosols atmosphériques sont donc un mélange complexe et hétérogène de particules d'origine, de taille et de composition chimique diverses,

caractérisé par une grande variabilité spatiale et temporelle, en raison de leur durée de vie relativement courte dans la troposphère, allant de quelques jours à quelques semaines (Ramanathan et al., 2001).

Pour aborder toutes ces questions, j'utilise principalement des mesures in-situ, qu'elles soient embarquées (aéroportées, drone etc...), fournies par des expériences menées en laboratoire ou encore issues d'observatoires au sol. Les instruments utilisés au sol ou embarqués sont souvent similaires et permettent de déterminer les propriétés physiques (distribution en taille – SMPS, APS – Aerosol Particle Sizer, LAS, concentration totale en nombre- CPC), chimiques (concentrations et contributions des composants majoritaires – ACSM, AMS, Filtres etc...), les propriétés optiques (Coefficient de diffusion – néphélomètre, coefficient d'absorption : AE33, PSAP - Particle Soot Absorption Photometer, MAAP - Multi Angle Absorption Photometer, et coefficient d'extinction : CAPS- Cavity Attenuated Phase Shift, épaisseur optique - photomètre), ainsi que leur propriétés hygroscopiques (Compteur de Concentration de noyaux de condensation – CCNC, $f(RH)$ facteur d'amplification du coefficient de diffusion - néphélomètre humidifié en tandem) des aérosols. Avant mon recrutement, mes travaux de recherche (LaMP, NASA) ont été dédiés aux mesures aéroportées à travers de grands projets internationaux comme, par exemple, EUCAARI (European Aerosol Cloud Climate and Air Quality Interactions project, <https://cordis.europa.eu/project/id/36833>) mobilisant de nombreux moyens au sol et aéroportés européens, mais aussi DISCOVER-AQ projet porté par la NASA (<https://science.nasa.gov/mission/discover-aq/>, 4 campagnes de mesures aéroportées dans 4 régions différentes) et dédié à améliorer les restitutions des observations satellitaires afin de mieux estimer les concentrations des polluants en surface. Au CSIRO (Melbourne, Australie), j'ai participé au maintien des instruments d'une des stations la plus ancienne du réseau WMO-GAW (World Meteorological Organization-Global Atmosphere Watch), la station de fond localisée à Cape Grim (Tasmanie, <https://capegrim.csiro.au/>) fonctionnant en continu depuis 1976. Lors de ces expériences professionnelles, j'ai acquis des compétences pour la maintenance de ces instruments mais aussi pour l'analyse de base de données importantes (en termes de nombre d'instruments et de séries temporelles longues)

Depuis mon recrutement en 2013, j'ai eu la chance de pouvoir développer en collaboration avec l'IMT Nord-Europe une plateforme d'observation in-situ des aérosols à l'université de Lille et qui fait maintenant partie du réseau européen ACTRIS (<http://www.actris.net/>). Je suis responsable de la partie aérosol in-situ (AIS) de cette plateforme et je suis actuellement PI de 5 instruments (SMPS, CPC, 2 Néphélomètres, USA). Dans le cadre de projets de recherche incluant cette plateforme, j'ai développé des collaborations pérennes avec des laboratoires dans la région Hauts-de-France. A Lille, je travaille en collaboration très étroite avec le PC2A et le LASIRE afin de compléter la station de nouvelles mesures (la réactivité atmosphérique avec C. Schoemaeker ainsi que la mesure des pollens avec M. Choel et N. Visez) mais aussi afin de mieux évaluer la répartition spatiale des polluants particuliers dans la métropole en utilisant des microcapteurs mobiles et fixes (<https://www.apolline.science/>, projet LOOKUP déposé 3 fois à l'ANR, B. Hanoune, D. Petitprez). Par ailleurs, je collabore étroitement, surtout depuis l'installation d'un anémomètre ultra sonique, avec le LPCA (P. Augustin, Crumeyrolle et al

2019, Augustin et al. 2020) afin d'analyser le rôle de la dynamique atmosphérique sur les propriétés des aérosols.

Mon travail de recherche a donc consisté à mieux comprendre l'évolution des propriétés des aérosols depuis leur formation dans l'atmosphère (Chapitre 1), leurs interactions avec la vapeur d'eau atmosphérique en régime sous- et sur-saturé (Chapitre 2) puis d'établir un lien entre les propriétés optiques et chimiques des aérosols (Chapitre 3) afin de pouvoir estimer à partir de mesure satellitaires une contribution des différentes espèces chimique.

Chapitre 1. - Formation de nouvelles particules

La formation de nouvelles particules (FNP) conduit à la formation d'un grand nombre de particules de moins de 20 nm qui vont contribuer à l'augmentation des niveaux de particules ultra fines (PUF) observés dans l'air ambiant. Ces derniers sont connus pour avoir des effets néfastes sur la santé humaine (Politis, 2013; Schwartz et al., 1996) et pour affecter les propriétés optiques et physiques de l'atmosphère (Seinfeld and Pandis, 2016). La FNP résulte d'une suite complexe de mécanismes qu'il est toutefois possible de scinder en deux étapes principales : (i) la nucléation, qui est l'étape de formation d'embryons thermodynamiquement stables de l'ordre du nanomètre, (ii) puis la croissance de ces embryons, en compétition permanente avec leur perte par coagulation sur des particules pré-existantes.

La formation d'embryons multimoléculaires représente la création d'une nouvelle phase à travers la transformation de vapeur en phase condensée. Le potentiel d'une espèce chimique à jouer le rôle de précurseur gazeux pour la nucléation est déterminé par son abondance, sa volatilité et sa réactivité. La FNP dans l'atmosphère est étroitement liée au déroulement de réactions chimiques ou photochimiques en phase gazeuse. En effet, les concentrations en précurseurs gazeux requises pour la nucléation sont obtenues par photo-oxydation de gaz atmosphériques, tels que le dioxyde de soufre ou encore différents composés organiques volatiles. Le précurseur gazeux identifié comme étant le plus commun est l'acide sulfurique, en raison de sa faible pression de vapeur saturante dans les conditions de température atmosphérique classiques. Les concentrations minimales en acide sulfurique nécessaires pour le déclenchement d'évènements de nucléation dans l'atmosphère semblent être de l'ordre de 10^5 cm^{-3} (Nieminen et al., 2009). Dans l'atmosphère, l'acide sulfurique gazeux est le produit de l'oxydation du dioxyde de soufre. D'autres précurseurs ont été identifiés comme acteurs de la nucléation dans différents environnements tels que l'ammoniaque, différentes amines, des acides organiques, des oxydes d'iode ou bien encore des ions.

La taille et la composition chimique des embryons critiques restent mal connues aujourd'hui, en particulier à cause des limites instrumentales qui ne permettent pas l'analyse directe de ces embryons. Les mesures indirectes ainsi que les calculs théoriques suggèrent que l'embryon critique aurait un diamètre de l'ordre de 1 - 1.5 nm (Kirkby et al., 2011; Kulmala et al., 2013). La FNP n'est observable que si les noyaux critiques parviennent à grossir à des tailles détectables, de l'ordre de 1.5 – 3 nm. Ces embryons grossissent à travers deux mécanismes principaux (i) la condensation de précurseurs gazeux sur la surface des embryons et (ii) la coagulation avec d'autres particules. Le sort des embryons fraîchement formés est défini par la compétition entre leur perte par coagulation sur des particules pré-existantes et leur croissance vers des tailles plus élevées.

En raison de leur croissance sous l'effet des processus de condensation et de coagulation, ces particules peuvent atteindre des tailles telles ($> 100 \text{ nm}$) qu'elles agissent comme des noyaux de condensation des nuages (CCN), ce qui affecte la formation des nuages et le climat (Kerminen et al., 2012). Lors d'évènement de FNP, la contribution en nombre des émissions primaires et du transport régional devient alors mineure (Ma and Birmili, 2015).

Ces événements de FNP ont été observés dans le monde entier (Kerminen et al., 2018; Kontkanen et al., 2017; Kulmala et al., 2004) dans divers environnements, depuis la couche limite (CL) dans les zones urbaines (Ganguly and Jayaraman, 2006; Roig Rodelas et al., 2019; Tuch et al., 2006; Wehner and Wiedensohler, 2003) jusqu'aux zones polaires éloignées (Dall'Osto et al., 2018), mais aussi dans la troposphère libre (Rose et al., 2015b, 2015a).

L'occurrence des FNP dépend de divers facteurs, notamment de la force des émissions des gaz précurseurs, de la concentration en nombre de la population d'aérosols préexistante, des paramètres météorologiques et de la capacité d'oxydation de l'atmosphère (Kerminen et al., 2018). Les événements de FNP sont généralement associés à une origine photochimique et se produisent donc principalement pendant la journée (Kulmala et al., 2014), quelques rares événements étant observés pendant la nuit (Roig Rodelas et al., 2019; Salimi et al., 2017). Une étude récente (Bousiotis et al., 2021) utilisant un grand ensemble de données (16 sites) sur l'Europe (6 pays) a mis en évidence que l'intensité du rayonnement solaire, la température et la pression atmosphérique ont une relation positive avec l'occurrence des événements FNP sur la majorité des sites, favorisant soit la formation des particules, soit leur taux de croissance. Les conditions de température et de rayonnement impliquent alors une occurrence plus importante de ces événements au printemps et en été. Cette « saisonnalité » de l'occurrence des FNP a été mise en évidence par Nieminen et al. (2018) en utilisant un ensemble de données provenant de 36 sites continentaux dans le monde entier. Le rayonnement solaire est considéré comme l'un des facteurs les plus importants dans l'apparition des événements FNP, car il contribue à la production des précurseurs gazeux (Bousiotis et al., 2021). De plus, des températures plus élevées sont considérées comme favorables à la croissance des particules nouvellement formées car elles peuvent être liées à des concentrations accrues de vapeur organique (Wang et al., 2013a) qui favorisent la formation de particules mais réduisent également la stabilité des amas moléculaires initiaux (Deng et al., 2020; Kurtén et al., 2007).

La vitesse du vent montre des effets variables sur l'occurrence des événements de FNP, semblant dépendre de l'emplacement du site plutôt que de leur type (Bousiotis et al., 2021). En outre, l'origine des masses d'air joue un rôle très important, car les masses d'air de différentes origines ont des caractéristiques météorologiques, physiques et chimiques différentes. Par conséquent, la probabilité d'occurrence d'un événement FNP à un endroit et à un moment donné dépend non seulement des émissions locales, mais aussi du transport à longue distance (Sogacheva et al., 2007; Tunved et al., 2006) et des conditions météorologiques synoptiques à l'échelle européenne (Berland et al., 2017).

Néanmoins, des différences ont été constatées à la fois dans la saisonnalité (printemps vs été) et dans l'intensité des événements FNP en fonction du type de site (urbain, trafic, fond régional, rural, polaire, haute altitude (Dall'Osto et al., 2018; Sellegri et al., 2019)). Cette variabilité semble être liée aux conditions environnementales propres à chaque site, ce qui rend difficile de tirer des conclusions générales sur les conditions de déclenchement des événements FNP (Berland et al., 2017; Bousiotis et al., 2021). Théoriquement, on devrait observer globalement moins d'événements de FNP dans les environnements présentant des niveaux de pollution

de fond élevés. En effet, une concentration surfacique élevée des particules préexistantes (souvent décrite avec le puits de condensation, CS) agira comme un puits pour les embryons nouvellement formés (Kalkavouras et al., 2017). Pourtant, on observe des cas où les événements FNP se produisent les jours où le CS est plus élevé par rapport aux conditions moyennes (Größ et al., 2018; Kulmala et al., 2017). Malgré les grandes valeurs de CS, des études comparatives entre les sites ruraux et urbains ont signalé une fréquence plus élevée d'événements FNP sur les sites urbains par rapport aux sites de fond (Peng et al., 2017) ainsi que des taux de formation et de croissance des particules plus élevés (Nieminen et al., 2018; Salma et al., 2016; Z. Wang et al., 2017) attribués à une concentration plus élevée d'espèces condensables.

Afin de mieux comprendre ces événements de FNP, j'ai participé à plusieurs campagnes de mesures aéroportées (EUCAARI -2007-2010 - et MEGAPOLI - 2009-2010) et développé au sein du LOA une plateforme de mesures in-situ permettant la mesure des propriétés des particules fines ($D_p < 1\mu\text{m}$). Ces mesures ont permis une meilleure compréhension des événements de FNP dans un environnement urbain : conditions environnementales favorisant ces événements, leur croissance dans le temps ainsi que leur impact sur la qualité de l'air (Ma and Birmili, 2015). Mais aussi, les mesures mobiles ou en réseau m'ont permis d'analyser leur étendue verticale et horizontale (Crumeyrolle et al., 2010) ainsi que leur transport à grande échelle (Pikridas et al., 2015).

1.1 Évènements de FNP dans un environnement urbain (Crumeyrole et al., 2023)

La distribution saisonnière des événements FNP sur le site ATOLL (Lille) est présentée dans la Figure 2. Les données manquantes du SMPS (Figure 2) sont d'environ 40 % de janvier à avril en raison des étalonnages annuels dans les locaux du fabricant et de quelques campagnes de laboratoire (oct 2018 - juin 2019). Selon Dal Maso et al. (2005), les observations peuvent être catégorisées en 3 classes : les événements de formation de nouvelles particules (PUF présentes et dont le diamètre augmente dans la journée), les jours indéfinis (présence de PUF mais pas de grossissement ou grossissement très rapide (<1h)) et les jours sans événements (pas de PUF). Sur les 4 années de mesures (2017-2020), 96 (11 %) jours ont été classés comme des événements FNP, 355 (40 %) comme des jours non définis et 432 (49 %) comme des jours sans événement. On peut également noter que la plupart des événements FNP identifiés sur le site ATOLL ont été observés au printemps (mars-avril-mai, 27 événements correspondant à 15 % des jours où des observations étaient disponibles au cours de cette saison) et en été (juin-juillet-août, 33 événements correspondant à 19 %) avec un maximum observé en juin en cohérence avec une étude précédente sur l'Europe centrale (Dall'Osto et al., 2018). En hiver, le nombre d'événements est extrêmement limité (un seul événement observé en février). Dans les sections suivantes, seules les observations effectuées au printemps et en été seront discutées en raison de la faible représentativité des événements FNP en automne (n=15) et en hiver (n=1).

En utilisant des mesures sur le long terme de 36 sites (polaires, ruraux, de haute altitude, éloignés et urbains), Nieminen et al. (2018) ont rapporté une fréquence annuelle de FNP inférieure à 15 % pour la moitié des sites (18 sites de tous types) et occasionnellement supérieure à 30 % pour 10 sites. L'analyse de la fréquence des FNP survenant uniquement sur des sites urbains ou sous influence anthropogénique montre de grandes différences d'un site à l'autre pour toutes les saisons. En effet, les fréquences d'occurrence des FNP varient de 20 % (Helsinki en Finlande, Sao Paulo au Brésil) à 80 % (Beijing en Chine, Marikana en Afrique du Sud) au printemps et de 7 % (Helsinki) à 78 % (Marikana) en hiver. La moyenne annuelle des fréquences d'occurrence de la FNP se situe entre 11 % (Helsinki) et plus de 60 % (Pékin et Marikana). La fréquence des événements observés sur ATOLL (variation saisonnière et valeurs - max 20%) est similaire aux observations réalisées à Paris (Dos Santos et al., 2015) alors que la fréquence des jours indéfinis (Paris : < 20% ; Lille : >40%) et des jours sans événement (Paris : > 60% ; Lille : <40%) est très différente.

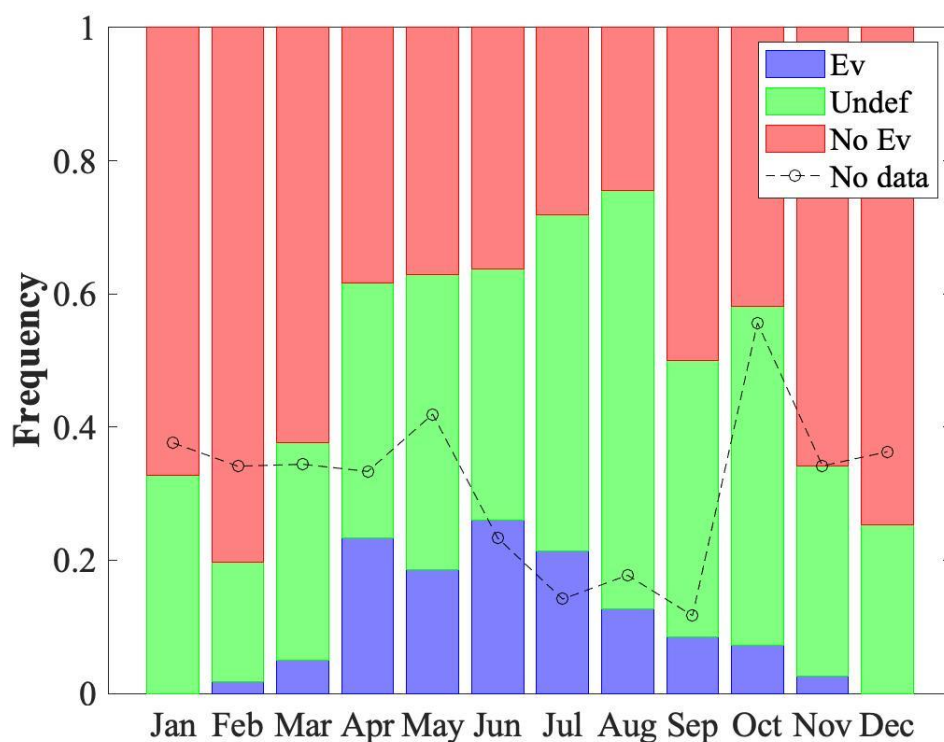


Figure 2: Distribution saisonnière des jours durant lesquels un évènement de FNP se produit (bleu), des jours non-définis (vert), et des jours sans évènement de FNP (rouge) sur le site d'ATOLL (Lille, France) entre 2017 et 2020. Les jours ou les données manquants sont exclus du nombre total de jour par mois et leur fréquence est indiquée par les cercles noirs.

Les distributions en taille du nombre de particules (PNSD) médianes obtenues à partir du SMPS sont présentées Figure 3 pour les jours d'événements de FNP (environ 800 PNSD), les jours non-définis (environ 2300 PNSD) et les jours sans évènement (environ 1700 PNSD) observés uniquement au printemps et en été. Toutes les distributions en taille des aérosols ont été sélectionnées puis moyennées (médiane) à une résolution temporelle d'une heure. La Figure 3a montre l'émergence de nouvelles particules d'aérosol de petit diamètre, suivie de la croissance de ces particules vers des tailles plus grandes. Si ce phénomène se produit à l'échelle régionale (quelques dizaines de km de rayon), on observe un " tracé en forme de banane " dans les distributions du nombre de particules en fonction du temps à un endroit fixe. Sur la figure 3a, on peut clairement voir un mode ultra-fin apparaître de 10h00 à 15h00 (UTC) et croître pendant le reste de la journée. Vers 23h00 UTC, les particules nouvellement formées atteignent un diamètre moyen de 50 nm, similaire au diamètre médian du mode des particules préexistantes observé le matin (00h00 - 08h00). Le "jour médian indéfini" (Figure 3b) met en évidence une augmentation soudaine de PUF de 10:00 à 15:00 (UTC) qui ne croît pas et qui ne dure pas. Le "jour médian sans évènement" (figure 3c) ne montre aucun signe de croissance des particules, comme prévu.

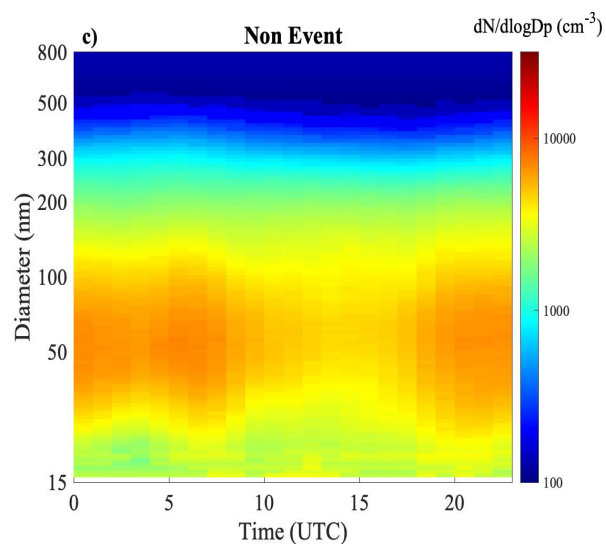
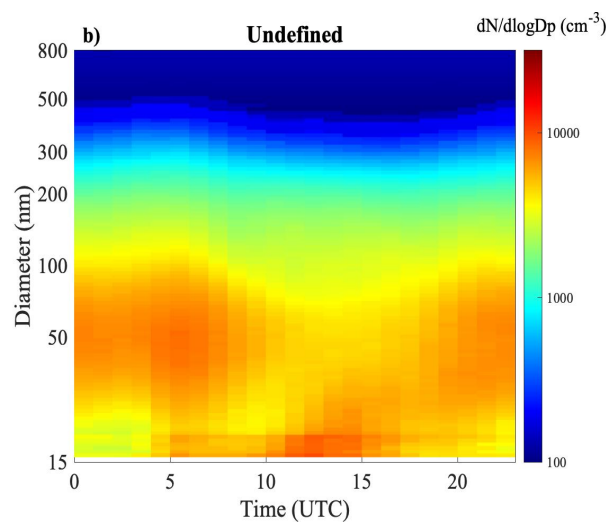
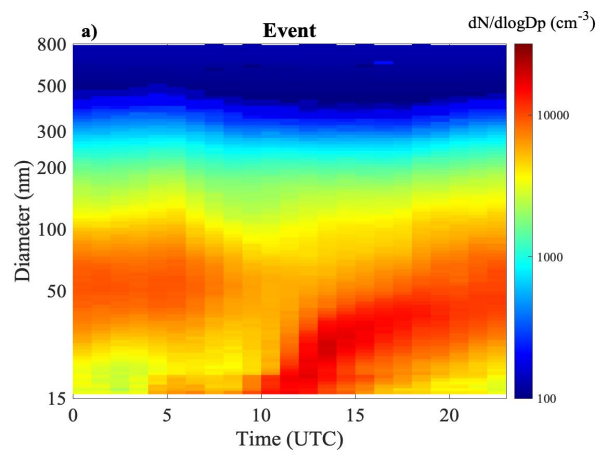


Figure 3: Distributions en taille médiane des particules ($15.7 \text{ nm} < D_p < 800 \text{ nm}$) observées durant des jours (a) des épisodes de FNP, (b) non-définis et (c) de non-événement au printemps et en été 2017-2020.

Pour chaque événement de FNP, les heures de début et de fin de l'événement, le taux de croissance du mode de nucléation depuis quelques nanomètres jusque quelques centaines de nanomètres (GR) et les puits de condensation ont été déterminés à partir des données expérimentales (Kulmala et al., 2001). Les valeurs du taux de croissance ($GR_{15.7-30nm}$) observées à ATOLL se situent entre 0.8 et 15.7 $nm.h^{-1}$ (Figure 4) et montrent une forte variation saisonnière avec une variabilité des mesures très importante en été et au printemps. La Figure 4 met en évidence qu'en dessous de 20°C, les valeurs de $GR_{15.7-30nm}$ sont inférieures à 6 $nm.h^{-1}$, alors que, dans des conditions plus chaudes ($T > 20^\circ C$), les $GR_{15.7-30nm}$ atteignent des valeurs jusqu'à 16 $nm.h^{-1}$. Ces résultats montrent une dépendance claire de la croissance des particules à la température. En effet, il a été démontré que des températures plus élevées favorisent l'émission de précurseurs biogéniques, y compris les monoterpènes connus pour favoriser l'apparition d'événements FNP (Kulmala et al., 2004). Des études récentes (Paasonen et al., 2018; Yli-Juuti et al., 2011) ont montré que le GR a généralement des valeurs plus importantes pendant les périodes chaudes et surtout en été. Au-dessus des zones urbaines telles que Beijing ou Shangaï, le $GR_{15-25nm}$ n'a pas montré de variation saisonnière claire (Yao et al., 2018).

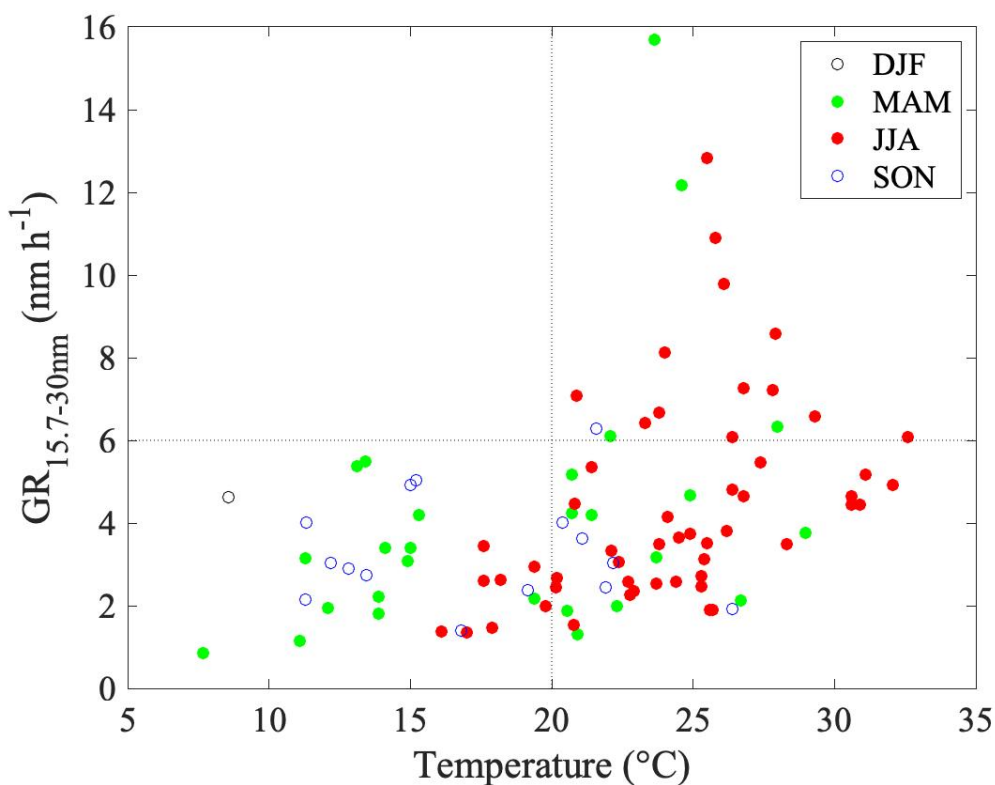


Figure 4: Valeurs du taux de croissance ($GR_{15.7-30nm}$) en fonction de la température ambiante.

Le facteur de force de nucléation ($NSF_{15,7-100}$) est calculé comme le rapport entre les concentrations de particules fines et d'accumulation observées pendant le jour de nucléation sur le même rapport observé et moyenné pendant des jours sans événement (Salma et al., 2017). Les concentrations en nombre de particules du mode fin ($N_{15,7-100}$) et du mode accumulation

($N_{100-800}$) ont été extraites des données du SMPS. Le temps de résidence atmosphérique limité des particules fines (généralement inférieur à 10 h) signifie qu'une grande partie de la concentration $N_{15.7-100}$ peut également être liée à des émissions locales et/ou à des processus de formation, y compris les événements FNP. Au contraire, en raison d'un temps de résidence plus long dans l'atmosphère (jusqu'à 10 jours), la $N_{100-800}$ est davantage liée à de grandes échelles spatiales et temporelles. Par conséquent, le numérateur représente l'augmentation de particules ultra fines ($D_p < 100$ nm) par rapport à $N_{100-800}$ causée par toutes les sources, tandis que le dénominateur représente le même paramètre mais dû à toutes les sources à l'exception des FNP. La méthode NSF est basée sur l'hypothèse que les sources d'aérosols sont similaires d'un jour à l'autre et d'une saison à l'autre, à l'exception de l'occurrence sporadique des FNP. Compte tenu du grand nombre de jours d'événements (96) et de non-événements (432) utilisés pour calculer les $NSF_{15.7-100}$, on peut supposer que les sources sporadiques/occasionnelles (c'est-à-dire non observées quotidiennement) de PUF autres que les événements de FNP (par exemple les panaches volcaniques) ont peu d'impact sur les $NSF_{15.7-100}$ par rapport aux sources toujours actives (comme le trafic, les industries, etc...).

La NSF est généralement utilisée pour mieux évaluer la contribution des FNP à la concentration en nombre de particules fines ($D_p < 100$ nm) par rapport aux concentrations de fond. Si la NSF est proche de 1, alors la contribution relative de la FNP à la concentration en nombre de particules par rapport aux autres sources est négligeable, comme sur le site urbain de Grenade (Espagne) (Casquero-Vera et al., 2021). En outre, Salma et al. (2017) ont également défini deux seuils pour NSF_{6-100} afin de décrire la contribution de FNP en tant que source unique : une contribution considérable ($1 < NSF_{6-100} < 2$) ou plus importante que celle de tous les autres secteurs réunis ($NSF_{6-100} > 2$). Il ne faut pas oublier que ces seuils ont été définis en fonction du diamètre de coupure inférieur initialement fixé à 6 nm. Comme le diamètre de coupure inférieur utilisé dans cette étude est un peu plus grand (15,7 nm au lieu de 6 nm) que celui utilisé par Salma et al. (2017), le $NSF_{15.7-100}$ calculé est nécessairement sous-estimé par rapport au NSF_{6-100} de Salma et al. (2017). La médiane horaire du rapport de concentration des particules fines par rapport aux particules d'accumulation a été calculée pour les jours d'événement FNP et les jours sans événement.

Au printemps, le facteur $NSF_{15.7-100}$ reste assez constant (environ 1,5) pendant la nuit et le matin et atteint un maximum à 2,5 à 16:00 UTC. Cela indique que la FNP a un effet significatif sur la concentration du nombre de particules seulement quelques heures (2-3) après l'heure de début moyenne de la FNP. Pendant l'été, la tendance de la $NSF_{15.7-100}$ est assez similaire avec un pic unique à 13h00 UTC (à nouveau 2-3 heures après l'heure moyenne de début de la FNP). À ce moment-là, les valeurs médianes du $NSF_{15.7-100}$ atteignent 4 tandis que de 21h00 à 06h00 UTC, le $NSF_{15.7-100}$ reste faible (moyenne de 1,08). Par conséquent, en été, la contribution des FNP à la concentration en nombre de particules est extrêmement élevée de 10h00 à 18h00.

Des variations diurnes comparables de NSF_{10-100} ont été observées dans d'autres villes européennes (Budapest, Vienne et Prague) avec des maxima atteignant respectivement 2,7, 2,3 et 3,4 avec un diamètre de coupure inférieur fixé à 10nm (Németh et al., 2018). En outre, Salma et al. (2017) ont montré des pics de NSF_{6-100} à midi variant de 2,2 et 2,7 pour le centre-ville de Budapest et de 2 à 7,2 sur un site de fond urbain pour chaque saison, le maximum de NSF_{6-100} étant atteint en hiver. La fréquence de nucléation pendant l'hiver à Budapest est faible (<10 %),

comme le montrent nos observations, mais l'impact de ces événements en nombre limité sur les concentrations de particules est élevé. Pour information, le facteur $NSF_{15.7-100}$ a atteint un maximum de 3,5 et 2,3 en hiver et en automne respectivement à Lille.

1.2 Extension horizontale/verticale des événements de FNP (Cru-meyrolle et al. 2010)

Comme vu précédemment, l'apparition d'épisodes de formation de nouvelles particules dépend de divers facteurs. La durée et la continuité des événements FNP impliquent que la formation du nombre d'aérosols secondaires et la croissance de ces particules ont lieu sur une zone de grande étendue géographique (Hussein et al. 2009), c'est-à-dire qu'il s'agit d'événements dont l'étendue est régionale. Si, les particules sont observées à un diamètre supérieur à quelques nanomètres sur la station de mesures, cela signifie qu'elles ont été formées quelques minutes/heures auparavant et qu'elles ont grossi durant leur transport, ou qu'elles ont été directement émises dans l'atmosphère à ce diamètre. La continuité de la croissance du mode de particules fraîchement émises rend cette dernière alternative hautement improbable. Puisque les particules se sont formées avant, elles se sont donc formées à une certaine distance de la station, et donc ces événements de FNP ont une portée régionale.

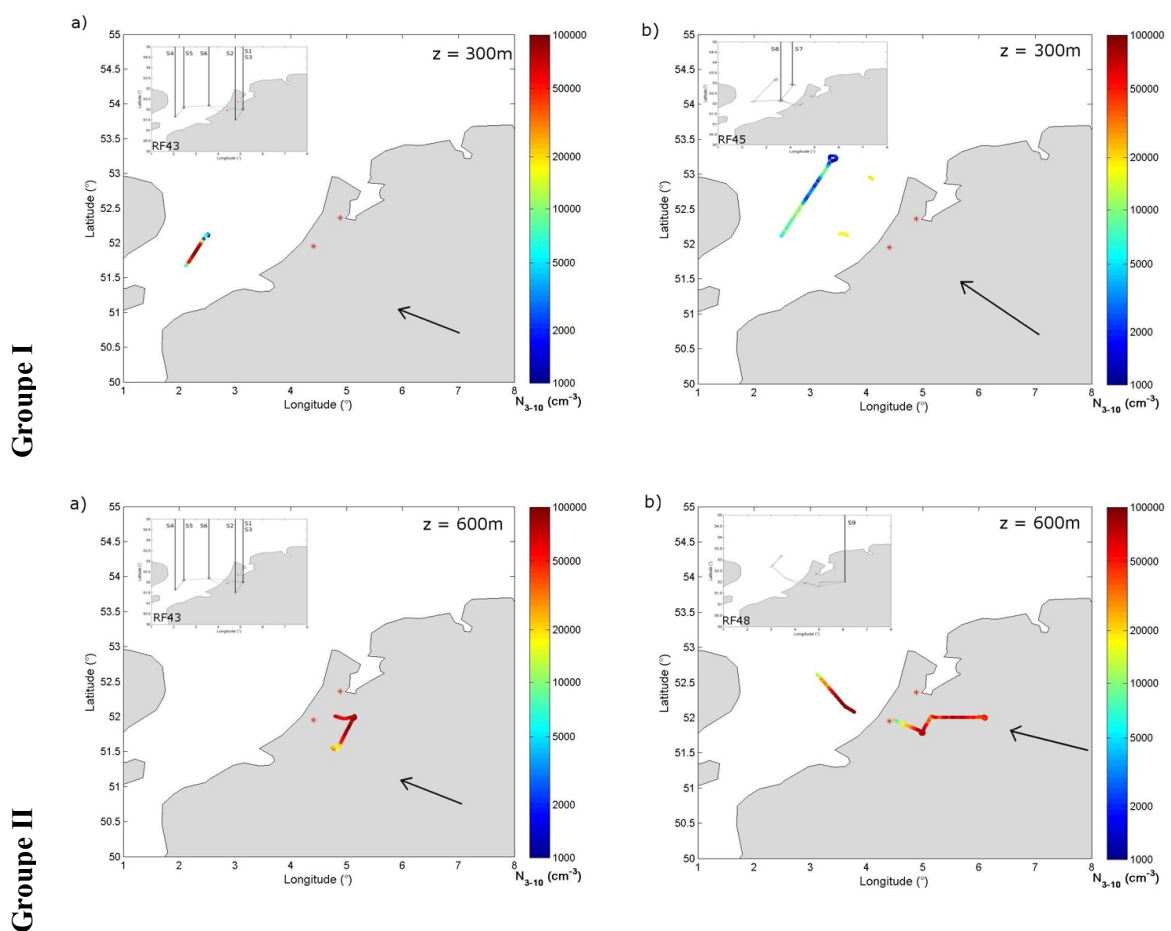
Dans le cadre du projet EUCAARI (European Aerosol Cloud Climate and Air Quality Interactions, (Kulmala et al., 2009), une campagne de mesure intensive dédiée à une (i) estimation plus précise de l'impact des particules d'aérosol sur le climat et à une (ii) quantification de la relation entre les particules d'aérosol anthropiques et la qualité de l'air régionale. Cette campagne a permis le déploiement d'avions de recherche européens équipés d'instruments (DLR Falcon-20, British Bae-146, NERC Dornier, French ATR-42 et French Falcon-20) a été réalisée en mai 2008. L'ATR-42, basé à Rotterdam, a été équipé d'instruments de pointe pour les aérosols et les nuages. L'étude présentée ici se concentre sur les mesures des particules de nucléation (concentrations, extension verticale et horizontale) à bord de cet avion.

Les observations de FNP ont pu être associées à tous les types de vols de recherche (au-dessus de la mer, du continent, ou à proximité des côtes de la mer du nord). Onze événements de FNP ont été observés grâce aux mesures de l'ATR-42. Quatre de ces événements de FNP ont été observés à l'échelle de quelques kilomètres seulement et seul un vol a permis d'observer le début et la fin de la zone d'extension d'un événement de FNP le long de la trajectoire du vol. Pour tous les autres événements, la trajectoire de l'ATR-42 n'a pas pu atteindre la limite de l'extension horizontale de cet événement. En effet, ces événements présentaient des extensions horizontales supérieures à 100 km. De plus, lorsque des événements de FNP ont été observés à bord de l'avion, le phénomène a été simultanément observé sur le supersite de Cabauw (Pays Bas). Par conséquent, la formation de nouvelles particules n'est pas limitée à une source de nucléation locale à petite échelle, mais probablement liée à un phénomène spatialement étendu.

Pour étudier l'extension horizontale des événements de FNP, on considère quatre groupes : Les événements du groupe I se sont produits sous un flux continental et observés au-dessus de la mer, les événements du groupe II se sont produits sous un flux continental et observés au-dessus du continent, les événements du groupe III se sont produits sous un flux marin et observés au-dessus du continent et les événements du groupe IV (événement très local) qui se sont produits sous un flux continental de sud-ouest et ont été observés au-dessus du continent.

La comparaison des événements de FNP du groupe I montre des différences en termes d'homogénéité et de valeur des concentrations en particules ultra-fines (N_{3-10}). En effet, l'événement (Figure 5b : Groupe I - RF45) montrant une forte inhomogénéité des N_{3-10} montre la même inhomogénéité pour le $N_{>50}$. Une analyse complète des mesures de cette campagne de

mesures semble montrer que ces inhomogénéités sont une conséquence des inhomogénéités de la vitesse du vent en surface. Cet effet de dispersion inhomogène des masses d'air implique que les sources de gaz et de particules peuvent être locales et proches de la zone d'observation. Comme ces événements de FNP ont été localisés sous le vent de Rotterdam (150 km) et d'Amsterdam (133 km), les métropoles le long de la côte pourraient être les sources des précurseurs gazeux entraînant les événements FNP. Par ailleurs, le gradient et la fluctuation de N_{3-10} diminuent lorsque la distance au littoral néerlandais augmente. Le N_{3-10} a atteint 100000 cm^{-3} près de la côte des Pays-Bas (<30 km), puis à 50 km de la cote le N_{3-10} est en moyenne de 18000 cm^{-3} et à plus de 130 km de la côte, la concentration N_{3-10} est inférieure à 10000 cm^{-3} . L'intensité du gradient dépend alors de la distance entre la localisation des sources de précurseurs de PUF et la zone d'observation, et de la vitesse du vent de surface.



Groupe III

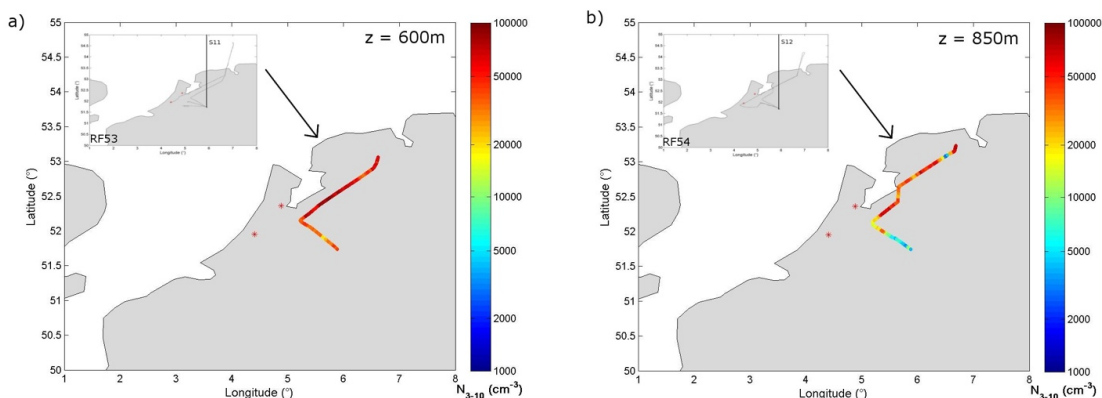


Figure 5 : Sections transversales horizontales montrant les concentrations d'aérosols du mode nucléation pour des diamètres entre 3 et 10 nm (N_{3-10}) le long des trajectoires des vols de recherche de l'ATR-42 (RF43 le 05 mai, RF48 le 11 mai, RF53 le 18 mai et RF54 le 18 mai). Seule la concentration de N_{3-10} à une altitude de vol constante, indiquée sur chaque figure, est représentée. Les flèches noires représentent la direction moyenne de la masse d'air (déduite des rétrotrajectoires calculées avec Hysplit). Les lignes verticales noires font référence aux numéros de sondage de l'ATR-42 tels qu'ils apparaissent dans la Figure 6 .

Au contraire, les observations de FNP sur le continent et sous flux de sud-est (Groupe II) ont montré qu'à proximité ou sous le vent des grandes villes (Rotterdam et Eindhoven) les N_{3-10} diminuent de manière drastique pour atteindre des valeurs inférieures à 20000 cm^{-3} . Ce résultat est vraisemblablement une conséquence de la pollution élevée de l'air (N_{50} est supérieure à 4000 cm^{-3}) entraînant une augmentation du puit de condensation (CS).

Au contraire, les événements du groupe III ($N_{3-10} > 5000\text{ cm}^{-3}$), observés à proximité du littoral néerlandais durant la même journée (dans un intervalle de 3h), étaient sous l'influence de masses d'air provenant de la côte norvégienne qui n'ont donc jamais rencontré un panache de pollution. Ainsi, ces masses d'air devaient être enrichies en vapeurs organiques provenant de la photo-oxydation des composés organiques volatils (COV) de la forêt boréale et appauvries en particules ($< 1000\text{ cm}^{-3}$), conditions favorables à la FNP. Pendant 3 heures, le phénomène persiste dans la couche inférieure ($h < 630\text{ nm}$ le matin et $h < 850\text{ nm}$ l'après-midi) sur plus de 100 km.

Nous avons pu donc voir que ces événements de FNP apparaissent sur de larges étendues horizontales mais aussi sur de grandes étendues verticales. Nilsson et al. (2001) ont constaté que le début du mélange turbulent était mieux corrélé avec le début de la FNP au niveau du sol qu'avec l'augmentation du rayonnement solaire. Une hypothèse est que les FNP commencent en altitude dans une zone d'interface, soit dans la couche résiduelle (RL), soit dans l'inversion qui recouvre la couche limite peu profonde du matin. Lorsque le mélange turbulent commence, les particules nouvellement formées seraient transportées vers le bas et observées au niveau du sol (Lampilahti et al., 2021a, 2021b, 2020). De plus, Augustin et al. (2020) ont montré que les couches d'interface, caractérisées par des effets de turbulence (fluctuations de température/humidité/vent) augmentant le mélange, sont très favorables à la formation de nouvelles particules, notamment entre des couches propres et polluées.

Lors des vols de la campagne EUCAARI, au moins un sondage vertical par vol a été effectué, soit au début ou à la fin entre 0,3 km et 3,5 km (niveau de vol le plus élevé), fournissant une caractérisation rapide des profils verticaux des conditions thermodynamiques (niveau d'inversion, etc.) et des paramètres microphysiques. Pour chaque vol, la hauteur de la couche limite, déterminée par l'évolution verticale de la température et de l'humidité, et la hauteur de l'événement de FNP, estimée par le profil vertical de N_{3-10} , ont été reportées sur la Figure 6. Cette figure montre que les événements de FNP semblent être initiés à l'intérieur de la couche limite et être limités par son sommet. La limite inférieure (600 m) d'un événement FNP n'a été observée que lors du sondage S13. La comparaison des sondages effectués au-dessus de la mer (S4, S5, S6, S7 et S8) et au-dessus du continent (tous les autres) ne montre aucune tendance verticale N_{3-10} claire liée aux différences de surface. L'événement de FNP observé au-dessus de la mer (S4 et S5) n'a été détecté que dans les 50 premiers mètres des sondages et l'exploration verticale pendant S11 n'était pas suffisante, ainsi, ces trois sondages ne seront pas discutés.

Indépendamment de l'étude de l'extension horizontale, trois groupes différents de sondages sont définis : Les sondages du groupe SI (sondages S1, S3, et S9) correspondant à des événements homogènes tout au long de la CL, les sondages du groupe SII (S2, S6, S8 et S10) correspondant à des gradients verticaux positifs avec l'altitude de N_{3-10} et les sondages du groupe SIII (S12 et S13) correspondent à des gradients verticaux négatifs en fonction de l'altitude de N_{3-10} .

Les conditions météorologiques et environnementales observées (origines de la masse d'air, température, pression, vitesse du vent, rayonnement solaire) étaient assez similaires pendant les sondages du groupe SI et du groupe SII. En revanche, les deux sondages observés avec des gradients verticaux négatifs de N_{3-10} (groupe SIII) ont été observés après des événements pluvieux (précipitations > 0,8 mm), donc potentiellement lié à du lessivage des particules d'aérosol et à l'entraînement des polluants dans les couches atmosphériques inférieures quel que soit le niveau de pollution de la masse d'air (sous influence d'un air marin et propre [S12] et pollué [S13]).

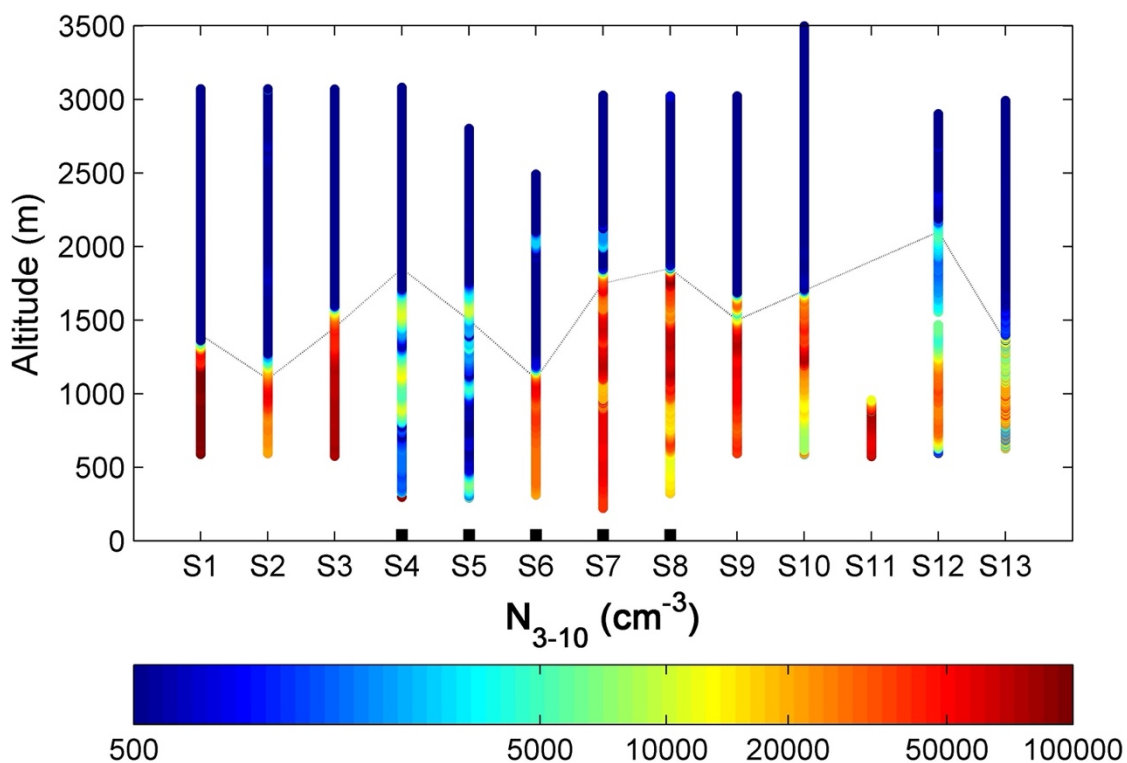


Figure 6 : Profil des concentrations de particules dont le diamètre est entre 3 et 10 nm (N_{3-10}) pendant les sondages de l'ATR-42 pour les six vols où des événements FNP ont été observés : RF43 (S1, S2, S3, S4, S5, S6) le 05 mai, RF45 (S7, S8) le 08 mai, RF48 (S9) le 11 mai, RF50 (S10) le 14 mai, RF53 (S11) le 18 mai, RF54 (S12) le 18 mai et RF61 (S13) le 28 mai 2008. Les rectangles noirs mettent en évidence les relevés effectués au-dessus de la mer. La ligne grise correspond au sommet de la couche limite.

La classification en différents groupes permet aussi de constater que la fréquence des gradients verticaux positifs de N_{3-10} est supérieure à la fréquence des gradients négatifs observés, ce qui signifierait que les particules nucléées sont susceptibles d'augmenter plus fréquemment dans la partie supérieure de la couche limite. En 2008, les observations de PUF étant limitées aux stations sol, il était admis que les PUF se formaient au plus proche des sources de précurseurs, soit en surface. Néanmoins, deux processus peuvent expliquer la présence de particules ultrafines dans la partie supérieure de la couche limite : (1) les particules ont été nucléées au sol puis soulevées avant d'être échantillonnées avec l'ATR-42 et (2) les particules ont été nucléées dans la partie supérieure de la couche limite. Supposons d'abord que les particules ont été formées au sol, nous calculons le diamètre moyen que les particules devraient avoir après avoir été soulevées dans la partie supérieure de la couche limite et nous comparons leur diamètre moyen avec les observations. Les taux de croissance sont déterminés à partir de mesures sol sur plusieurs gammes de taille (1.5 à 3, 3 à 7 et 7 à 20 nm) et varient d'un jour à l'autre. Le temps nécessaire aux particules fraîchement formées au sol pour atteindre la hauteur maximum des événements de FNP a été déterminé à l'aide de la vitesse verticale du vent (W). Pour trois cas, les particules supposées avoir été nouvellement formées au sol et transportées

verticalement ont un diamètre moyen inférieur à 10 nm à l'arrivée, en cohérence avec le diamètre des particules de nucléation observées (entre 3 et 10 nm). Ainsi, nous ne pouvons pas exclure que les concentrations de particules N_{3-10} observées au-delà de 1000 m aient pu être uniquement dues au transport des événements de FNP provenant du sol. Cependant, pour au moins quatre autres cas, on ne peut pas déduire de ces considérations le transport exclusif de particules fraîchement formées depuis la surface vers les hautes altitudes. En effet, le diamètre moyen des particules soulevées serait supérieur à 10 nm, donc supérieur au diamètre des particules réellement observées. Ces derniers événements FNP n'ont donc pas été générés en surface mais plus probablement ailleurs dans la couche limite.

1.3 Transport des PUF (Pikridas et al. 2015)

De nombreuses campagnes expérimentales à grande échelle ont permis de mieux comprendre les processus qui conduisent à la pollution photo-oxydative dans les principales villes européennes. Cependant, pour les grandes villes en dehors de l'Europe et des États-Unis, il existe souvent des lacunes importantes dans notre compréhension et quantification de la pollution de l'air. De plus, certains processus d'émission et de formation de matières particulaires sont encore mal quantifiés ce qui empêche une évaluation complète de l'impact des différentes sources de pollution sur la qualité de l'air et la santé.

Le projet MEGAPOLI (Megacities: Emissions, urban, regional and Global Atmospheric POLLution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation) vise à fournir une description complète, cohérente et plus quantitative de l'impact des mégapoles (grandes agglomérations de plus de 10 millions d'habitants) sur la qualité de l'air, la composition chimique de la troposphère et le climat. À cette fin, une méthodologie de modélisation intégrée sera mise en œuvre pour plusieurs dizaines de mégapoles en Europe (région parisienne, Londres, Moscou, Istanbul, etc.) et ailleurs (Le Caire, Pékin, Shanghai, Bombay, Mexico, etc.). L'ensemble du projet durera de 2008 à 2011. L'étude de la pollution particulaire dans la région Île-de-France est le point focal du projet, comprenant l'organisation d'une campagne expérimentale à grande échelle pour mieux comprendre et quantifier les sources de pollution particulaire, en particulier la fraction organique des particules.

Dans le cadre de ce projet, la concentration en nombre d'aérosols a été mesurée au centre de Paris (Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris - LHVP, 48° 49' 11" N and 2° 21' 35" E) ainsi que pour deux stations satellites de banlieue (SIRTA : localisé à 20 km au sud du centre de Paris, et GOLF : localisé à 20 km au Nord-Est du centre de Paris, Figure 7). Des mesures mobiles ont été effectuées par deux laboratoires mobiles (MoLa and Mosquita) au sol et les avions de Météo-France (ATR-42) en juillet 2009.

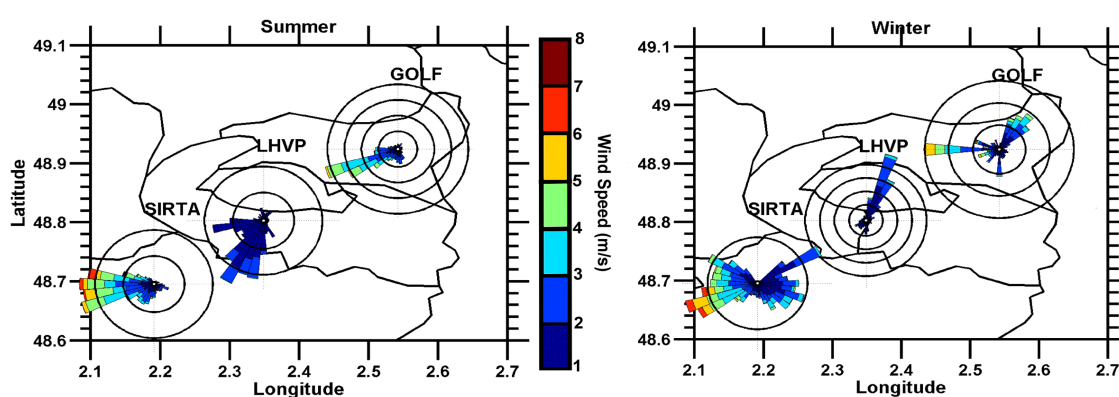


Figure 7 : Roses des vents pendant les campagnes d'été (droite) et d'hiver (gauche) sur chacun des sites (SIRTA, LHVP et GOLF). Chaque segment des roses des vents correspond à un angle de $\pi/18$ (ie $0 - \pi/18$, $\pi/18 - 2\pi/18$, etc) et les cercles concentriques correspondent à une fréquence de 5%. La vitesse du vent (m s^{-1}) est indiquée en couleur à l'intérieur de

chaque rose. Les vitesses de vent inférieures à 1 m s^{-1} ont été supprimées pour ne prendre en compte que les masses d'air en mouvement.

Pendant l'été, la direction du vent présentée sur la Figure 7 montre une prédominance des vents provenant de l'ouest. Les masses d'air sont donc d'abord observées au SIRTa puis sur le centre-ville de Paris et finalement sur GOLF. En général, la concentration en nombre des particules dont le diamètre est entre 10 et 500 nm (N_{10-500}) au centre-ville était inférieure de 14% à celle du site suburbain sous le vent (GOLF) et supérieure de 54% à celle du site suburbain d'où venait le vent (SIRTa, Figure 8). Lors d'évènements très ponctuels où la direction du vent provenait principalement de l'Est, la N_{10-500} observée au SIRTa est en moyenne de 2,3 fois plus importante lorsque le site est sous le vent de Paris que dans le cas opposé. L'augmentation importante de N_{10-500} montre l'influence non négligeable du panache de pollution issu du centre-ville sur les sites localisés en périphérie. À GOLF, situé au Nord-Est et à peu près à la même distance que le SIRTa du centre-ville, l'effet des émissions de Paris n'était pas si clair, ce qui suggère un fond élevé de N_{10-500} dans cette zone (NE).

La contribution en nombre des particules ultra-fines ($10 > D_p > 30 \text{ nm}$) par rapport à l'ensemble des particules ($10 > D_p > 500 \text{ nm}$) est de 30% sur le site suburbain situé principalement en amont (SIRTa), 40% au centre-ville (LHVP) et 50% sur le site suburbain situé principalement sous le vent (GOLF). La présence de particules ultra-fines est donc plus importante après la rencontre avec le panache issu du centre-ville (Figure 8). Par ailleurs, la contribution en nombre des particules d'un diamètre compris entre 30 et 100 nm était comprise entre 40 et 50 % et suivait la tendance inverse (la plus élevée en amont, la plus faible sous le vent).

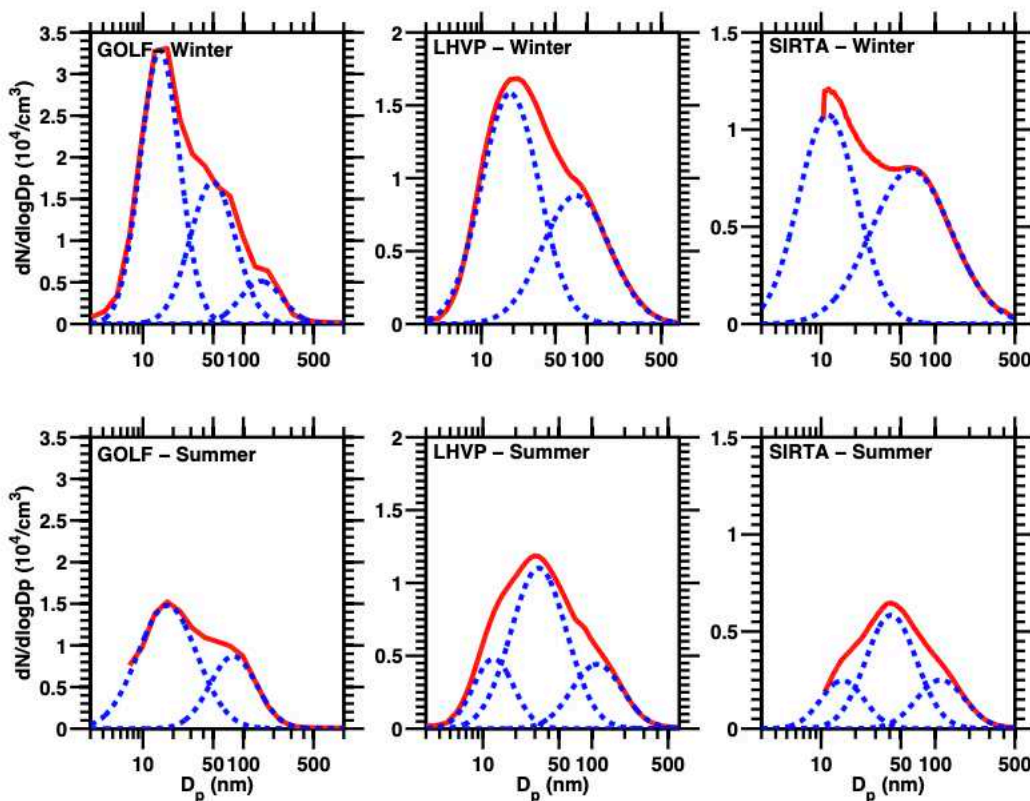


Figure 8 : Distributions moyennes du nombre de particules pour la campagne hivernale (en haut) et estivale (en bas) pour les trois sites au sol à GOLF, au LHVP et au SIRTA. Chaque distribution moyenne en taille (ligne rouge continue) est déconvoluée en log-normales (lignes bleues en pointillés). Notez l'échelle différente des axes y entre les sites.

Des événements de FNP ont été observés sur tous les sites pendant l'été. Au SIRTA et LHVP, les événements ont été identifiés la moitié du temps et sur GOLF une fois tous les quatre jours. La fréquence plus faible des événements de FNP sur GOLF était principalement due aux interférences du au trafic voisin ainsi qu'aux limitations techniques des instruments qui ne permettaient pas une identification claire des événements. De la même manière que pour le site ATOLL, l'intensité solaire était supérieure de 30 % et de 20 % les jours d'événement par rapport aux jours sans événement au SIRTA et LHVP, respectivement. En moyenne, les événements de la FNP ont provoqué le doublement de N_{10-500} sur toutes les stations fixes. Les taux de croissance (GR) moyens journaliers étaient de 5,5, 4,6 et 6,1 $\text{nm}\cdot\text{h}^{-1}$ au SIRTA, LHVP et GOLF respectivement. Les différences mesurées pour ces taux de croissance moyens n'étaient pas statistiquement significatives.

1.4 Conclusions et perspectives

A partir de ces différentes études, il est évident que ces événements de FNP affectent largement la qualité de l'air en produisant des particules ultra fines (PUF) en grand nombre dont l'extension horizontale peut dépasser les 100 km. En milieu urbain, ces événements vont affecter une grande partie de la population dont la santé est déjà dégradée suite à une exposition longue à de fortes concentrations de polluants (Ozone, NO₂, PM_{2.5}, etc...). Afin de mieux comprendre et afin d'éventuellement être capable d'anticiper et de proscrire ces événements, notamment en milieu urbain, il est nécessaire d'établir des réseaux de surveillance pour mieux estimer : leurs occurrences, leurs extensions verticales et horizontales ainsi que le transport de ces PUFs.

Une des perspectives de ce travail de recherche est de déterminer l'influence de la dynamique de la couche limite sur les événements de FNP. Pour cela, un anémomètre ultra-sonique a été installé en 2022 à proximité des veines de prélèvements de la station ATOLL. En effet, des études numériques et expérimentales ont montré que la dynamique de la couche limite planétaire joue un rôle important dans l'occurrence de ces événements de FNP (Lampilahti et al., 2021b, 2020). Cependant, les observations directes et les estimations de l'importance potentielle de ce phénomène pour la production de nouvelles particules d'aérosol font défaut et sont souvent limitées aux régions bien moins polluées (Finlande, Suède, etc...).

Par ailleurs, les particules nouvellement formées par la nucléation atmosphérique sont souvent capables de croître jusqu'à atteindre la taille d'un CCN et d'influencer davantage les propriétés des nuages, voire le climat mondial (Kerminen et al., 2005; Laaksonen et al., 2005; Wiedensohler et al., 2009). Kerminen et al. (2012) présentent une synthèse de nos connaissances sur la production de CCN associée à la nucléation atmosphérique, et concluent que la production de CCN associée à la nucléation atmosphérique est un phénomène à la fois fréquent et répandu dans de nombreux types de couches limites continentales, et probablement aussi pour une large fraction de la troposphère libre. Dans de nombreuses conditions atmosphériques, l'aérosol a une rétroaction positive sur la concentration en nombre de CCN (N_{CCN} , (Laaksonen et al., 2005; Ramanathan et al., 2001)), et la N_{CCN} présente généralement une augmentation significative après un événement de FNP (Dowd, 2001; Kuwata and Kondo, 2008; Lihavainen et al., 2003; Yue et al., 2011). En raison des différentes espèces chimiques impliquées dans la FNP, l'étendue des effets de la FNP sur les CCN varie temporairement et spatialement (Pierce and Adams, 2009). A plus long terme, une perspective de mon travail de recherche serait de mieux comprendre l'impact de ces événements sur l'hygroscopicité des particules, en utilisant un néphélomètre à humidité contrôlée, et sur l'occurrence des nuages pouvant y être associé, en milieu urbain.

CHAPITRE 2 - Interactions aérosols et vapeur d'eau

Le plus souvent, les techniques de mesures in-situ reposent sur une observation des aérosols à des humidités relatives plus faibles que l'humidité relative ambiante. De plus, les recommandations européennes pour assurer l'inter-comparabilité des mesures d'un site à l'autre stipulent que l'air prélevé est activement séché pour atteindre des humidités inférieures à 40 %. Les interactions entre les aérosols et la vapeur d'eau dépendent des propriétés des aérosols telles que leur concentration en nombre, leur taille, leur composition chimique et leur état de mélange (Cubison et al., 2008; Roberts et al., 2001; Sellegri et al., 2003). Ainsi, un aérosol ayant des propriétés hygroscopiques élevées absorbera plus d'eau liquide ce qui aura un impact sur leurs distributions de taille (grossissement des particules), leur composition chimique (réarrangement chimique) et sur leurs propriétés optiques (augmentation des coefficients d'extinction, de diffusion et d'absorption) et radiatives (Randriamiarisoa et al., 2006). La quantité d'eau condensée à la surface d'un aérosol est définie par sa composition chimique (effet Raoult) et sa taille (effet Kelvin). Dans l'atmosphère, les conditions d'humidité sont très variables en fonction des lieux, des périodes de la journée et des saisons. Par conséquent, il existe différents régimes d'interaction entre la vapeur d'eau et les aérosols : les régimes sous-saturé (Section 2.1, $RH < 100\%$) et sursaturé (Section 2.2, $RH > 100\%$, généralement rencontrées en nuage).

Même si mieux connaître l'impact de l'hygroscopicité sur les propriétés optiques est indispensable à une meilleure caractérisation de l'effet radiatif des aérosols, la prise en compte du caractère hygroscopique des aérosols est actuellement très mal quantifiée par les modèles théoriques (Mie) et atmosphériques. Peu d'expériences de fermeture existent sur la comparaison de mesures in-situ des propriétés physiques et optiques des aérosols à des conditions d'humidité ambiante.

2.1 En régime sous-saturé

En régime sous-saturé, deux phénomènes sont associés à l'interaction entre la vapeur d'eau et les cristaux : la déliquescence et l'efflorescence (c'est-à-dire le point de recristallisation, (Richardson and Spann, 1984). La déliquescence est une transformation de phase de premier ordre qui se produit lorsque la substance déliquescente est en contact avec la vapeur d'eau et forme une solution aqueuse, phase thermodynamiquement favorable. Cette transformation se fait à une humidité relative bien définie, humidité relative de déliquescence (DRH), qui dépend des propriétés initiales du composé solide et des conditions environnementales, c'est-à-dire de la température (Wexler and Seinfeld, 1991). L'efflorescence est aussi une transition de premier ordre qui se produit lorsque la solution commence à former un cristal après déshydratation, ce qui caractérise le processus inverse de la déliquescence. À son humidité relative critique qui fait référence à l'humidité relative d'efflorescence (ERH), la solution devient si concentrée qu'une nucléation spontanée de la phase solide se produit. Un phénomène d'hystérésis entre la déliquescence et l'efflorescence est mis en évidence puisque le processus d'efflorescence se produit généralement à une RH inférieure à celle du DRH.

Le comportement de déliquescence/efflorescence d'un mélange de sels est différent de celui d'un sel unique. La courbe de déliquescence d'un mélange ne présente pas une seule transition mais plusieurs, et est caractérisée par plusieurs valeurs de DRH associées à la fraction molaire du composant dans le mélange (Tang et al., 1978). La phase particulière reste solide pendant le processus d'humidification jusqu'à un premier changement d'état appelé MDRH (Mutual Deliquescence Relative Humidity). Après ce point, l'eau est adsorbée par la particule et deux phases coexistent : une phase solide et une phase liquide. La particule, existant en deux phases, continue à adsorber l'eau jusqu'à ce qu'elle devienne complètement liquide. Cette seconde transition est caractérisée par une valeur de DRH. Ce phénomène se produit pour toutes les fractions molaires d'un mélange à différentes valeurs de MDRH et DRH.

Les résultats de (Massoli et al., 2009) ont montré que l'inclusion des propriétés hygroscopiques des aérosols dans les calculs climatiques est essentielle pour améliorer les estimations du forçage radiatif direct des aérosols. La plupart des modèles d'aérosols utilisent la méthode Zdanovskii-Stokes-Robinson (ZSR ; (Clegg and Seinfeld, 2004; Stokes and Robinson, 1966) pour déterminer la quantité d'eau condensée à la surface des particules (Choi and Chan, 2002; Svenningsson et al., 2006) et s'appuient sur les codes de Mie pour déterminer l'indice de réfraction de l'aérosol humide (Bohren and Huffman, 1983; Bond et al., 2006) La méthode ZSR, qui permet de prédire l'absorption d'eau des aérosols purs et mixtes, est relativement simple. La ZSR suppose qu'il n'y a pas d'interaction entre les différents composés de la solution et consiste à calculer l'hygroscopicité de l'aérosol multi composant en additionnant les facteurs de croissance de chaque composé, pondérés par leur masse ou leur fraction molaire (Équation 1). Dans la plupart des cas, la règle de mélange ZSR fonctionne assez bien, en particulier pour décrire l'absorption d'eau des mélanges d'aérosols organiques-organiques et organiques-inorganiques, mais il existe de grandes déviations dans certains autres cas (Kanakidou et al., 2005). En particulier, il a été démontré que pour les mélanges comprenant des aérosols de sel marin, le ZSR ne fonctionne pas correctement (Svenningsson et al., 2006).

$$g(RH) = X_a g(RH)_a + X_b g(RH)_b \quad \text{Équation 1}$$

Où X_a et X_b sont les fractions massiques (ou molaires) et $g(RH)_a$ et $g(RH)_b$ sont les facteurs de croissance respectifs des composés a et b.

Or, les aérosols de sel marin représentent l'une des plus grandes espèces d'aérosols naturels hygroscopiques présents dans l'atmosphère. Le chlorure de sodium (NaCl) en est le principal constituant. Pendant leur transport dans l'atmosphère, les aérosols de sel marin peuvent interagir avec des gaz et d'autres particules, notamment des aérosols organiques secondaires contenant du sulfate d'ammonium ((NH₄)₂SO₄). Ce mélange simple (uniquement 4 ions) est donc fréquemment observé dans l'atmosphère.

Le travail de thèse de D. El Hajj (2015-2019), en collaboration avec le LASIRE⁵ (M. Choel et Y. Tobon) a consisté à étudier l'évolution des propriétés optiques (diffusion et absorption), physique (taille et nombre) et chimique (partie soluble et insoluble) d'un mélange interne d'aérosols à différentes humidités, notamment un mélange interne de NaCl et de sulfate d'ammonium ((NH₄)₂SO₄). L'étude s'appuie sur des mesures en laboratoire effectuées au moyen d'instruments de pointes, tel qu'un microscope microscopie confocale Raman (CRM) permettant la mesure de la composition chimique d'un aérosol en lévitation, un néphélomètre et un granulomètre permettant la mesure du coefficient de diffusion et de la distribution en taille des aérosols, qui tous fonctionnent à humidité contrôlée. Ainsi des aérosols de composition chimique différente (composés purs et mélange interne) sont générés puis soumis à des humidités relatives différentes. Les modifications de leurs propriétés sont alors mesurées tout au long d'un cycle d'humidité relative (d'environ 30% jusqu'à 90%) et pour plusieurs cycles successifs.

2.1.1 A l'échelle individuelle (Tobon et al., 2021)

Le comportement de déliquescence des particules individuelles avec une composition initiale variable a été étudié par lévitation acoustique couplée à de la microscopie optique et confocale Raman (CRM). A notre connaissance, il s'agit du premier travail expérimental visant à observer et à caractériser les produits résultant de la recombinaison de Na⁺, Cl⁻, NH₄⁺ et SO₄²⁻ sur des particules individuelles lévitées avec différentes compositions initiales et à étudier leur comportement pendant les cycles de déliquescence. Ces résultats expérimentaux ont été comparés à ceux obtenus avec le modèle thermodynamique E-AIM (Extended Aerosol Inorganics Model) et le contour de transition de phase de Potukuchi et Wexler.

Les particules solides uniques obtenues après séchage de gouttelettes lévitées, contenant initialement des proportions différentes des deux composés titrés, ont montré un état de mélange complexe en fonction de l'humidité relative. Ainsi, nous avons confirmé, au moyen de spectres Raman, la coexistence de quatre sels solides au sein de la particule sèche : (NH₄)₂SO₄, NH₄Cl, Na₂SO₄ et NH₄NaSO₄.2H₂O. Comme le NaCl n'est pas actif en Raman, nous avons supposé que le NaCl était également présent dans les gouttelettes recristallisées. Par

⁵ LASIRE : Laboratoire de Spectroscopie pour les Interactions, la Réactivité et l'Environnement

conséquent, les échantillons sont mieux décrits comme des systèmes multiphasiques que comme un système binaire. Des particules contenant des fractions molaires de 0,1, 0,36, 0,55 et 0,67 de NaCl (X_{NaCl}) ont été étudiées par CRM (Confocal Raman Microscopy) pendant le processus de déliquescence. Les spectres Raman ont mis en évidence sans ambiguïté la présence de composés solides qui n'étaient pas prévus par le modèle E-AIM et le contour de transition de phase de Potukuchi et Wexler après chaque transition.

Le diagramme de phase de déliquescence a été construit expérimentalement en effectuant de multiples cycles de déliquescence de nombreux mélanges dont la composition variait entre 0,0 et 1,0 fraction molaire de NaCl (Figure 9). Les humidogrammes ont montré deux ou trois transitions en fonction de la composition molaire initiale, ce qui est représentatif des systèmes complexes. Le diagramme de phase expérimental a montré plusieurs différences avec celui construit à partir du modèle E-AIM. Pour les particules riches en NaCl ($X_{\text{NaCl}} > 0.77$) et les particules riches en $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ($X_{\text{NaCl}} < 0.40$) la description faite par le modèle est acceptable. Cependant, pour les mélanges intermédiaires ($0.40 < X_{\text{NaCl}} < 0.77$), les résultats expérimentaux sont en désaccord avec le modèle en raison d'une différence entre les produits prédits restés à l'état solide après les transitions et les produits réellement présents dans la particule solide. Ainsi, nos résultats montrent la difficulté d'une modélisation précise des processus d'humidification lorsque la complexité de la composition chimique de l'aérosol augmente.

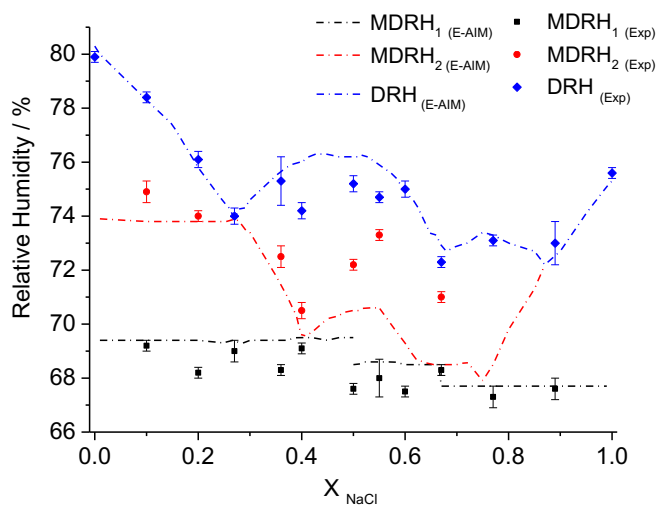


Figure 9 : Diagramme de phase de déliquescence des particules mixtes NaCl/ $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ en fonction de la fraction molaire de NaCl. Comparaison des résultats du modèle E-AIM (lignes pointillées) avec nos données expérimentales (dispersion). MDRH1 (noir) et MDRH2 (rouge) font référence aux première et deuxième transitions avant la déliquescence totale, DRH (bleu).

2.1.2 A l'échelle d'un volume (El Hajj, 2018)

Après avoir mis en évidence les difficultés pour prévoir la quantité d'eau adsorbée par un aérosol à l'échelle individuelle, nous souhaitons étudier les biais lorsque l'on considère un volume d'air contenant de nombreux aérosols. Pour cela, le dispositif expérimental permettait la mesure du coefficient de diffusion par néphélométrie a été utilisé pour étudier les propriétés optiques du même mélange d'aérosols que précédemment (NaCl et de sulfate d'ammonium $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) en fonction de l'humidité relative et pour évaluer leur croissance hygroscopique. Le montage expérimental fournit donc des informations sur la variation du coefficient de diffusion des aérosols en fonction de l'humidité relative ($f(\text{RH}) = \sigma_{\lambda, \text{wet}} / \sigma_{\lambda, \text{dry}}$, (Fierz-Schmidhauser et al., 2010)). Les valeurs de DRH, spécifiques à chaque composant de l'aérosol, sont extraites de ces humidogrammes. Les DRH pour les composés purs (NaCl et $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$) sont similaires aux valeurs reportées dans la littérature permettant de valider notre approche expérimentale et de la méthode utilisée pour déterminer le DRH. Les $g(\text{RH})$ de ce mélange d'aérosols ont été estimés en utilisant la méthode ZSR avec les $g(\text{RH})$ des aérosols purs comme entrées. Les valeurs de $g(\text{RH})$ calculées seront ensuite comparées aux $g(\text{RH})$ estimées à partir des mesures de $f(\text{RH})$ ($g(\text{RH}) = \sqrt{f(\text{RH})}$) de (Bougiatioti et al., 2016).

Dans cette étude, nous avons défini la seule transition de phase observée comme étant le DRH du mélange, bien qu'il soit nécessaire d'améliorer cette méthode afin d'affiner ces résultats et de déterminer le second DRH du mélange. La Figure 10 représente la variation de la $f(\text{RH})$ avec l'humidité relative pour le $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ pur (courbe noire), le NaCl pur (courbe grise) et pour 4 mélanges contenant différentes fractions de NaCl (courbes colorées). Chaque courbe représente les valeurs de la $f(\text{RH})$ dérivées des mesures des coefficients de diffusion à différentes valeurs de RH. Chaque point est une représentation de la moyenne de $f(\text{RH})$ dans une fenêtre de 10 % de RH (≈ 10 valeurs pour $\text{RH} < \text{DRH}$ et ≈ 20 valeurs lorsque les valeurs de RH s'approchent du DRH). Aux valeurs maximales d'humidité relative (c'est-à-dire $\text{RH} > 80\%$), le $f(\text{RH})$ est d'environ 15 pour le NaCl pur et 4,5 pour le $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ pur. La variation du maximum de la $f(\text{RH})$, liée au comportement hygroscopique du mélange d'aérosols, peut être observée en fonction de la fraction molaire de NaCl. Le maximum de $f(\text{RH})$ (à $\approx 85\%$ d'humidité relative) augmente avec l'augmentation de la fraction molaire de NaCl dans le mélange. Le $f(\text{RH})_{\text{max}}$ passe de 4,5 pour le $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ pur à 5,8 lors de l'ajout de NaCl à une fraction molaire de 0,36 et il atteint 13,2 lorsque la fraction molaire de NaCl atteint une valeur de 0,89.

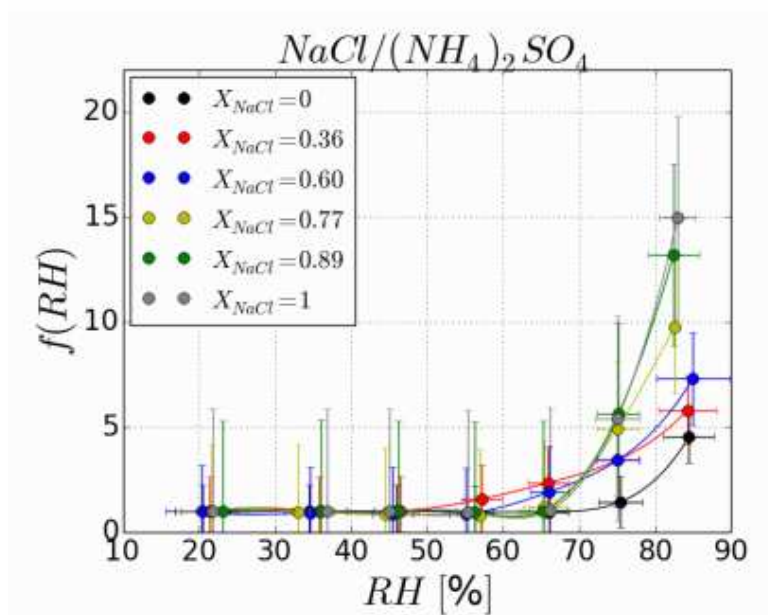


Figure 10 : Variation du $f(RH)$ avec l'humidité relative pour le mélange $(NH_4)_2SO_4$ pur (courbe noire), le NaCl pur (courbe grise) et pour le mélange contenant 36, 60, 77, 89% de NaCl (courbes colorées).

De plus, on constate que l'absorption de l'eau et la déliquescence du NaCl commencent à une RH plus faible que celle du $(NH_4)_2SO_4$. Dans nos expériences, les DRH sont mesurées à 75.6% et à 79.9% pour NaCl et $(NH_4)_2SO_4$ respectivement ce qui correspond aux études antérieures (Laskina et al., 2015). Les $DRH_{mélanges}$ pour les différentes fractions de NaCl ($X_{NaCl} = 0,36, 0,6, 0,77, 0,89$) sont observés autour de $56 \pm 3\%$, $66 \pm 2,5\%$, $75 \pm 3\%$ et $75,2 \pm 3\%$ respectivement. Une fois de plus, on peut observer que les $DRH_{mélanges}$ sont inférieurs à ceux de chaque composé pur de l'aérosol, une caractéristique qui est cohérente avec les résultats précédents. Plus le mélange est enrichi en NaCl, plus les $DRH_{mélanges}$ se rapprochent de la valeur des DRH du NaCl pur. Ce n'est pas le cas pour $(NH_4)_2SO_4$. Par conséquent, nos résultats montrent que même une petite fraction de NaCl change drastiquement le comportement hygroscopique du mélange.

Pour mettre en évidence les biais liés à l'utilisation de la méthode ZSR pour un volume d'aérosols en mélange interne, les $g(RH)$ des aérosols purs sont utilisés comme entrées dans le modèle. Par conséquent, le $g(RH)_{ZSR}$ est unique pour chaque fraction molaire de mélange d'aérosols. Cependant, la $g(RH)_{ZSR}$ dépend alors légèrement des fractions de mélange et plus largement des propriétés des aérosols purs. Alors que les mesures de $f(RH)$ (Figure 10) et, par conséquent, la $g(RH)$ recalculée à partir du $f(RH)$ évoluent différemment pour chaque fraction testée. La Figure 11 présente la comparaison du $g(RH)_{ZSR}$ (courbe noire en pointillés) avec le $g(RH)$ déduit des mesures de $f(RH)$ pour différentes fractions molaires de NaCl dans le mélange $NaCl/(NH_4)_2SO_4$ (courbes colorées). La tendance générale de l'évolution du $g(RH)$ mesuré et calculé par la ZSR avec l'humidité relative est relativement similaire, sauf pour les deux fractions les plus basses de NaCl ($X_{NaCl} < 0,77$). Dans la Figure 11a, la $g(RH)_{ZSR}$ pour $X_{NaCl} = 0,36$ sous-estime la $g(RH)$ obtenue à partir des mesures de 24% à $RH=57\%$, de 41% à $RH=66\%$ et

seulement de 9% à RH=75%. Pour la valeur d'humidité la plus élevée (RH >84%), le $g(\text{RH})_{\text{ZSR}}$ est surestimé de 40% par rapport aux mesures. De la même manière, avant que le DRH ne soit atteint, le $g(\text{RH})_{\text{ZSR}}$ sous-estime largement les valeurs calculées de $g(\text{RH})$ à partir des mesures pour $X_{\text{NaCl}}=0,6$ (Figure 11b),. Il sous-estime jusqu'à 32% à RH=66% et de seulement 9% à RH=75%. Pour une RH supérieure au DRH (RH=85%), les calculs ZSR surestiment de 29% les valeurs de $g(\text{RH})$.

Pour les deux autres fractions molaires, associées à des contributions plus importantes de NaCl ($X_{\text{NaCl}}=0,77$ et $0,89$), les différences entre les $g(\text{RH})$ dérivées de la méthode ZSR et les mesures sont réduites (Figure 11 c et d), car la quantité de NaCl dans le mélange domine le $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$. En effet, le $\text{DRH}_{\text{mélange}}$ pour ces fractions de NaCl est observé à 75%, vraiment proche du DRH du NaCl pur.

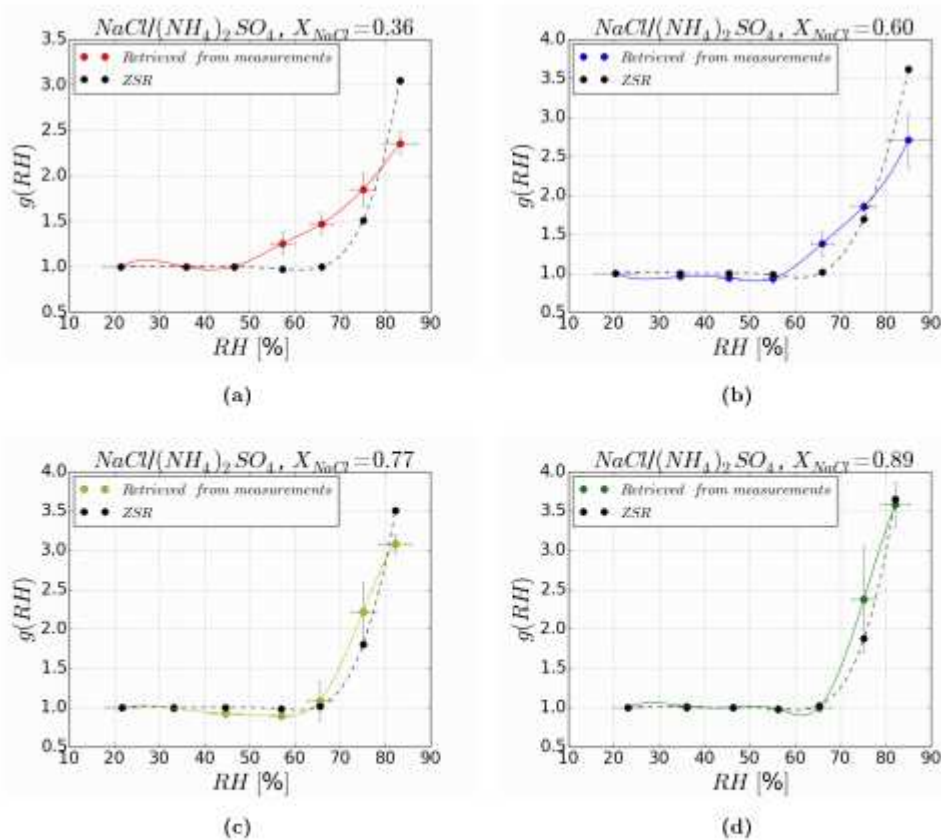


Figure 11 : Comparaison des facteur de grossissement des aérosols ($g(\text{RH})$) calculés à partir des mesures de coefficient de diffusion (courbes colorées) et estimé par la méthode ZSR (courbes noires) pour un mélange de NaCl/ $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ à différentes fractions de NaCl : a) 36%, b) 60%, c) 77% et d) 89%.

Au travers de ces deux études en laboratoire, il est évident que les mélanges simples (moins de 5 ions) d'aérosols sont en fait déjà suffisamment compliqués pour que les modèles (E-AIM à l'échelle individuelle et ZSR à l'échelle d'un volume d'aérosol) dédiés à l'estimation de leurs propriétés hygroscopiques et donc de la quantité d'eau adsorbée soient en difficultés.

En effet E-AIM et la ZSR ne permettent absolument pas de prendre en compte l'effet du mélange.

2.2 En régime sursaturé (en nuage)

En régime sursaturé, l'activation d'une particule d'aérosol en tant que CCN est décrite par la théorie de Köhler (Équation 2). Les premiers travaux de Köhler (1936) mettent en évidence le lien entre la taille d'une goutte d'eau et l'humidité relative (RH) :

$$RH = a_{w,s} \exp\left(\frac{2M_w\sigma}{RT\rho r}\right) \quad \text{Équation 2}$$

Avec $a_{w,s}$ l'activité de l'eau dans la solution, M_w la masse molaire de l'eau, σ la tension superficielle de la solution, R la constante des gaz parfaits de l'eau, T la température, r le rayon de la gouttelette à l'équilibre et ρ la densité de la gouttelette de solution aqueuse. Le terme en exponentiel est lié à la courbe de Kelvin considérant l'effet de la courbure de l'aérosol sur l'équilibre étudié. Cet effet montre que l'humidité relative requise pour activer un aérosol en gouttelette, augmente lorsque la taille de cet aérosol diminue. D'autre part, l'activité de l'eau est liée à la courbe de Raoult et montre que la présence d'un soluté hydrophile dans l'eau réduit l'humidité relative nécessaire à l'activation de l'aérosol en gouttelette. La réunion de ces deux contributions physique (effet Kelvin) et chimique (effet Raoult) donne les courbes de Köhler montrant la relation entre la sursaturation et la taille de l'aérosol. En outre, l'interaction des aérosols avec la vapeur ou l'eau des nuages dépend du type de nuages concernés (sursaturation différente), notamment les nuages continentaux ou maritimes, convectifs ou stratiformes, et les nuages en phase liquide ou glacée (Andrejczuk et al., 2010; Reutter et al., 2009). En retour, les propriétés des aérosols sont modifiées par les processus dans les nuages (Crumeyroille et al., 2008; Hoppel et al., 1994; Levin et al., 1996). Les composés gazeux et les particules d'aérosol entrent dans les gouttelettes de nuage et, ainsi, peuvent se dissoudre, se dissocier et subir des réactions chimiques (Seinfeld and Pandis, 2016). Par exemple, la chimie de la phase aqueuse dans les gouttelettes de nuages contribue de manière significative à la production d'aérosols de sulfate et de nitrate dans l'atmosphère (Hayden et al., 2008; Hegg, 1985; Walcek and Taylor, 1986). Barth et al. (2000) estiment qu'à l'échelle mondiale, jusqu'à 80 % de la production totale de sulfate est due à l'oxydation en phase aqueuse.

Cependant, une grande partie des particules processées par les nuages subira des modifications physique et chimique lors de la déshydratation (Karamchandani and Venkatram, 1992; Seigneur and Saxena, 1988). En effet, les particules sont modifiées chimiquement en raison d'un réarrangement chimique (Tobon et al. 2021) et/ou l'apparition d'un revêtement de composés solubles (Hoppel et al., 1994; Wurzler et al., 2000) entraînant une modification de leurs propriétés hygroscopiques (Crumeyroille et al., 2008; Levin et al., 1996) et une augmentation du diamètre moyen de ces particules.

Comme dit précédemment, le nombre de gouttelettes de nuage affecte en outre les propriétés des nuages, telles que le forçage radiatif des nuages (Twomey, 1977) ou la durée de vie des nuages et les régimes de précipitations (Albrecht, 1989; Ramanathan et al., 2001; Rosenfeld et al., 2008). L'impact des aérosols s'avère significatif, et plusieurs études montrent une augmentation du rayon effectif des gouttelettes de nuage lorsque la concentration d'aérosols diminue (Lihavainen et al., 2008; Twohy et al., 2009). Il faut toutefois garder à l'esprit que le nombre

potentiel de CCN généralement mesuré peut ne pas être directement proportionnel au nombre de gouttelettes de nuage réellement activées (c'est-à-dire la concentration du nombre de gouttelettes de nuage, CDNC). Outre la taille et la composition chimique des particules, qui déterminent leurs propriétés CCN, la CDNC dépend également de facteurs externes. Le profil de sursaturation du nuage, qui dépend en outre de la vitesse du courant ascendant, détermine finalement l'activation des particules et, par la suite, les propriétés climatiques du nuage (Rogers, 1975). Par ailleurs, une concentration initiale d'aérosols plus élevée peut diminuer le rapport de mélange de la vapeur d'eau et la libération de la chaleur latente, ce qui a pour conséquence de réduire le courant ascendant et la sursaturation des nuages (Planche et al., 2010). Ainsi, cet effet peut, dans une certaine mesure, contrebalancer l'effet de l'augmentation de la concentration d'aérosols sur la brillance des nuages (premier effet indirect), et encore plus si les particules d'aérosols sont très solubles dans l'eau. Cependant, à notre connaissance, cela n'a pas été vérifié par des preuves expérimentales directes.

Néanmoins, les preuves expérimentales obtenues par des études in situ de la transformation des aérosols dans les nuages sont rares et souvent limitées à des études au sol sur les nuages orographiques (Bower et al., 1997). Les nuages de la couche limite marine couvrent une grande partie de l'océan planétaire (~30% selon (Warren et al., 1988)) et leur albédo est environ 10 fois plus grand que celui de la surface océanique sombre sous-jacente. Cela signifie que les nuages de la couche limite marine peuvent influencer de manière cruciale le bilan radiatif de la Terre (Hartmann et al., 1992).

2.2.1 Modification des propriétés des aérosols (Crumeeyrolle et al. 2013)

Dans le cadre du projet EUCAARI (European Aerosol Cloud Climate and Air Quality Interactions), l'ATR-42, avion de recherche de Météo France, a effectué 22 vols scientifiques (Crumeeyrolle et al., 2010) consacrés à l'étude des interactions aérosol-nuage à partir de l'aéroport de Rotterdam (Pays-Bas) au cours du mois de mai 2008. L'ATR-42 était équipé d'une instrumentation scientifique complète pour réaliser des études sur les aérosols et les nuages (Crumeeyrolle et al., 2008; Matsuki et al., 2010). Pour prélever l'air extérieur, deux veines sont installées : une veine de prélèvement communautaire (CAI - Community Aerosol Inlet) pour les mesures d'aérosols dans des conditions sans nuages et d'un impacteur virtuel à contre-courant (CVI (Schwarzenboeck et al., 2000)) utilisé pour les mesures dans les nuages. Ainsi, le fait de passer de la CVI dans des conditions nuageuses à la CAI dans des conditions de ciel clair a permis un échantillonnage direct des particules d'aérosol, qu'elles soient résiduelles ou hors nuage.

L'objectif de cette étude est d'illustrer l'impact des nuages sur les propriétés physiques et chimiques des particules d'aérosol à l'aide d'instruments embarqués permettant de déterminer la composition chimique (cToF-AMS- Compact Time of Flight Aerosol Mass Spectrometer) et la distribution en taille des aérosols (SMPS). Les résultats présentés sont extraits des mesures effectuées au cours de deux vols consécutifs, d'abord de Rotterdam à Newcastle (Royaume-

Uni, RF51), puis en sens inverse le long des mêmes points de passage pour revenir à Rotterdam (RF52). En effet, le 15 mai 2008, une nappe de stratocumulus marins s'est formée au-dessus de la mer du Nord, entre Rotterdam (Pays-Bas) et Newcastle (Royaume-Uni). Les propriétés physiques et chimiques des particules observées à proximité immédiate, en dessous et au-dessus du stratocumulus, présentent de fortes différences.

Les différents segments de vol liés à la couche nuageuse de stratocumulus (sc) sont représentés sur la Figure 12: les segments verts correspondent aux périodes sans nuage nommées à proximité des stratocumulus (segments V), les segments noirs qui sont liés aux mesures au-dessous/au-dessus de la couche nuageuse (segments C), tandis que les segments violets correspondent aux mesures " dans le nuage " échantillonnant l'aérosol résiduel du nuage via le CVI (segments I).

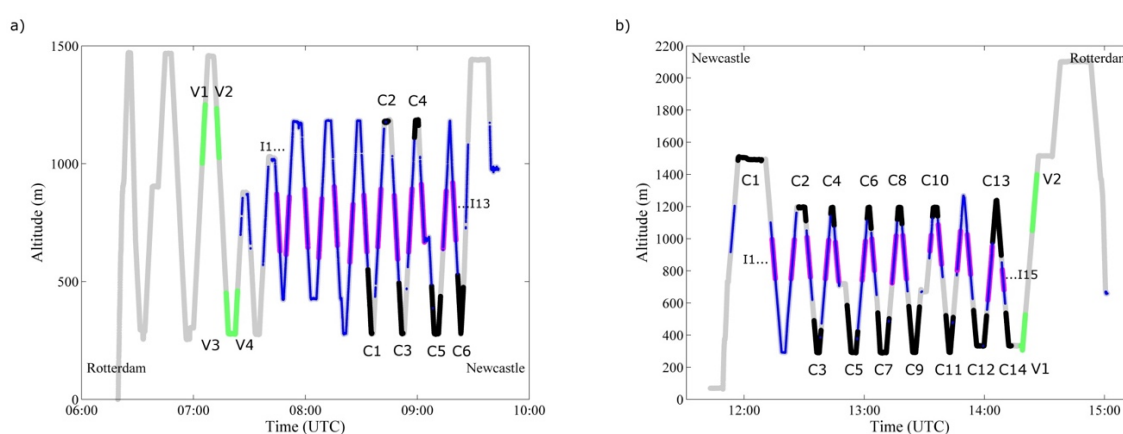


Figure 12: Schémas de vol et altitudes en fonction du temps pour les vols du 15 mai 2008 de (a) Rotterdam à Newcastle (RF51) et (b) le vol de retour (RF52). La couleur bleue correspond aux périodes dans le nuage. Les mesures correspondant aux mesures CVI dans le nuage sont illustrées par des couleurs roses (I1-I13, et I1-I15, respectivement). La couleur verte représente les segments de vol pendant les conditions de sc-vicinité, dans la gamme d'altitude correspondante aux mesures effectuées au-dessus/au-dessous (noir) du stratocumulus.

Afin de caractériser l'évolution des particules d'aérosol due aux processus nuageux, nous avons comparé les propriétés des particules observées le long des segments effectués au voisinage, en dessous/au-dessus ainsi que dans les nuages. Les Figure 13 a et b résument les observations faites durant les vols RF51 et RF52, respectivement, des distributions en taille et la composition chimique des particules observées à proximité des nuages, au-dessus et en dessous de la couche de stratocumulus, ainsi que dans la couche nuageuse.

Les distributions de taille en nombre montrent que les modes Aitken ($D < 0,1 \mu\text{m}$) et accumulation ($0,1 < D < 0,5 \mu\text{m}$) étaient présents au-dessus et en dessous de la couche nuageuse. La présence de particules issues d'un mode de nucléation ($D < 0,02 \mu\text{m}$) a également été observée au-dessus de la couche nuageuse pendant le vol du matin et sous la couche nuageuse pendant le vol de l'après-midi. Les distributions de taille moyenne observées sous la couche nuageuse mettent en évidence un minimum prononcé entre les deux principaux modes, connu sous le nom de "minimum de Hoppel" (Hoppel et al., 1994), de la distribution bimodale en taille des

aérosols observés pendant la période hors nuage dans la même couche atmosphérique. Comme il a été démontré que les distributions bimodales résultent de la transformation des nuages (Hopfel et al. 1994, Saxena 1996, Clarke et al., 1996, Weber et McMurry 1996), nous pouvons conclure que cette forme bimodale prononcée est due (1) à l'activation, (2) à l'ajout de masse par lessivage aux gouttelettes de nuages. En outre, les concentrations en nombre et en masse des particules diminuent au-dessus et au-dessous de la couche nuageuse par rapport aux périodes au voisinage de la couche nuageuse. Cette perte de masse au-dessus du nuage peut être liée à l'entraînement des particules, dans la couche nuageuse à l'activation, et en dessous du nuage à la collision/coalescence et au lessivage.

Enfin, les Figure 13 a et b mettent en évidence une forte dépendance de la composition chimique de l'aérosol par rapport au lieu d'observation (proximité ou au-dessous/au-dessus du nuage). La fraction des composés de nitrate augmente dans la phase résiduelle du nuage, tandis que la fraction de sulfate diminue. Il est intéressant de noter que les concentrations massiques de nitrate sont plus importantes dans la phase résiduelle du nuage par rapport aux périodes de proximité du nuage (par un facteur de 1,7 à 3,8 le matin et l'après-midi, respectivement), ce qui suggère une production de nitrate dans le nuage ou une absorption de vapeur d'ammoniac augmentant artificiellement l'efficacité d'activation et/ou la production intranuageuse du nitrate (Leriche et al., 2007).

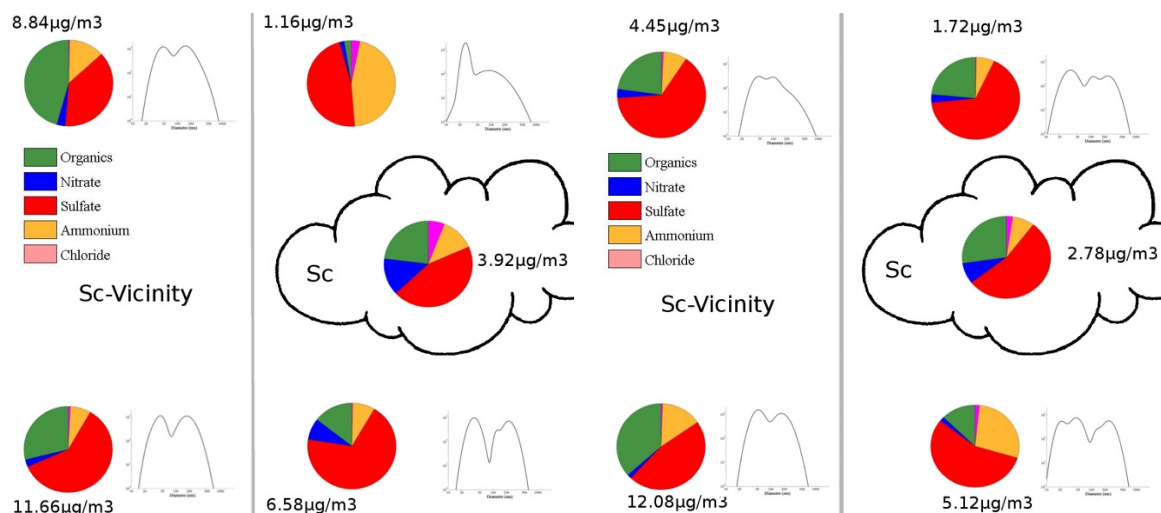


Figure 13 : Composition chimique des particules à partir des mesures cToF-AMS pour le vol de recherche RF51 en-dessous/au-dessus d'une couche de stratocumulus, ainsi que dans le stratocumulus à différents niveaux d'altitude (couche inférieure à 300-600m [asl], niveau de nuage à 600-1000m [asl], et couche supérieure à 1000-1500m [asl]).

2.2.1 L'importance du nitrate (Crumeyrolle et al. 2021)

Dans la littérature, le sulfate anthropique est considéré comme le principal composant des noyaux de condensation des nuages (Boucher et al., 2013). Cependant, la concentration de sulfate anthropique diminue rapidement dans la région de la mer du Nord en raison d'une diminution des émissions de SO₂ (précurseur du SO₄) dans les pays bordants la mer du Nord (Aulinger et al., 2016), tandis que le nitrate est actuellement le composé dominant et diminue à un

rythme bien moindre (Tørseth et al., 2012; Weijers et al., 2011). Selon les modèles (Bellouin et al., 2011), l'importance de l'interaction aérosol-nuage (ACI) régionale diminuera, mais à un rythme beaucoup plus faible que celui prévu précédemment, car le nitrate prendra un rôle dominant en tant que CCN au cours de ce siècle.

À ce jour, cet effet d'interaction aérosol-nuage (ACI) est le plus incertain des effets climatiques. Étant donné que la concentration en nombre des noyaux de condensation des nuages (CCN) naturels est faible dans les stratocumulus marins, une augmentation des CCN anthropiques supplémentaires fait une différence significative. Cet effet devrait donc être particulièrement important dans les régions marines côtières avec des sources d'aérosols anthropiques proches, comme la mer du Nord.

Le stratocumulus marin (SCM) est le type de nuage le plus courant à l'échelle mondiale et également dans la région de la mer du Nord (Wood, 2012). Le SCM se forme généralement sous la forme d'un champ nuageux au sommet de la couche limite. Dans l'hypothèse d'une couche limite bien mélangée, ces nuages sont effectivement influencés par les aérosols anthropiques. C'est pourquoi dans cette étude, nous nous limiterons à mieux comprendre l'impact du nitrate en tant que CCN et CDNC (concentration en nombre des gouttelettes de nuage) dans les SCM et nous limiterons donc l'étude aux masses d'air ayant séjourné sur la mer avant d'atteindre les sites d'observations. Deux sites d'observations ont été utilisés ici le super site Cabauw (Figure 14), pour les campagnes de long terme (2008) et la chambre à nuages CHIEF pour les campagnes de mesures intensives (en été 2007 et en avril 2009). Cette dernière est localisée à Petten (Figure 14) et est une chambre à écoulement de 20m³ dans laquelle les conditions de petite supersaturation des stratocumulus marins sont simulées (Crumeyroille et al., 2021).

Deux types de masse d'air ont pu être discernées en ce qui concerne la composition de l'aérosol ambiant et des CCN : (i) les masses d'air provenant du Nord-Ouest (NO), caractérisées par une faible concentration en particules de diamètre > 100 nm (N₁₀₀), caractéristiques d'une absence significative d'aérosols anthropiques ; (ii) les masses d'air provenant du Sud-Ouest (SO), passant au-dessus du Royaume-Uni ou du Nord-Ouest de la France/Belgique et caractérisées par de fortes concentrations en N₁₀₀ (Figure 14). Dans les masses d'air propre (NO), les concentrations submicroniques en nitrate étaient systématiquement inférieures à la limite de détection. Ces résultats ont été confirmés par la campagne de mesures de plus long terme se déroulant à Cabauw en 2008 et corroborés par une surveillance d'un an sur le même site en 2011-2012 (Schlag et al., 2016). Au contraire dans les masses d'air polluées (SO), le nitrate était un composé important de l'aérosol ambiant.

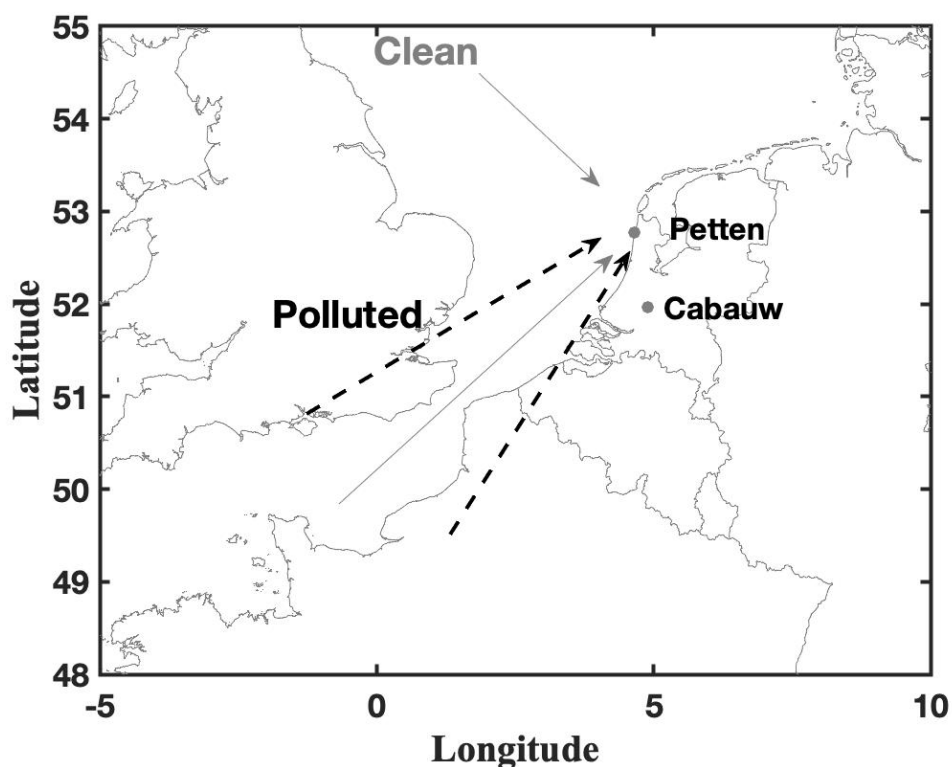


Figure 14 : Localisation de Petten et Cabauw, ainsi que la distinction des principaux flux d'air atteignant les sites ("Propre" : flux du nord-ouest et masses d'air passant au-dessus de la Manche ; "Pollué" : flux du sud-ouest, basé sur N_{100}).

Le rôle du nitrate par rapport au sulfate pour le nombre de CCN et la CDNC associée dans un stratocumulus marin régional a été évalué par le biais de mesures dans la chambre CHIEF dans laquelle les conditions de sursaturation de stratocumulus ont été imitées. La distribution en taille et la composition chimique en fonction de la taille de l'aérosol ambiant et interstitiel ont été mesurées. Par différence, la concentration et la composition chimique résolues en taille des CCN ont été obtenues. Les distributions en taille des aérosols ambiant et interstitiel sont ensuite moyennées sur deux périodes spécifiques : masses d'air marines et propres (Figure 15a) et masses d'air marines et polluées (Figure 15b). En soustrayant la distribution en taille des aérosols interstitiels (bleu) de celle de l'aérosol ambiant (rouge), on obtient la distribution de la taille des CCN (vert).

Pendant les périodes non polluées (29-30 juillet et 8-11 août), la concentration massique en nitrate était égale ou proche de la limite de détection de 15 ng m^{-3} , tandis que la concentration en sulfate était nettement plus élevée et atteignait $1 \text{ } \mu\text{g m}^{-3}$ en accord avec les résultats précédents (Crumevolle et al., 2013). Les périodes non polluées sont associées à une forte couverture nuageuse et à une faible CDNC (inférieur à 300 cm^{-3}) atteignant un minimum de 175 cm^{-3} les 29 et 30 juillet. On peut alors observer que la distribution en taille des CCN est monomodale avec un large maximum centré vers 120 nm (Figure 15a). La concentration totale en nombre de CCN (180 cm^{-3}) est en bon accord avec la CDNC (175 cm^{-3}) observée simultanément dans la chambre nuageuse et en accord avec les observations précédentes dans des masses d'air marines

à Macehead (Yoon et al., 2007). On peut également noter que le diamètre d'activation, diamètre à partir duquel 50% des particules s'activent, est d'environ 75 nm (Figure 15a) en accord avec les observations du Jungfraujoch pour les masses d'air provenant du NO en été (Hammer et al., 2014). Il convient de mentionner que la concentration des particules, dont le diamètre est plus grand que 450 nm, était très faible (3 cm^{-3}) et ont donc certainement dû agir comme CCN compte tenu de leur taille. Des conclusions similaires peuvent être tirées à partir des observations réalisées pendant la seconde période d'air propre (8-11 août), mais à des concentrations légèrement plus élevées.

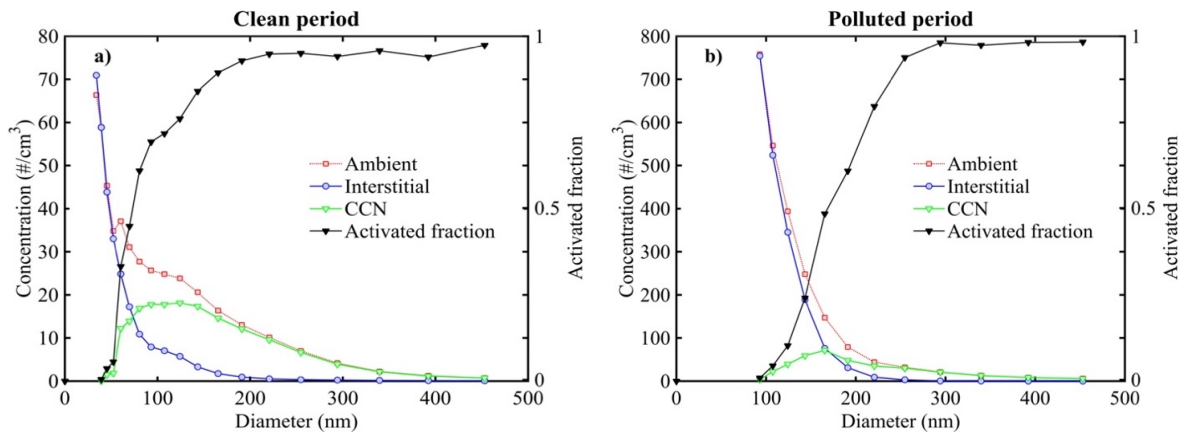


Figure 15: Distributions en taille des aérosols ambiants (couleur rouge) et interstitiels (couleur bleue) observés dans les masses d'air propre (a, moyenne du 29 au 31 juillet 2007) et pollué (b, moyenne du 1-2 août 2007). La distribution en taille des CCN (couleur verte) a été estimée par différence entre les distributions en taille des aérosols ambiants et interstitiels. La concentration totale en nombre de gouttelettes nuageuses était inférieure à 200 cm^{-3} , voir la figure 3a. La concentration en nombre par intervalle de taille logarithmique est représentée par le point au milieu de cet intervalle. Les plus petits intervalles du spectre CCN sont plutôt incertains en raison de la soustraction de deux grandes valeurs.

Pendant les périodes polluées, la concentration en nitrate est élevée et peut atteindre $3.5 \mu\text{g m}^{-3}$. Les distributions en taille des aérosols ambiants et interstitiels, moyennées sur la nuit du 1^{er} au 2 août, sont représentées sur la Figure 15b. La distribution de la taille des CCN présente un maximum autour d'un diamètre de 170 nm. A partir de la fraction activée de l'aérosol, on peut estimer qu'essentiellement toutes les particules, avec un diamètre entre 250 et 450 nm, servent de CCN et correspondent à environ 15% du nombre total de CCN. Le diamètre d'activation est d'environ 165 nm (Figure 15b) et est donc deux fois plus important que pendant la période non polluée.

Pour mieux comprendre le rôle du nitrate, en termes de CCN, par rapport au sulfate dans les masses d'air marines et polluées, le rapport entre la concentration massique de nitrate et de sulfate dans la gamme de taille des CCN (environ 100-250 nm) a été calculé à partir de mesures sur une année complète (correspondant à 1200 heures de mesures après application des filtres marin et pollution). Le rapport moyen des concentrations massiques de nitrate et de sulfate (N/S) dans la gamme de taille des CCN était proche de 3 en hiver, d'environ 2 au printemps et

de 0,2 en été. Par ailleurs, la comparaison des mesures en chambre nuageuse des deux campagnes intensives (été et printemps) montre une différence de répartition du nitrate et du sulfate en fonction des diamètres des particules. En été, le nitrate est présent dans les CCN les plus grands (200-450nm) qui représentent environ 20% des CCN, tandis que les CCN plus petits et plus nombreux sont dominés par le sulfate. Alors que pendant la campagne d'avril, le nitrate est le principal composé de l'aérosol sur l'ensemble de la gamme de taille. La composition chimique des CCN est alors deux fois plus concentrée en nitrate par rapport au sulfate. Ces variations saisonnières (concentration et répartition en taille) s'expliquent par (i) l'instabilité du nitrate semi-volatile aux températures élevées qui se produisent le plus souvent en été (ii) en combinaison avec l'évaporation préférentielle du nitrate des plus petites particules. Par conséquent, en été, le nitrate joue un rôle mineur en tant que CCN alors qu'en hiver il domine largement les aérosols. Sa prise en compte dans les études de modélisation est donc essentielle pour mieux comprendre les interactions aérosols / nuages.

2.3 Impacts de ces interactions (Crumeyrolle et al. 2022)

Au cours des 50 dernières années, l'irradiation solaire au-dessus des Pays-Bas a considérablement augmenté, tant par temps clair que par temps nuageux (Boers et al., 2017). L'augmentation de l'irradiation solaire par temps clair pourrait être attribuée à une diminution des aérosols réfléchissants dans l'atmosphère, comme les sulfates (Boers et al., 2017; Hand et al., 2011). Alors que la diminution de l'irradiation solaire dans des conditions nuageuses pourrait être causée par une diminution des noyaux de condensation nuageuse (CCN) conduisant à une réduction de la réflectivité des nuages. En effet, en supposant un contenu en eau liquide (LWP) constant, une diminution de la concentration de CCN impliquerait une concentration plus faible du nombre de gouttelettes de nuage (CDNC) conduisant à un nuage moins réfléchissant (Boucher et al., 2013; Lohmann, 2006; Twomey, 1977). Dans ce cas, les tendances de la CDNC et de l'irradiance sous le nuage devraient être similaires.

Des analyses de tendances sont nécessaires pour suivre l'évolution du rayonnement solaire et des CDNC. Dans l'analyse des tendances, la moyenne annuelle des valeurs mesurées de l'irradiation solaire ne peut être utilisée en raison de sa variation qui dépend de l'angle solaire et de la couverture nuageuse. Pour ces raisons, (Boers et al., 2017) ont défini un "proxy" pour l'irradiance sous les nuages par an. À la latitude des Pays-Bas, l'irradiation solaire annuelle est déterminée par celle de l'été en raison des longues heures d'ensoleillement et de la forte irradiation. Contrairement à l'irradiation solaire, la tendance du CDNC ne peut être évaluée à partir de mesures en raison de l'absence de données de surveillance à l'échelle mondiale. Pour évaluer la tendance historique du CDNC, il existe différentes approches dont l'utilisation de la concentration en masse des composants hygroscopiques, généralement le sulfate (Boucher and Lohmann, 1995) couramment mesuré dans les réseaux, des aérosols comme indicateur. Dans une évaluation récente du plus grand ensemble de données sur les nuages marins en Californie du Sud (MacDonald et al., 2020), la paramétrisation de Boucher et Lohmann (B&L, Équation 3) a donné les meilleurs résultats par comparaisons aux observations. C'était également le cas dans une étude plus courte au large de la côte canadienne de l'Atlantique Nord (Leaich et al., 1996). A partir d'observations in-situ (nuages et aérosols) dans la chambre à nuages (CHIEF) localisée dans les Pays-Bas, nous avons tout d'abord validé la paramétrisation B&L pour les stratocumulus présents au-dessus des Pays-Bas.

$$\text{Log CDNC} = 0.41 * \log(\text{Conc}_{\text{SO}_4}) + 2.21$$

Équation 3

La concentration massique de sulfate est mesurée depuis juillet 1972 aux Pays-Bas, et de nombreuses données sont incluses dans la base de données EMEP / EBAS (Tsyro, 2005). Une étude précédente (Arends et al., 1997) avait déjà effectué une analyse comparant la tendance de la concentration massique de sulfate observée à la réflexion du rayonnement pendant les étés des années 1978-1994. Depuis la publication de cette étude, la base de données a évolué pour homogénéiser les valeurs de concentration massique en fonction de la méthode de mesure utilisée. Au total, les concentrations massiques de sulfate non marin sont disponibles pour onze sites opérationnels à différentes périodes, avec souvent un seul site actif. Il existe une bonne corrélation entre les données collectées simultanément sur les différents sites. La concentration

massique médiane de sulfate non marin de seulement trois sites (Witteveen, Appelscha, Vredepeel) a été utilisée pour reconstruire la tendance du sulfate en été (Figure 16a). On peut clairement voir que la tendance des sulfates non marin est nettement décroissante avec le temps. La concentration estivale médiane en 1972 était d'environ $10,2 \mu\text{g m}^{-3}$ et diminue jusqu'à $1,9 \mu\text{g m}^{-3}$ en 2019. En outre, on peut clairement voir que la variabilité de la moyenne journalière (points gris) diminue également avec le temps.

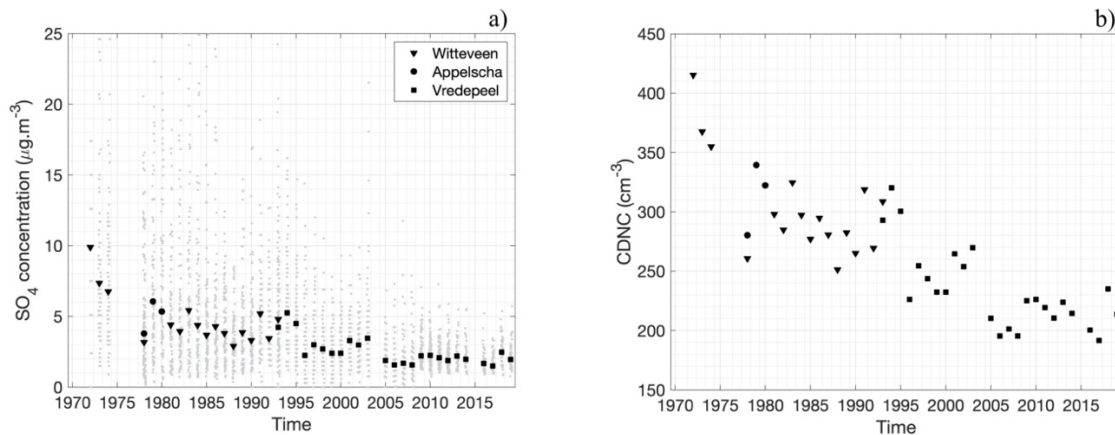


Figure 16 : Série temporelle de la concentration massique de sulfate non marin mesurée aux Pays-Bas pendant la saison estivale (juin - août) à partir de 3 sites (Witteveen : triangles, Appelscha : points, Vredepeel : carrés) entre 1972 et 2019. Les symboles noirs correspondent aux valeurs médianes de la saison estivale et les symboles gris aux moyennes journalières. (b) Série temporelle de CDNC estival dérivée de la relation de Boucher et Lohmann (Boucher and Lohmann, 1995) appliquée à la concentration de sulfate non-marin montrée Figure 16a.

Pour estimer la tendance estivale du CDNC, on utilise la relation de B&L (Équation 3) entre le CDNC et la concentration massique de sulfate non marin (Figure 16 b). Avec une concentration actuelle de sulfate non marin d'environ $1,9 \text{ g m}^{-3}$ sur les Pays-Bas, le CDNC devrait être de l'ordre de 200 cm^{-3} . En 1972, la concentration de sulfate non marin était supérieure à 10 g m^{-3} et le CDNC est alors retrouvé à la valeur maximale asymptotique de 380 cm^{-3} , voire au-dessus. Une nette diminution du CDNC, dans un rapport allant jusqu'à un facteur 2, est observée au cours des 40 dernières années (Figure 16 b).

La tendance de l'irradiance annuelle moyenne mesurée sous le nuage à Cabauw (Boers et al., 2017) est reproduite Figure 17 a. D'un plateau à $76 \pm 3 \text{ W m}^{-2}$ pendant la période 1966-1996, l'irradiance a augmenté jusqu'à un niveau d'environ $87 \pm 2,5 \text{ W m}^{-2}$ pendant la période 2000-2015. Cette différence (augmentation de 16 %) est significative et dépasse largement les incertitudes. Par conséquent, le rayonnement solaire sous les nuages est clairement en augmentation aux Pays-Bas. Comme le CDNC diminue au cours de la même période, l'hypothèse d'une réflectivité plus faible des nuages due à un CDNC plus faible pourrait expliquer cette tendance. La transmission des nuages serait plus importante et le rayonnement total sous les nuages augmenterait également.

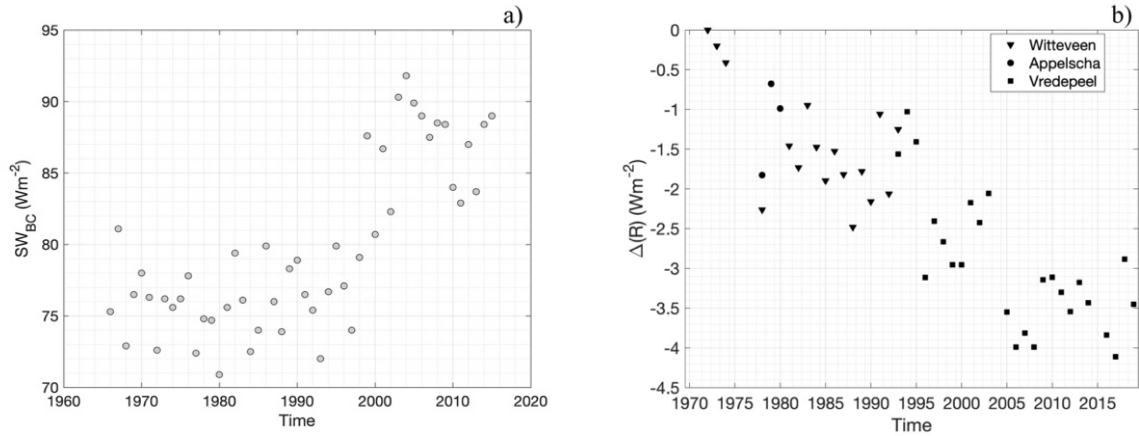


Figure 17 :(a) Rayonnement absolu par proxy de la base des nuages tel que décrit par Boers et al (1997) entre 1966 et 2015, mesuré à Cabauw. (b) Modification de la réflectivité et donc de l'irradiance solaire sous nuage tel que déduit de la diminution de la CDNC (Figure 16 b) de 1972 à 2019.

Afin d'estimer cet effet, nous avons utilisé la relation donnée par Schwartz et Slingo (Schwartz and Slingo, 1996). Ils ont établi (Équation 4), sur la base des travaux de Twomey (Twomey, 1977), que la diminution de la réflectivité R est associée à la diminution du CDNC en considérant un contenu en eau liquide (LWP) et une épaisseur de nuage (Z_c) constants. Cette équation est précise à 10 % près pour des nuages dont la réflectivité est comprise entre des valeurs de 0,28 et 0,72 caractéristiques des stratus marins. Il convient également de noter que cette relation s'applique en l'absence de nuages supérieurs superposés. Comme le profil vertical des nuages n'est pas observé, nous supposons qu'il n'y a que des stratocumulus non obstrués au-dessus des Pays-Bas, ce qui signifie que l'évolution de la réflectivité calculée est une limite supérieure.

$$(\Delta R)_{LWP, Z_c} = 0.075 * \Delta \ln(\text{CDNC}) \quad \text{Équation 4}$$

En supposant que le LWP et l'épaisseur géométrique moyens des nuages soient constants au cours des 50 derniers étés aux Pays-Bas, la réflectivité estimée du strato-cumulus diminue de $3,5 \text{ Wm}^{-2}$ en 2019 par rapport à 1972 en raison de la diminution du CDNC. Pour mettre en perspective cette valeur, le forçage total des gaz à effet de serre au cours de la période industrielle était d'environ $2,5 \text{ W m}^{-2}$, le CO_2 contribuant pour $1,5 \text{ W m}^{-2}$ (Shine, 2000). Le forçage indirect sur la réflectivité des nuages n'est donc pas négligeable. Comme nous l'avons dit précédemment, cette valeur est une estimation supérieure étant donné que les strato-cumulus observés au-dessus des Pays-Bas ne sont pas toujours dégagés. De plus, cette valeur estimée est bien inférieure à l'augmentation observée de l'irradiance sous les nuages (environ 10 Wm^{-2}). Par conséquent, l'augmentation de l'éclairement énergétique sous les nuages ne peut pas être expliquée par l'interaction entre les aérosols et les nuages dans les couches inférieures.

2.4 Conclusions et perspectives

Ces différentes études menées durant ma carrière ont permis de mettre en évidence les difficultés existantes pour mieux comprendre les interactions aérosols avec la vapeur d'eau quel que soit le régime (sous ou sur saturé). Afin de pouvoir mieux estimer les interactions aérosols/nuages, il est nécessaire de pouvoir modéliser les propriétés chimiques et physiques des aérosols dans des conditions d'humidités relatives variées et à proximité des nuages. Or ces études montrent que la composition chimique d'un aérosol varie en fonction de l'humidité relative (Tobon et al., 2021) mais aussi en fonction de la position de ces aérosols par rapport au nuage (Crumeyrole et al., 2013) et qu'il est impossible de déterminer précisément le point de déliquescence d'un mélange d'aérosols. Par ailleurs, les paramétrisations les plus simples se basent sur la concentration de sulfate dans les aérosols pour déterminer le nombre de gouttelettes nuageuses ignorant la concentration de nitrate qui à l'heure actuelle est bien plus importante dans l'aérosol atmosphérique que la concentration de sulfate (Crumeyrole et al., 2021). Une perspective de ce travail consiste à comparer les données des mesures aérosols effectuées en surface (ATOLL) avec des mesures directement liées aux nuages : (1) de télédétection active ou passive depuis le sol ou embarqué et (2) avec la composition chimique de l'eau de pluie.

En effet, des études montrent que différents types d'aérosols plus ou moins concentrés ont peu d'influence sur les nuages bas non précipitants (Garrett et al., 2004). Une étude similaire, mais dans un milieu urbain pollué, est en cours actuellement pour comparer le coefficient de diffusion avec les mesures d'épaisseur optique des nuages, le nombre et le rayon efficace des gouttelettes de pluie restitués par CLAAS-3 en se basant sur des données SEVIRI (Benas et al., 2023). Une partie de ce travail se base sur la synergie des instruments d'ATOLL pour déterminer le sommet de la couche limite et pour ne conserver que les cas où la dynamique n'aura que peu d'impact sur la formation et l'évolution du nuage (radiomètre micro-ondes) et que le nuage se trouve juste au sommet de la couche limite (LIDAR). Les résultats préliminaires, basés sur des restitutions par CMIC (Cloud MICROphysics) sur des données SEVIRI, montrent une augmentation du nombre de gouttelettes nuageuses et une diminution de leur rayon effectif lorsque le coefficient de diffusion augmente. De plus, un néphélomètre contrôlé en humidité (avec des valeurs de RH inférieures à 40 % et égales à 80 %) a été installé afin d'évaluer l'impact de l'humidité relative sur les propriétés optiques des aérosols sur le site ATOLL. En effet, la fonction $f(RH)$ peut être utilisée pour décrire la variation des propriétés hygroscopiques des aérosols (Titos et al., 2021). A moyen terme, l'analyse de ces données permettra de mettre en évidence les variations saisonnières de l'hygroscopicité des aérosols. Ces données seront alors analysées en synergie avec les données de la station ATOLL (similaire à l'étude précédente) mais aussi satellitaires pour évaluer l'impact des aérosols sur les nuages en fonction de leurs propriétés hygroscopiques.

Par ailleurs dans le cadre d'un projet financé par l'IREPSE⁶ en 2023, une étude interlaboratoire (avec L. Lesben du LASIRE) sera menée pour faire le lien entre les mesures des propriétés physiques et chimiques des polluants atmosphériques avec les concentrations des

⁶ IREPSE : Institut de Recherches Pluridisciplinaires en Sciences de l'Environnement

polluants retrouvées dans l'eau de pluie. Pour cela, des pluviomètres seront installés courant 2024 sur la station pour récolter des échantillons d'eau de pluie durant une année qui seront alors analysés pour leur composition chimique (éléments majeurs et traces, nutriments...) tant dans le dissous que dans le total (sans filtration) par le pôle Inductively Coupled Plasma (ICP) de l'institut Chevreul. A travers une analyse statistique, il sera alors possible de déterminer **(1) la composition chimique moyenne** sur une année d'une eau de pluie tombant sur le territoire des Hauts-de-France (en milieu urbain) en fonction de la saisonnalité (température, saison pollinique), des caractéristiques météorologiques (pluies après longs temps secs, force et sens du vent) et ou des conditions locales (zones de travaux, trafic urbain, ...) et **(2) comment les caractéristiques physiques (leur nombre et taille) et chimiques des particules** peuvent-elle influencer la composition chimique de cette eau de pluie via, notamment la désorption des éléments chimiques contenus dans ces particules lors du lessivage de l'atmosphère ou lors des périodes de stockage de ces eaux.

CHAPITRE 3 - Lien entre propriétés physique, chimique et optique

Les particules d'aérosol atmosphériques ont une grande influence sur le climat mondial et les écosystèmes en fonction de leurs propriétés physiques et chimiques. Ces propriétés sont extrêmement complexes et variables dans le temps et l'espace en raison de leurs diverses sources d'émission (Zhang et al., 2013), de leurs voies de transport variées (Guo et al., 2014)(Guo et al., 2014) et des processus physico-chimiques complexes qu'elles subissent (Deng et al., 2010; Xie et al., 2015). Le réseau actuel de surveillance de la qualité de l'air offre une couverture géographique relativement éparse (à titre d'exemple, seule 1 station surveille la qualité de l'air en particules dans la ville de Lille) et se limite (1) principalement aux zones urbaines et (2) à des mesures réglementaires comme la concentration massique ($PM_{2.5}$ et PM_{10}).

Les estimations globales des propriétés physique et chimique des aérosols doivent donc être obtenues à partir de modèles de transport et de modèles de circulation générale (GCM). Ces modèles sont généralement initialisés avec des inventaires d'émissions maillés de toutes les sources d'aérosols importantes connues et des distributions de taille supposées. Les aérosols sont ensuite transportés à travers le globe, changeant de masse et de propriétés optiques au fur et à mesure de leur temps de résidence. Les dépôts, humide et sec, sont les seuls puits de particules. Les inventaires des émissions d'aérosols et des modèles de transport ont été utilisé pour calculer les épaisseurs optiques d'absorption et sont comparés aux mesures du réseau de surveillance des aérosols par photométrie solaire (AERONET) sur 322 sites dans le monde (Sato et al., 2003). Il a été constaté que l'augmentation des inventaires d'émissions par un facteur de 2 à 4 fournissait la meilleure correspondance des contenus en aérosols simulés avec ceux fournis par les mesures AERONET. Cette différence suggère que les estimations basées sur des travaux de modélisation et/ou sur des inventaires d'émissions souffrent de fortes incertitudes.

L'amélioration de la résolution spatiale des mesures de surveillance de la qualité de l'air à l'échelle mondiale afin de saisir la variabilité à petite échelle est une priorité nécessaire pour les communautés scientifique et politique. Une étape importante vers cet objectif est l'utilisation de capteurs spatiaux qui permettent une surveillance quasi-continue des aérosols dans le monde entier. Cependant, la complexité et la résolution spatiale des restitutions d'aérosols par satellite, ainsi que les incertitudes liées aux interférences des nuages et de la brillance des surfaces au-dessus desquelles les mesures sont effectuées (van Donkelaar et al., 2006), posent encore de sérieux problèmes. Par ailleurs, plusieurs études ont signalé l'importance d'une couche d'aérosols au-dessus de la couche limite, car les couches d'aérosols élevées augmentent l'épaisseur optique mais sont découplées des mesures en surface (Engel-Cox et al., 2006; He et al., 2008; Schäfer et al., 2008). Par exemple, He et al. (2008) ont montré que seulement 64 % de la profondeur optique moyenne mensuelle des aérosols au-dessus de Hong Kong est due aux aérosols contenus dans la couche limite.

Néanmoins, plusieurs études ont exploré la possibilité d'évaluer la concentration massique en particules en surface à partir des propriétés optiques des aérosols mesurées depuis l'espace (Hoff and Christopher, 2009) et rapportent des comparaisons entre les mesures de concentration d'aérosols depuis l'espace et au sol pour l'Europe (Chu et al., 2003; Schaap et al., 2009; Vidot et al., 2007), le Canada (van Donkelaar et al., 2006), les États-Unis (Engel-Cox et

al., 2004; Gupta and Christopher, 2009) et d'autres endroits dans le monde (Gupta et al., 2007; Kumar et al., 2008, 2007).

D'autres études restituent la composition chimique des aérosols à l'échelle mondiale grâce à des paramétrisations permettant de relier les propriétés chimiques des aérosols observés à la surface aux mesures par télédétection. Les paramètres optiques clés utilisés pour l'identification de la composition chimique des aérosols sont (i) l'albédo de diffusion simple (SSA), (ii) l'exposant d'Ångström d'extinction/diffusion/absorption (EAE/SAE/AAE) et (iii) l'indice de réfraction complexe (CRI) (Arola et al., 2011; Choi and Ghim, 2016; Li et al., 2013; Schuster, 2005; Schuster et al., 2016; S. Wang et al., 2017; Wang et al., 2013a).

Une incertitude supplémentaire est liée à l'inadéquation temporelle et spatiale entre les mesures in-situ en surface et satellitaires. De ce fait, il est nécessaire de moyenniser les mesures faites en surface sur des échelles de temps allant de l'heure à la journée. Ceci a pour effet d'améliorer la relation entre les mesures in-situ en surface et satellitaires (Gupta et al., 2006) au détriment de la précision pendant les événements importants de pollution et de courte durée qui peuvent être critiques pour les prévisions de la qualité de l'air.

Malgré les progrès significatifs réalisés, les algorithmes existants doivent encore être améliorés, et une validation supplémentaire directement en comparaison avec des mesures in-situ doit être effectuée. En effet, les propriétés optiques des aérosols mesurées depuis l'espace le sont aussi à partir d'instruments in-situ déployés sur différents sites en surface ou sur des plateformes aéroportées. Des lors, il est possible de tester les algorithmes de restitutions uniquement à partir de jeux de mesure in-situ (Schuster et al., 2019).

Les recherches menées lors de mon post-doctorat à la NASA (section 3.1) m'ont permis de déterminer les paramètres essentiels pour améliorer les estimations des $PM_{2.5}$ à partir de mesures in-situ aéroportées. Par ailleurs, deux étudiantes en thèse (S. Wang et A. Velazquez Garcia), que j'ai co-encadré, ont travaillé sur le lien entre propriétés optiques et chimiques des aérosols à partir des mesures in situ effectuées sur le site ATOLL. Un algorithme de restitution du type d'aérosols absorbant à partir de paramètres optiques et d'une estimation de la densité des aérosols est présenté dans la section 3.2 (Wang et al., 2021) tandis que les efficacités d'extinction, de diffusion et d'absorption calculées à partir des mesures d'ATOLL seront présentées en section 3.3 (Velazquez-Garcia et al., 2023).

3.1 Restitution de la concentration massique (Crumeyrolle et al., 2014)

Étant donné les avantages possibles et les défis actuels de l'utilisation des observations par satellite pour prévoir la qualité de l'air au niveau du sol, le projet DISCOVER-AQ (Deriving Information on Surface Conditions from COlumn and VERTically Resolved Observations Relevant to Air Quality) de la NASA a été conçu pour déployer une suite coordonnée et complexe de mesures au sol et aéroportées. La stratégie de DISCOVER-AQ était de réaliser des observations systématiques et co-localisées des propriétés des aérosols par des techniques in-situ et de télédétection sur une grande diversité de régions sources aux Etats-Unis (Washington, DC en été 2011, la vallée de San Joaquin en Californie en hiver 2013, et Houston, TX en été 2013) et sur des stations de surveillance en surface pour fournir des mesures continues des principaux polluants. Nous nous concentrons ici sur la campagne de Washington D.C. et utilisons cet ensemble de données pour évaluer notre capacité à diagnostiquer les conditions de surface des $PM_{2.5}$ à partir d'observations satellitaires simulées, avec l'avantage unique d'une caractérisation hautement systématique de l'étendue verticale des aérosols et d'une couverture dense de mesures au sol.

Plus de 240 profils verticaux des propriétés optiques, chimiques et microphysiques des aérosols ont été réalisés au cours du vol NASA DISCOVER-AQ, au-dessus de Washington D.C., - Baltimore, MD, qui offrent une opportunité unique d'étudier la corrélation entre les observations de la qualité de l'air effectuées à la surface et les mesures intégrées sur la colonne. L'épaisseur optique des aérosols (AOD) a été calculée en utilisant l'intégration du coefficient d'extinction mesuré à 550 nm à bord du P-3B (avion de la NASA) sur toute la colonne. Les mesures ont été effectuées pendant le mois de juillet 2011 et ont montré que les concentrations massiques des aérosols ($PM_{2.5}$) mesurées à la surface (sites au sol de l'EPA) et les séries temporelles de l'AOD présentent de fortes similitudes.

Trois structures verticales atmosphériques différentes ont été couramment observées : (i) le sommet de la couche d'entraînement correspondant à la hauteur de la couche limite (60% des profils), (ii) le sommet de la couche d'aérosols correspondant au sommet de la BuL (Buffer layer (Russell et al., 1998)) incluant la couche limite (23% des profils) et (iii) une couche d'aérosols existant au-dessus de la BuL et de la couche limite (17% des profils). Des études précédentes (Al-Saadi et al., 2008; Tsai et al., 2011) ont discuté de l'importance de prendre en compte la hauteur de la couche d'aérosol pour estimer plus précisément les $PM_{2.5}$ en surface à partir de l'AOD. Les observations montrent que la variabilité des coefficients d'extinction au sein de la couche limite (CL) est faible (< 9%) permettant l'intégration linéaire sur toute la gamme d'altitude de la CL. La contribution de l'aérosol présent dans la Couche Limite (CL) à l'AOD total est utilisée pour contraindre la relation entre l' AOD_{550nm} et les $PM_{2.5}$. En conséquence, différentes pentes de l'AOD par rapport aux $PM_{2.5}$ sont observées en fonction de la présence et de l'épaisseur optique de la couche d'aérosol élevée. Ainsi, la hauteur de la couche de CL combinée à la contribution de la CL améliore l'estimation des $PM_{2.5}$ à partir de l' AOD_{550nm} . L'utilisation du sommet de la BuL au lieu du sommet de la CL comme hauteur de la couche d'aérosol améliore considérablement l'estimation des $PM_{2.5}$.

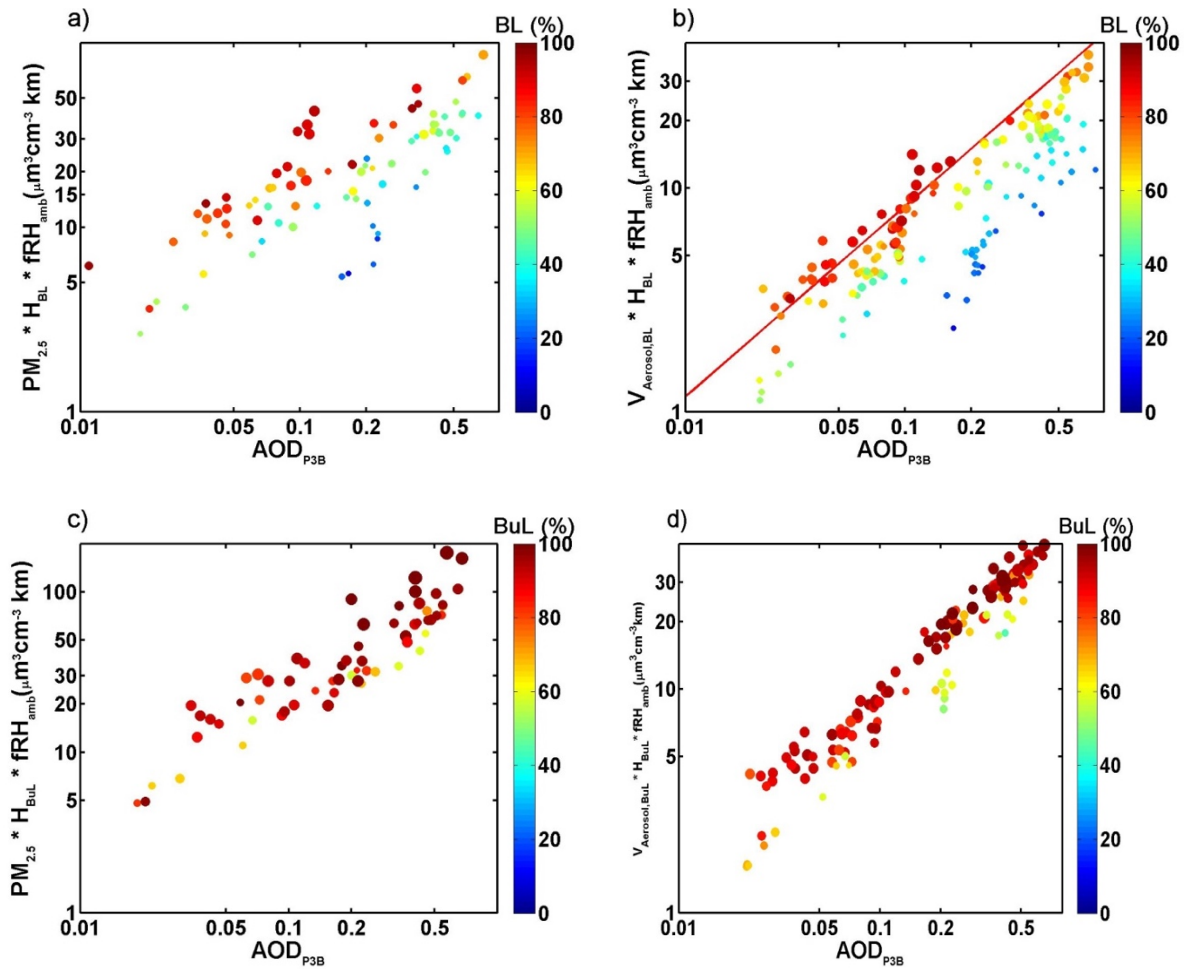


Figure 18 : Valeurs de $PM_{2.5}$ pondérées par des facteurs variables en fonction de l' AOD_{550nm} ambiant mesuré par le P-3B. La Figure 18a utilise la hauteur de la CL et $f(RH)_{amb}$, la Figure 18b utilise la hauteur de la CL et les concentrations volumiques mesurées à bord du P3-B, la Figure 18c utilise la hauteur de la BuL et $f(RH)_{amb}$, et d utilise la hauteur de la BuL et les concentrations volumiques. Le code couleur représente la contribution de CL (CL + BuL) à l' AOD et la taille de chaque point correspond à la hauteur de CL (BuL) (a, b et c, d respectivement). La ligne rouge correspond à l'ajustement linéaire des cas où la contribution de la CL à l' AOD est supérieure à 75%.

Au cours de cette campagne, l'effet du $f(RH)_{amb}$ sur l'estimation des $PM_{2.5}$ s'est avéré secondaire par rapport à celui de la distribution verticale de l'aérosol et à la contribution de l'aérosol dans la CL et a induit un facteur d'erreur variant de 1 à 2 (Figure 19). De plus, la comparaison du $f(RH)_{amb,P-3B}$ observé et du $f(RH)_{amb,sol}$ calculé montre que les erreurs sont inférieures à 10% lorsque la CL est relativement sèche (< 55%) alors que les erreurs sont supérieures à 19% lorsque la CL est relativement humide (plus de 75%).

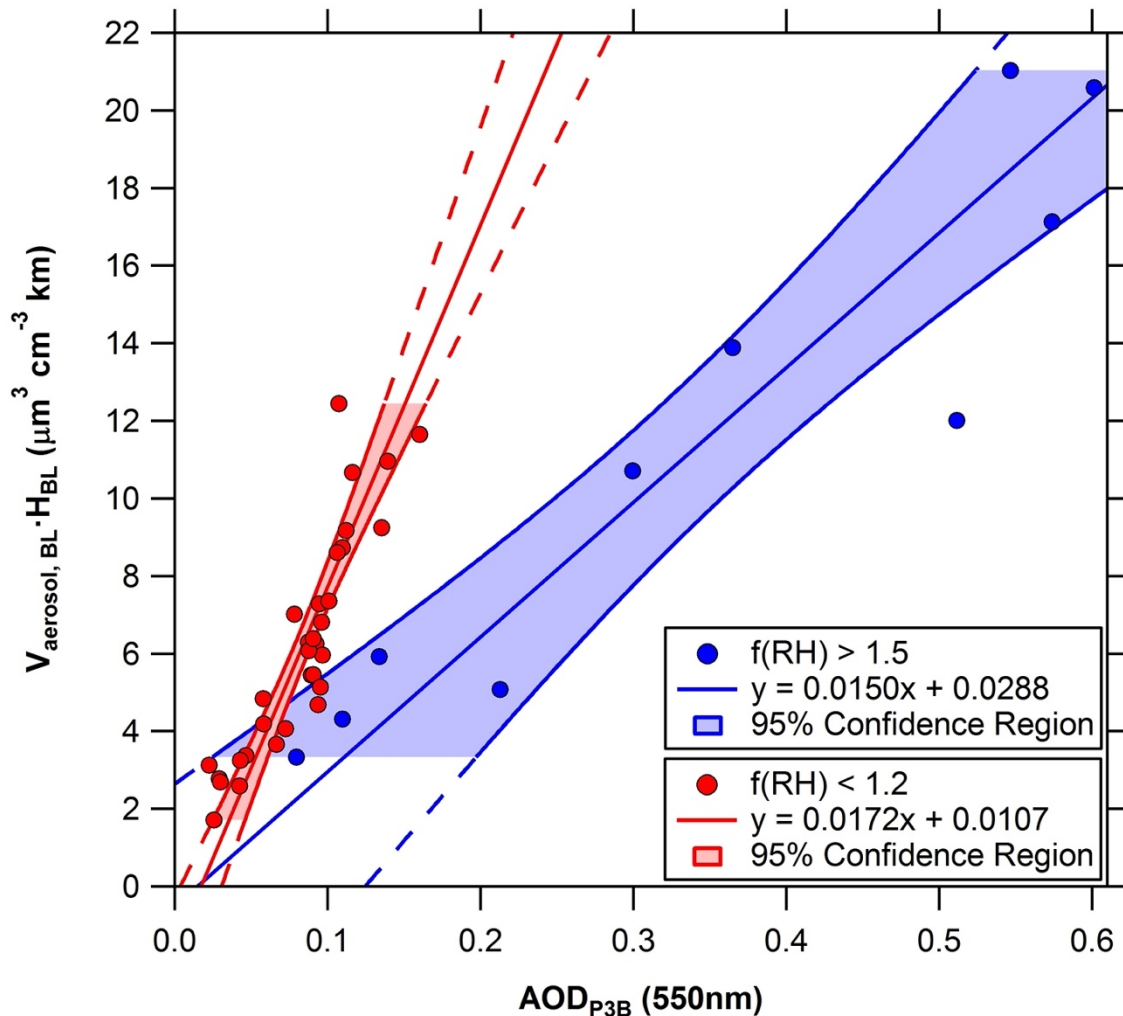


Figure 19 : Concentration volumique moyenne des aérosols dans la CL pondérée par la hauteur du CL, lorsque les aérosols présents dans la CL contribuent à 60% et plus, en fonction de l'AOD550nm des mesures P-3B. Les couleurs correspondent à des valeurs de $f(RH)_{amb,550nm}$ inférieures à 1,2 (rouge) et supérieures à 1,5 (bleu).

Cette étude a permis de déterminer les incertitudes associées à l'utilisation des mesures de l'AOD pour estimer les $PM_{2.5}$ au sol, et montre que la quantification précise de la hauteur de la couche d'aérosols (BuL) est primordiale pour prédire avec précision les concentrations de $PM_{2.5}$, tandis que la capture de la variabilité $f(RH)_{amb}$ basée sur la composition est moins importante pour l'estimation des $PM_{2.5}$. Dans des conditions de ciel clair, la variabilité $f(RH)_{amb}$ s'avère être un effet de second ordre dans les estimations globales. Comme ces résultats sont représentatifs de la région métropolitaine de Baltimore-Washington, l'extrapolation de ces résultats à d'autres lieux géographiques doit être faite avec précaution.

3.2 Restitution de la composition chimique des aérosols (Wang et al., 2021)

Les principaux paramètres optiques utilisés pour l'identification des composants des aérosols sont l'albédo de diffusion simple (SSA), l'exposant d'Ångström d'extinction/dispersion/absorption (EAE/SAE/AAE) et l'indice de réfraction complexe (CRI) (Choi and Ghim, 2016; Schuster et al., 2016; S. Wang et al., 2017). Le SSA est le rapport des coefficients de diffusion (b_{scat}) aux coefficients d'extinction (b_{ext}) et représente la capacité relative de diffuser et d'absorber la lumière.

$$SSA = \frac{b_{\text{scat}}}{b_{\text{ext}}} \quad \text{Equation 1}$$

L'EAE/SAE/AAE est défini par une relation de loi de puissance avec les coefficients d'extinction/dispersion/absorption des aérosols ($b_{\text{ext/scat/abs}}$) à différentes longueurs d'onde (λ_1 et λ_2), en fonction de la taille des particules et de la composition chimique (Cappa et al., 2016; Cazorla et al., 2013; Russell et al., 2010) :

$$b_{\text{ext/scat/abs},\lambda_1} = b_{\text{ext/scat/abs},\lambda_2} \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_2} \right)^{-\text{EAE}_{\lambda_1,\lambda_2} / \text{SAE}_{\lambda_1,\lambda_2} / \text{AAE}_{\lambda_1,\lambda_2}} \quad \text{Equation 2}$$

Le CRI (m , $m = n + ik$) est un paramètre optique intrinsèque lié à la composition chimique des aérosols, où la partie réelle n définit les propriétés de diffusion et la partie imaginaire k définit les propriétés d'absorption (Bohren et Hufmann, 1998). Les variations spectrales de l'indice de réfraction se réfèrent aux changements des propriétés physiques et chimiques des aérosols en fonction de la longueur d'onde de la lumière incidente. Ces variations sont cruciales pour identifier les différents composants chimiques des particules (Schuster et al., 2019), cependant, la dépendance spectrale de k est encore mal connue à ce jour.

Sur la base de ces paramètres, de nombreuses méthodes de restitution de la composition chimique des aérosols ont été développées, telles que la méthode de l'espace SAE (Scattering Angstrom Exponent) vs AAE (Absorption Angstrom Exponent) (Cazorla et al., 2013; Russell et al., 2010; Schmeisser et al., 2017) et la méthode de taille k (Schuster et al., 2016; Xie et al., 2017; Zhang et al., 2018). La description et les avancées de ces deux méthodes sont détaillées ici :

(1) Méthode de l'espace SAE vs AAE : La valeur SAE est grande pour les petites particules (par rapport à la longueur d'onde) et vice versa. Le carbone suie (BC) et les composés organiques (OC) sont généralement considérés comme de petites particules, tandis que les aérosols minéraux désertiques (MD) et marins sont considérés comme de grosses particules. La valeur AAE est étroitement liée aux compositions chimiques des aérosols et à la taille des particules (Lack and Cappa, 2010; Moosmüller et al., 2009; Schuster et al., 2016). Le BC peut être distingué de l'OC et du MD en utilisant une valeur d'AAE autour de 1. En fixant des seuils appropriés dans l'espace SAE vs AAE, on peut identifier BC, l'OC, le MD et leurs mélanges.

Comme les auteurs ont ignoré les effets de la taille des particules sur l'AAE et ont utilisé différentes paires de longueurs d'onde, les seuils pour délimiter les types d'aérosols ne sont pas cohérents entre les études. Par exemple, Cazorla et al. (2013) ont fixé les seuils avec $AAE_{440/675nm} < 1$ et $SAE_{440/675nm} > 1,5$ pour les cas dominés par le BC, tandis que Cappa et al. (2016) ont identifié le BC avec $1 < AAE_{532/660nm} < 1,5$ et $SAE_{450/550nm} > 1,5$.

(2) Méthode de taille k : Cette méthode a été largement développée et utilisée pour restituer quantitativement les compositions chimiques des aérosols intégrées verticalement sur la colonne à l'aide d'observations par télédétection (Choi and Ghim, 2016; Li et al., 2019, 2015, 2013; Schmeisser et al., 2017; Wang et al., 2016). Les différences spectrales de k sont utilisées pour distinguer différentes espèces d'aérosols. Pour les aérosols absorbants, le BC est facilement distingué des autres espèces en raison de son absorption intense du spectre ultraviolet (UV) au visible avec une valeur extrêmement élevée de k. L'OC et le MD ont des propriétés d'absorption spectrales assez similaires avec une forte absorption dans la plage UV et une diminution de k avec l'augmentation de la longueur d'onde dans le spectre visible (Hoffer et al., 2006; Kirchstetter et al., 2004; Wagner et al., 2012). Des études antérieures ont supposé que l'OC était principalement observé dans la fraction fine, tandis que le MD était dominant dans les particules grossières, et la taille des particules d'aérosol (Schuster et al., 2016; Zhang et al., 2018) ou des paramètres liés à la taille des particules (comme la variation spectrale de l'Albédo de diffusion simple) ont été utilisés comme contraintes supplémentaires pour distinguer chaque espèce (Choi and Ghim, 2016; Li et al., 2013; Wang et al., 2013b). Cependant, bien que le MD soit le principal contributeur au mode grossier, il existe également dans le mode fin, et une fraction non négligeable de BC et d'OC se trouve encore dans le mode grossier (Hu et al., 2012a). Par conséquent, des optimisations supplémentaires, telles que l'inclusion de paramètres de contrainte supplémentaires et la vérification avec une composition chimique des aérosols mesurée simultanément, sont nécessaires pour améliorer la précision des algorithmes de récupération existants.

Étant donné que k est un paramètre intrinsèque, l'étude menée par Shuo Wang visait à améliorer la méthode de taille k en introduisant la densité effective des aérosols (ρ_e) en tant que paramètre de contrainte supplémentaire et à réaliser la validation avec des compositions chimiques d'aérosols mesurées in-situ. La ρ_e est un paramètre physique intrinsèque pour l'étude de l'état de mélange des aérosols, des processus atmosphériques et de l'identification des sources d'aérosols (Rissler et al., 2014; Zhai et al., 2017). Certaines études récentes (Liu et al., 2015; Pitz et al., 2008) ont étudié la corrélation entre la densité et les compositions chimiques et ont constaté que la densité peut être potentiellement utilisée comme indicateur de la composition chimique des aérosols. Étant donné que la densité de OC ($1,2 \text{ g cm}^{-3}$, (Rissler et al., 2014) est beaucoup plus faible que celle du MD ($2,6 \text{ g cm}^{-3}$, (Wagner et al., 2012), la méthode k- ρ_e peut identifier efficacement l'OC et MD même si la structure spectrale de leurs k sont similaires. Cette approche basée sur des mesures in situ permet également d'établir une correspondance entre les propriétés chimiques des aérosols mesurées et restituées. Étant donné que les valeurs de k et ρ_e pour différentes compositions chimiques d'aérosols varient beaucoup dans les études antérieures, des tests de sensibilités ont été également réalisés pour évaluer la différence causée par ces deux paramètres.

3.2.1 Description de la méthode

Dans cette étude, un code Mie a été utilisé pour estimer les valeurs réelles (n_{Mie}) et imaginaires (k_{Mie}) de l'indice de réfraction complexe à partir des mesures des coefficients d'extinction et de diffusion ainsi que de la distribution en taille des aérosols. Les comparaisons de b_{ext_mea} et b_{scat_mea} avec b_{ext_cal} et b_{scat_cal} en utilisant le CRI optimal montrent une forte corrélation (R^2 proche de 1). Par ailleurs, ρ_e est calculée en fusionnant les distributions en taille du nombre de particules provenant de deux instruments basés sur le diamètre aérodynamique (D_a) et de mobilité électrique (D_m) :

$$\rho_e = (D_a/D_m)^2 \quad \text{Equation 3}$$

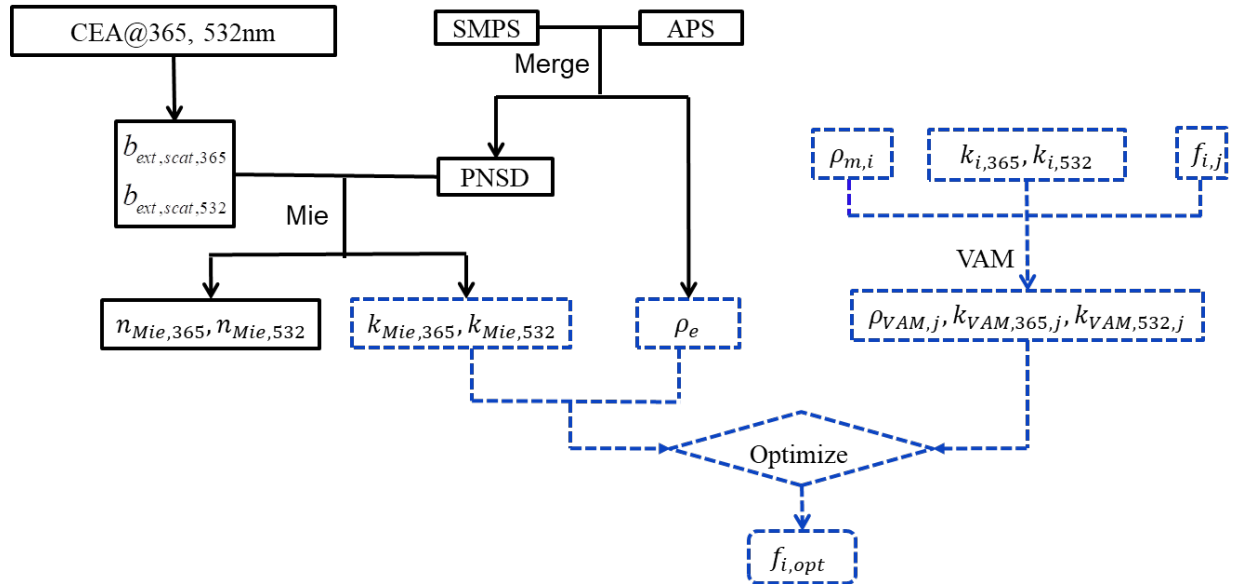


Figure 20 : Organigramme de la méthode k - ρ_e . La partie en noir solide : récupération de ρ_e en fusionnant les distributions en taille des aérosols (SMPS et APS), les mesures des coefficients de diffusion et d'extinction (CEA : Cavity Enhanced Albedometer) et estimation de $k_{Mie,365}$ et $k_{Mie,532}$ en utilisant la théorie de Mie. La partie en bleu en pointillés : recherche de la meilleure fraction volumique de chaque composant ($f_{i,opt}$) par optimisation de la fonction de mérite (Equation 4). La règle VAM (Volume Average Mixing, le mélange est considéré comme homogène dans tout le volume de la particule) a été utilisée pour calculer une table de correspondance pour les paramètres d'entrée $k_{VAM,365}$, $k_{VAM,532}$ et ρ_{VAM} .

L'originalité de la méthode développée et présentée en Figure 20 porte sur l'ajout de la densité des aérosols (ρ_e) pour récupérer les concentrations massiques de BC, OC, MD (Mineral Dust) et SNA (Sulfate Nitrate Ammonium). La fonction de mérite suivante est utilisée :

$$\delta_{fraction}^2 = \frac{(\rho_e - \rho_{VAM})^2}{\mathcal{E}_{\rho_e}^2} + \frac{(k_{Mie,365} - k_{VAM,365})^2}{\mathcal{E}_{k_{Mie,365}}^2} + \frac{(k_{Mie,532} - k_{VAM,532})^2}{\mathcal{E}_{k_{Mie,532}}^2} \quad \text{Equation 4}$$

où ρ_e , $k_{\text{Mie},365}$ et $k_{\text{Mie},532}$ sont déterminés expérimentalement et ε_{ρ_e} , $\varepsilon_{k_{\text{Mie},365}}$ et $\varepsilon_{k_{\text{Mie},532}}$ sont les incertitudes correspondantes estimées. ρ_{VAM} , $k_{\text{VAM},365}$ et $k_{\text{VAM},532}$ (Equation 6-Equation 8) sont les paramètres d'entrées calculés avec la règle de mélange volumique (VAM), et f est la fraction volumique de chaque constituant. Bien qu'il existe différentes règles de mélange pour le calcul des propriétés des aérosols, la règle VAM est la plus largement utilisée pour calculer à la fois ρ (DeCarlo et al., 2004; Kassianov et al., 2014) et k (Chylek et al., 2019; Ebert et al., 2004) pour les aérosols mélangés de manière interne. Selon Li et al. (2019), le modèle VAM devrait être privilégié en raison de sa simplicité d'utilisation et de résultats plus stables.

$$1 = f_{\text{BC}} + 1.6 \times f_{\text{OC}} + f_{\text{MD}} + f_{\text{SNA}}, \quad \text{Equation 5}$$

$$\rho_{\text{VAM}} = \rho_{\text{BC}} f_{\text{BC}} + 1.6 \rho_{\text{OC}} f_{\text{OC}} + \rho_{\text{SNA}} f_{\text{SNA}} + \rho_{\text{MD}} f_{\text{MD}}, \quad \text{Equation 6}$$

$$k_{\text{VAM},365} = k_{\text{BC},365} f_{\text{BC}} + k_{\text{OC},365} f_{\text{OC}} + k_{\text{MD},365} f_{\text{MD}}, \quad \text{Equation 7}$$

$$k_{\text{VAM},532} = k_{\text{BC},532} f_{\text{BC}} + k_{\text{OC},532} f_{\text{OC}} + k_{\text{MD},532} f_{\text{MD}}, \quad \text{Equation 8}$$

La fraction de la matière organique (OM) est estimée comme étant 1,6 fois l'OC (Xing et al., 2013). Les ρ , k_{365} et k_{532} pour chaque espèce et le rapport OM/OC utilisé dans cette étude sont donnés dans les tableaux 1 et 2. La fraction volumique de MD est la partie restante ($f_{\text{MD}} = 1 - f_{\text{BC}} - f_{\text{OM}} - f_{\text{SNA}}$).

Table 3 : Partie imaginaire de l'indice de réfraction (k) à deux longueurs d'onde (365 et 532 nm) et densités de différent type d'aérosols (BC, OC, MD, SNA – Sulfate Nitrate et Ammonium - et OM/OC) utilisées dans l'algorithme k - ρ de restitution de la composition des aérosols dans cette étude (valeurs de référence en gras), ainsi que les limites basses ("L") et hautes ("H").

Aerosol type	$k(365 \text{ nm})$	$k(532 \text{ nm})$	ρ (g cm^{-3})	References
BC	0.79	0.79	1.8(1.5^L, 2^H)	(Bond and Bergstrom, 2006; Cheng et al., 2008; Hand and Kreidenweis, 2002; Moteki et al., 2010)
	1.26^H	1.26^H		
	0.63^L	0.63^L		
OC	0.042	0.0179	1.2(1^L, 1.4^H)	(Cheng et al., 2008; Ebert et al.,

	0.148 ^H	0.03 ^H		2004; Kirchstetter et al., 2004; Liu et al., 2013; Schkolnik et al., 2007; Shamjad et al., 2016)
	0.008 ^L	0.002 ^L		
	0.014	0.006		
MD	0.0321 ^H	0.006 ^H	2.6(2.4 ^L , 2.8 ^H)	(Hu et al., 2012b; Kandler et al., 2007; Pio et al., 2014; Wagner et al., 2012)
	0.0125 ^L	0.003 ^L		
SNA	0	0	1.75(1.7 ^L , 1.8 ^H)	(Hand and Kreidenweis, 2002; Mallet et al., 2003; Michel Flores et al., 2012; Tang, 1996)
OM/OC	--	--	1.6(1.3 ^L , 2.16 ^H)	(Malm et al., 2011; Xing et al., 2013)

3.2.1 Résultats

La validation de l'algorithme a été réalisée à l'aide d'une série d'observations à Shouxian (Chine) du 30 novembre au 12 décembre 2016. Les fractions volumiques (f) de BC, OM, MD et SNA restituées à haute résolution temporelle (1 minute) à partir de la méthode k - ρ sont présentées Figure 21a. Les concentrations massiques correspondantes et leurs erreurs sont données Figure 21b-e. Les contributions de chaque composant pendant toute la campagne et lors de périodes spécifiques (P1, P2 et P3) sont présentées Figure 21f-i. Les contributions massiques estimées de BC, OM, MD et SNA pour toute la période d'observation étaient de 1,7 %, 28,8 %, 25,3 % et 44,2 % (Figure 21f), avec des incertitudes de 35,5 %, 38 %, 61,5 % et 54 % respectivement.

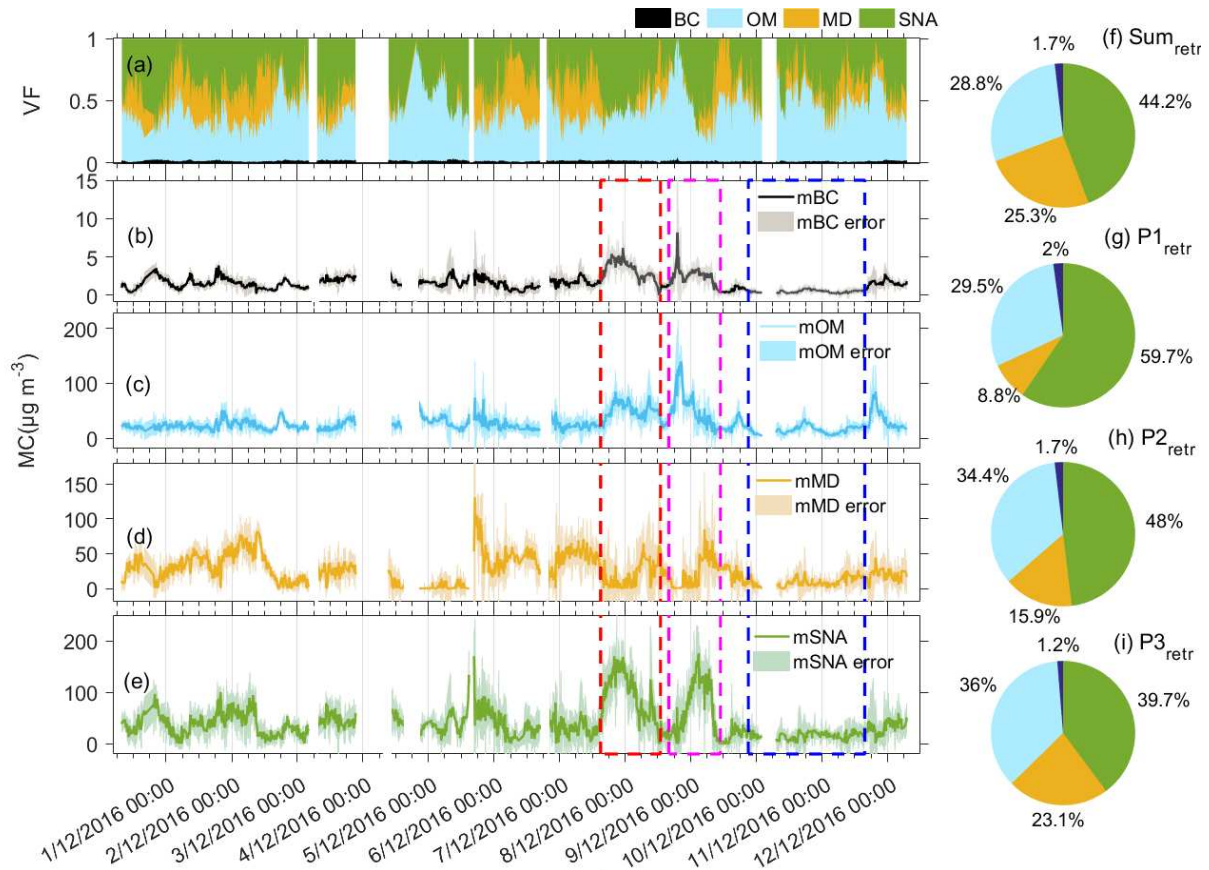


Figure 21. Fractions volumiques restituées (a) et concentrations massiques de (b) BC, (c) MO, (d) MD et (e) SNA. Fractions massiques moyennes de chaque composant chimique sur (f) tous les jours d'observation, (g) la période de pollution P1 (encadrée en rouge), (h) la période de pollution P2 (encadrée en rose), et (i) la période propre P3 (encadrée en bleu).

Au début de la période P1 (en rouge sur la Figure 21b-e), les concentrations en masse de BC, OM et SNA ont brusquement augmenté, en particulier la fraction de SNA, tandis que la concentration en masse de MD a diminué rapidement associée avec une diminution de la vitesse du vent. Les concentrations massiques moyennes étaient de 3.5, 52.4, 15.7 et 106.3 $\mu\text{g m}^{-3}$ pour BC, OM, MD et SNA respectivement. La fraction massique de SNA était la plus élevée, représentant 59,7 %. Les ratios massiques de BC, OM et MD étaient respectivement de 2 %, 29,5 % et 8,8 %. Leurs incertitudes moyennes étaient de 27 %, 32 %, 152 % et 34 % (BC, OM, MD et SNA respectivement) en raison de l'incertitude de ρ_e , $k_{\text{Mie},365}$ et $k_{\text{Mie},532}$, et l'incertitude élevée pour MD est liée à sa faible concentration massique.

Pendant la période P2 (en rose sur la Figure 21b-e), les concentrations massiques moyennes de BC, OM, MD et SNA étaient de 2,47, 50,3, 23,2 et 70,3 $\mu\text{g m}^{-3}$, avec des incertitudes respectives de 46 %, 36 %, 90 % et 49 %. SNA était le principal contributeur à la concentration massique totale (48 %), mais sa contribution était néanmoins plus faible que celle observée pendant la période P1. Au début de la période P2, BC et OM ont augmenté rapidement, mais les concentrations de SNA et de MD sont restées faibles. En effet, on peut observer une diminution spectaculaire de ρ_e ($< 1,2 \text{ g cm}^{-3}$) et une augmentation de $k_{\text{Mie},365}$ et $k_{\text{Mie},532}$ ($> 0,04$). Lors d'un changement de direction du vent vers le nord-ouest, la concentration de SNA a

augmenté rapidement tandis que celle d'OM a diminué. À la fin de la période P2, les concentrations de BC et de SNA ont brusquement diminué tandis que la concentration massique de MD a augmenté probablement du fait des vents forts venant de l'est.

Pendant la période P3 (en bleu sur la Figure 21b-e), les concentrations massiques moyennes de BC, OM, MD et SNA étaient respectivement de 0,46, 14,3, 9,2 et 15,8 $\mu\text{g m}^{-3}$, et les incertitudes moyennes correspondantes étaient de 59 %, 42 %, 103 % et 87 %. Les erreurs relatives sont plus élevées que celles calculées pendant les périodes P1 et P2 pour BC, OM, MD et SNA, principalement en raison des concentrations massiques bien plus faibles. Étant donné que la direction et la vitesse du vent étaient stables, la concentration massique de MD était également assez stable. Comparée aux périodes de pollution P1 et P2, la fraction massique de SNA a diminué à 39,7 %, tandis que celle de MD a augmenté à 23,1 %. Ainsi, MD représente une plus grande proportion pendant les jours non pollués, en accord avec une étude précédente (Hu et al., 2012a).

Pour vérifier la fiabilité de cette méthode k-pe, les concentrations massiques restituées sont ensuite comparées aux compositions chimiques des aérosols mesurées par analyse de filtres. Les concentrations massiques moyennes, somme de BC, OM, MD et SNA, issues de la récupération (Sum_{retr}) et de l'analyse des échantillons de filtres ($\text{Sum}_{\text{filter}}$) étaient respectivement de 98 ± 47 et $98 \pm 44 \mu\text{g m}^{-3}$. Les concentrations massiques moyennes récupérées de BC, OM, MD et SNA ($m_{\text{BC, retr}}$, $m_{\text{OM, retr}}$, $m_{\text{MD, retr}}$ et $m_{\text{SNA, retr}}$) étaient respectivement de $1,6 \pm 1,02$, 28 ± 17 , 25 ± 20 et $43 \pm 34 \mu\text{g m}^{-3}$, ce qui était très proche des observations ($1,9 \pm 0,9$, 27 ± 12 , 22 ± 15 et $44 \pm 23 \mu\text{g m}^{-3}$ pour $m_{\text{BC, filter}}$, $m_{\text{OM, filter}}$, $m_{\text{MD, filter}}$ et $m_{\text{SNA, filter}}$ respectivement).

Pour vérifier davantage l'algorithme de restitution de la composition chimique des aérosols, les valeurs moyennes et les écarts-types des concentrations massiques restituées ont été calculées sur la période d'échantillonnage (11,5 heures) des filtres prélevés et analysés durant la période de mesures. La comparaison et la régression linéaire des concentrations massiques des aérosols mesurées et récupérées pour la somme de toutes les espèces ainsi que pour chaque espèce séparément (BC, OM, MD et SNA) sont présentées Figure 22a-j.

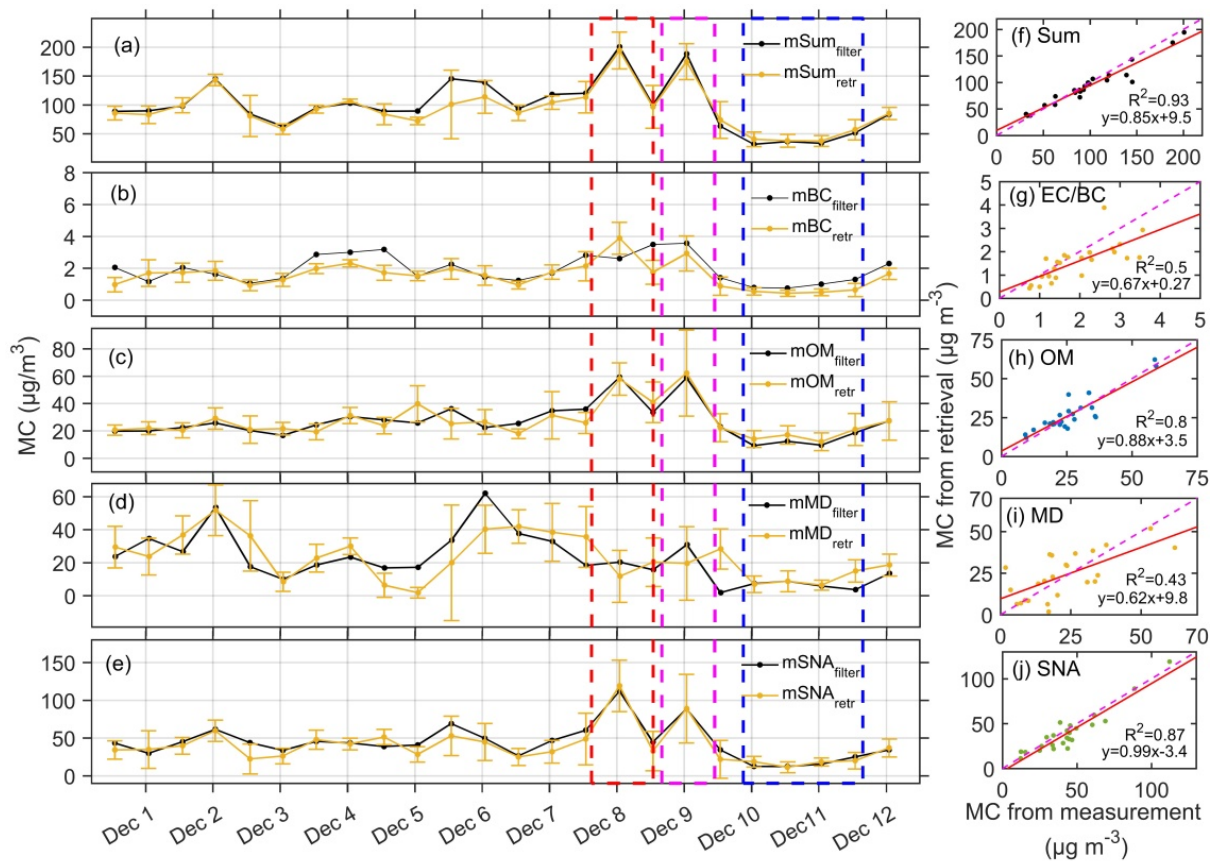


Figure 22 : Comparaison et régression linéaire entre les concentrations massiques mesurées par analyse de filtres et les concentrations massiques restituées (Figure 21) à Shouxian en décembre 2016. (a,f) : la concentration massique totale (somme des concentrations de BC, OM, MD et SNA) mesurée (mSum_{filter}) et restituée (mSum_{retr}) ; (b,g) : la concentration massique de Black Carbon (BC, mBC_{filter} et mBC_{retr}) ; (c,h) : la concentration massique des organiques (mOM_{filter} et mOM_{retr}) ; (d,i) : la concentration massique des poussières minérales (mMD_{filter} et mMD_{retr}) ; (e,j) : la concentration massique du sulfate, nitrate et ammonium (mSNA_{filter} et mSNA_{retr}). Les lignes rouges continues représentent les résultats de l'ajustement linéaire, et les lignes magenta en pointillés représentent les lignes de rapport 1:1.

Les concentrations massiques totales restituées et mesurées sont en assez bon accord avec $R^2 = 0,93$ et une pente de 0,85. En général, les concentrations massiques mesurées sont légèrement plus élevées que celles restituées par l'algorithme, en particulier les 5 et 6 décembre. La différence peut être due à la captation d'eau par les aérosols pendant l'analyse. En effet, même avec une humidité relative faible dans la salle de pesée, une grande quantité d'eau est encore présente sur le filtre, en particulier sur les espèces inorganiques hydrophiles (Sciare et al., 2005; Speer et al., 2003). Les concentrations massiques de BC (mBC) sont également globalement cohérentes, sauf le 8 décembre, avec $R^2 = 0,50$ et une pente de 0,67 (Figure 22b, g). mOM_{retr} et mOM_{filter} étaient bien en accord avec $R^2 = 0,80$ et une pente de 0,88 (Figure 22c, h).

Les concentrations de poussières désertiques (mMD_{retr} et mMD_{filter}) montrent une moindre concordance par rapport aux trois autres espèces, notamment pendant la période du 5 au 6 décembre. La corrélation linéaire pour les concentrations en MD était modérée, avec une valeur de R^2 de 0,43 et une pente de 0,62 (Figure 22d, i). Étant donné que la concentration en MD est calculée à partir de la différence entre la concentration en masse totale et celle de quelques

espèces (BC, OM et SNA), elle peut également inclure des sels marins, des métaux et d'autres composés non spécifiés par l'analyse des filtres. En revanche, les valeurs de m_{SNAretr} et $m_{\text{SNAfilter}}$ étaient assez cohérentes ($R^2 = 0,87$, pente = 0,99, Figure 22e, j) pour les périodes de pollution P1 et P2 ainsi que lors de la période P3 caractérisée par de bas niveaux de concentration, ce qui indique que la méthode n'est pas limitée par les niveaux de pollution. Cette comparaison permet de démontrer l'application appropriée de l'algorithme pour la restitution de la composition chimique des aérosols avec une résolution temporelle élevée (1 minute).

L'étude de sensibilité (Wang et al., 2021) montre une grande sensibilité de la restitution des fractions massiques et donc des concentrations au choix de k_{OC} probablement en raison des valeurs seuils permises dans le cadre de cette étude (Table 3). Une meilleure contrainte sur l'indice de réfraction complexe des aérosols, en particulier pour l'OC, permettra donc de réduire les incertitudes sur la restitution des concentrations liées aux données d'entrées.

A travers cette étude, nous avons amélioré la méthode de restitution de la composition chimique des aérosols en combinant la densité effective et les valeurs de la partie imaginaire de l'indice de réfraction complexe (k) à deux longueurs d'onde (365 et 532 nm). Ces deux paramètres intrinsèques optiques et physiques fournissent les caractéristiques nécessaires pour distinguer les trois principaux types d'aérosols absorbants. Les fractions volumiques et les concentrations massiques de BC, OC, MD et SNA ont été restituées à partir des mesures in-situ la distribution en taille des aérosols, et des coefficients d'extinction et de diffusion ($b_{\text{ext,scat},365}$ et $b_{\text{ext,scat},532}$) avec une haute résolution temporelle. La méthode k - ρ n'est pas limitée à la paire de longueurs d'onde utilisée dans cette étude et n'importe quelle paire de longueurs d'onde utiles pour distinguer l'OC du MD peut être utilisée. La méthode fournit un outil fiable pour surveiller les événements de pollution, identifier les sources d'aérosols. En réduisant les incertitudes des mesures in-situ, en améliorant la précision des valeurs de ρ et de k de chaque composant chimique, et en tenant compte de la morphologie et de l'état de mélange des aérosols, la précision de la restitution peut être encore améliorée. Des observations de terrain à long terme et complètes dans différents endroits sont recommandées pour valider davantage l'applicabilité de ce nouvel algorithme.

3.3 Coefficients d'efficacité massique (Velazquez-Garcia et al., 2023)

Parmi les nombreux paramètres physiques et optiques qui caractérisent les propriétés des aérosols, les efficacités massiques dépendantes de la composition sont les plus importantes pour établir des liens avec les modèles de rayonnement (Seinfeld and Pandis, 2016).

Le coefficient d'efficacité massique relatif à l'extinction (MEE), l'absorption (MAE) et la diffusion (MSE) des aérosols et la contribution de chaque espèce peuvent être évaluées à l'aide du modèle de mélange moyen en volume (VAM) et des valeurs a priori MEE, MAE et MSE pour différentes espèces (Hand and Malm, 2007). La MEE/MAE/MSE peut être dérivée théoriquement (basé sur un calcul de Mie, Cheng et al., 2008) ou expérimentalement (Wang et al., 2015) pour chaque composé chimique. Ces méthodes ont été proposées à l'origine dans le cadre du programme IMPROVE⁷, appliqué à des mesures de long terme effectuées dans des parcs nationaux américains (Pitchford et al., 2007). Par la suite, la méthode IMPROVE (Equation 9) a été appliquée aux aérosols mesurés dans d'autres régions du monde, notamment en Chine (Tao et al., 2020; Wang et al., 2015; Yao et al., 2010; Zhou et al., 2019). Plusieurs études ont utilisé cette méthode en Europe, principalement sur des sites du sud de l'Europe (Italie, Espagne et Grèce) et dans les fractions PM₁₀ et PM_{2.5} (Sciare et al., 2005; Titos et al., 2012; Valentini et al., 2018).

$$\sigma_{ext,\lambda} = \sum_j MEE_{j,\lambda} \times f(RH)_j \times C_j + RS_\lambda + \sigma_{NO_2,\lambda} \quad \text{Equation 9}$$

Néanmoins, ces paramètres varient en fonction du site, de la saison mais aussi de la méthode de dérivation utilisée. Les estimations précises de ces paramètres améliorent considérablement les estimations du rôle des différents composés des aérosols sur la visibilité ou sur la santé des populations, ce qui est particulièrement pertinent pour les endroits identifiés comme pollués. Dans cette section, les mesures in situ coïncidentes sont combinées pour évaluer ces paramètres dans un milieu urbain pollué (Lille). En effet, le nord de la France souffre d'importants épisodes de pollution particulaire, résultant de la combinaison de zones urbaines fortement peuplées, d'émissions industrielles/agricoles/de transport maritime et du transport de panaches atmosphériques pollués provenant du Royaume-Uni, de la Belgique, de l'Allemagne et de l'Europe de l'Est (Roig Rodelas et al., 2019; Waked et al., 2018). Trois années de mesures in situ des aérosols submicroniques (PM₁) sur le site d'ATOLL ont été utilisées pour dériver des efficacités massiques de diffusion (MSE), d'absorption (MAE) et d'extinction (MEE) pour chaque type d'aérosol et à différentes longueurs d'onde. Ainsi, la contribution de chacune des principales espèces, en dehors des espèces réfractaires (poussières désertiques ou sels marins de manière générale peu présentes dans la fraction PM₁), sur les propriétés optiques des aérosols mesurés dans la région a pu être évaluée.

Tout d'abord, afin de mettre en évidence la variabilité de ces coefficients d'un site à l'autre, nous avons utilisé les MEEs répertoriées dans la littérature pour des sites suburbains et urbains et nous les avons utilisés pour estimer le coefficient d'extinction sur 3 ans de mesures à ATOLL. Les résultats mettent en évidence une forte sur- ou sous-estimation du coefficient

⁷ Interagency Monitoring of Protected Visual Environments

d'extinction à 525 nm en fonction de la référence bibliographique utilisée. Par exemple, lorsque l'on utilise la MEE dérivée des mesures d'une mégapole chinoise (Cheng et al., 2008), l'extinction reconstituée sur ATOLL peut être surestimée de 74 %.

Il est donc essentiel pour mener cette étude d'utiliser des coefficients (MEE, MSE, MAE) dérivés directement des mesures du site en question. Pour cela, nous utilisons trois années de mesures de surface pour dériver la MEE à différentes longueurs d'onde en fonction de la composition par le biais d'une régression linéaire multiple (MLR) et de la méthode des moindres carrés. Les propriétés optiques mesurées (σ_{scat} , σ_{abs}) sont considérées comme des variables indépendantes, et les concentrations massiques des espèces (C_j) comme variables dépendantes. Les coefficients ont été contraints à être positifs pour conserver leur signification physique, et l'ordonnée à l'origine a été fixée à zéro pour obliger les espèces PM_{10} à expliquer les variations de la diffusion et de l'absorption.

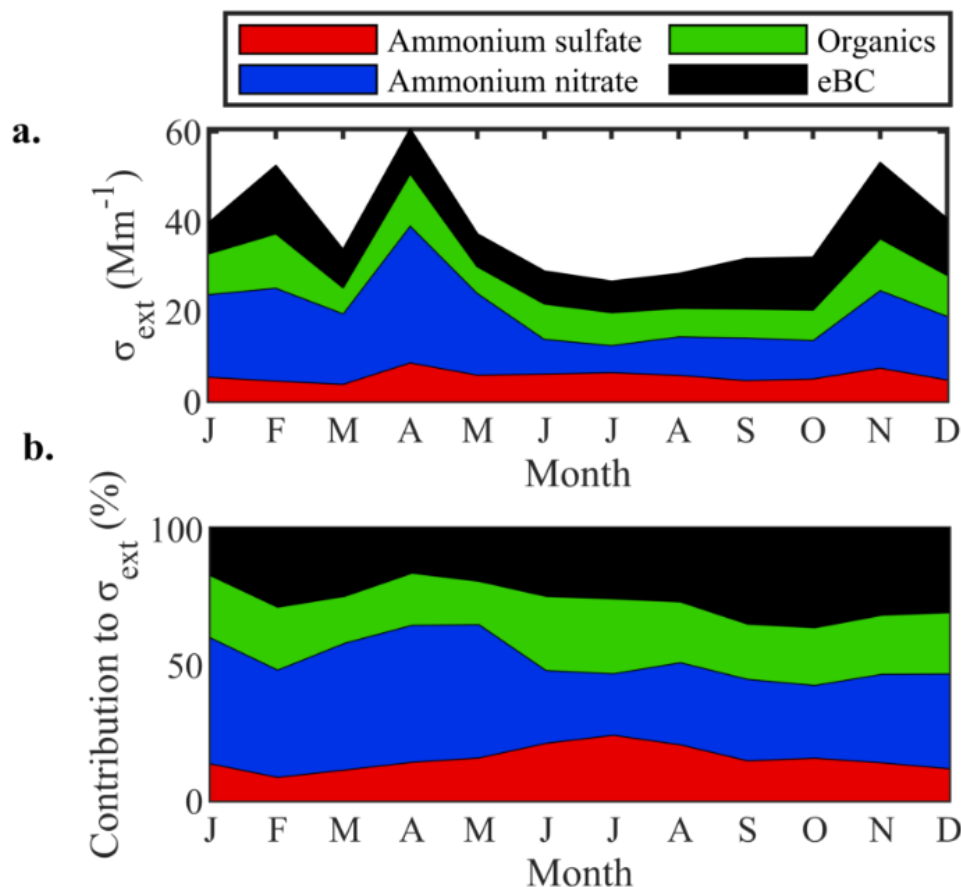


Figure 23 : Contribution des principales espèces d'aérosols au coefficient d'extinction mesuré à ATOLL sur la période juillet 2017 - déc. 2019. a) Variation moyenne mensuelle du coefficient d'extinction de la lumière à 525 nm (en Mm^{-1}) pour chaque espèce considérée. b) Contributions relatives moyennes mensuelles de chaque espèce au coefficient d'extinction de la lumière à 525 nm.

L'analyse pluriannuelle pour ATOLL (Figure 24) met en évidence que l'AN (Ammonium Nitrate) est l'espèce contribuant le plus (35%) au coefficient d'extinction à 525 nm, suivie par les espèces d'aérosols carbonés (eBC 29%, Org 21%) et AS (Ammonium Sulfate, 15%). L'extinction s'avère être généralement plus élevée en hiver, fortement liée à la combustion de

combustibles solides pour le chauffage résidentiel. En ce qui concerne l'absorption à 370 nm, les organiques sont responsables de 22% de l'absorption de la lumière, ce qui met en évidence une contribution significative du carbone brun dans la région (Velazquez-Garcia et al., 2023). La diffusion à 525 nm est dominée par l'AN (44 %) et les matières organiques (33 %), des espèces liées à la mauvaise qualité de l'air dans les environnements urbains pollués (Cheng et al., 2014; Sciare et al., 2005; Titos et al., 2012). Au printemps, les activités agricoles combinées aux émissions du trafic (NO_x) conduisent à une forte formation de AN.

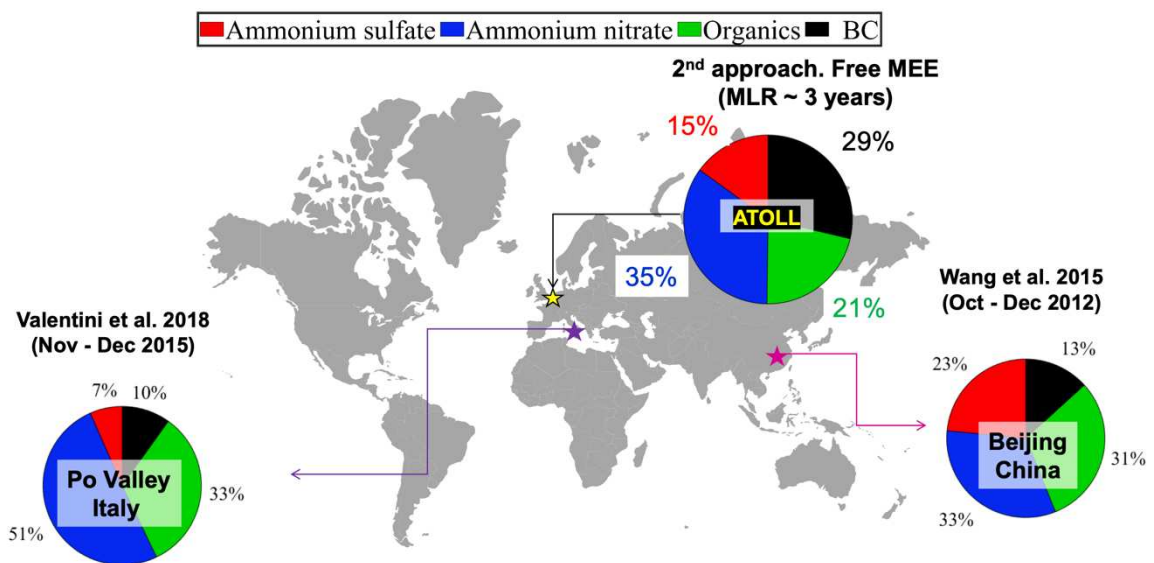


Figure 24 : Comparaison des contributions du sulfate d’ammonium (rouge) du nitrate d’ammonium(bleu) des organiques (vert) et du BC (noir) sur 3 site pollués (ATOLL- Lille en France, Pekin en Chine et la vallée du Pau en Italie).

3.4 Conclusions

Ce chapitre met en évidence la nécessité d'une connaissance précise des propriétés physiques, chimiques et optiques des particules d'aérosols, essentielle pour réduire les incertitudes actuelles liées à leur restitution à partir de mesures optiques embarquées. Dans cette étude, nous avons combiné des mesures in situ des propriétés optique, chimique et physique des aérosols afin de (i) déterminer l'origine des incertitudes liées à l'utilisation des mesures de télédétection intégrées sur la colonne pour estimer les concentrations massiques en surface, (ii) améliorer les algorithmes de restitution de la composition chimique des aérosols et (iii) d'estimer les coefficients d'efficacité optique des différents types d'aérosols. Les perspectives de ce travail sont encore nombreuses avec en particulier (1) l'installation d'un néphélomètre à humidité variable sur ATOLL depuis début 2023 afin de mesurer le $f(RH)$ pendant au moins une année, (2) une meilleure compréhension de l'origine des aérosols carbonés et principalement du carbone suie (BC, Figure 24).

Dans le cadre d'une collaboration, financée par l'université de Lille, avec l'Institut des Fondements des Processus Chimiques de l'Académie des Sciences de la République Tchèque à Prague (ICPF CAS), un néphélomètre à humidité variable a été installé sur ATOLL. Étant donné que les mesures $f(RH)$ sont rares dans le monde entier, ce projet constitue une opportunité unique d'augmenter le nombre de néphélomètres humidifiés au sein du réseau et ainsi contribuer à une meilleure compréhension du comportement hygroscopique des aérosols dans l'atmosphère. Cette collaboration a commencé par l'accueil d'une étudiante en thèse (L. Suchankova) Tchèque au LOA courant 2023. Ces premiers travaux ont permis de mettre en évidence une tendance à la baisse du coefficient de diffusion dans le PM_{10} sur les 5 dernières années en lien avec une modification des propriétés chimiques des aérosols mais aussi une tendance à la hausse de la concentration en nombre de PUF (Suchankova et al., to be submitted). Suites à des problèmes techniques importants, l'analyse des mesures du $f(RH)$ a pris un peu de retard. Néanmoins, le système est maintenant opérationnel. Les résultats obtenus dans la section 3.1 seront alors répliqués afin de déterminer sur ATOLL le lien entre l'AOD et la concentration en $PM_{2.5}$ mesurée en surface. Ces résultats pourront alors être comparés avec les résultats de la thèse de M. Dabrowski dirigé par J. Riedi au LOA dont les objectifs sont d'utiliser l'Intelligence Artificielle (IA) pour estimer les concentrations de $PM_{2.5}$ en surface à partir de mesures satellitaires.

D'autre part, la comparaison des résultats obtenus sur ATOLL avec d'autres études utilisant des méthodes très similaires sur sites pollués montre l'importance des aérosols carbonés et principalement du carbone suie (BC, Figure 24). En effet, la contribution du BC à l'extinction est de 29% sur Lille alors sur les autres sites elle est limitée à 13% à Pékin (Wang et al., 2015) et 10% dans la vallée du Pau (Valentini et al., 2018). Afin de mieux comprendre l'origine du carbone suie observé sur ATOLL, un nouvel outil (INTERPLAY) a été développé dans le cadre de la thèse d'A. Velazquez Garcia (Velazquez-Garcia et al., 2024). Cette méthode intègre des mesures in situ aérosols (ATOLL), avec des trajectoires de masse d'air et un inventaire des émissions. Appliquée au Carbone Noir (BC), la méthode a permis d'attribuer les contributions des sources (navigation, véhicules, chauffage résidentiel, industrie) et étudié les effets du vieillissement des aérosols, notamment sur le composant Carbone Brun (BrC). Les résultats montrent que tout au long de l'année, la circulation automobile dominait le BC (31%), suivi par la

navigation (25%, dont un tiers provenait de canaux/rivières) puis le chauffage résidentiel (21%). Les résultats soulignent que le BC du "secteur résidentiel" peut être entièrement attribué au BC provenant de la combustion du bois (BC_{wb}), notamment en hiver. Tandis que la circulation automobile correspond à seulement environ 41% du carburant fossile BC (BC_{ff}) sur le site ATOLL, le reste étant attribué aux émissions de navigation (33%) et industrielles (23%). Ainsi, la circulation automobile et le BC_{ff} ne devraient pas être utilisés de manière interchangeable, en particulier dans les régions proches d'une intense circulation maritime. La forte contribution du trafic maritime estimée via INTERPLAY nécessite une confirmation par des mesures de métaux lourds tel que le vanadium (traceur du fuel) sur la station. L'installation d'instruments dédiés au vanadium, pour une durée limitée, est prévue dans les 2 ou 3 prochaines années.

Il faut souligner ici l'importance de reproduire des études similaires dans différentes régions caractérisées par une grande variété de sources d'aérosols et de conditions météorologiques. Ensemble, toutes ces études permettront une meilleure compréhension de la capacité des futures restitutions par télédétection à quantifier la concentration massique, la composition chimique ou l'impact radiatif des aérosols en surface à l'échelle mondiale ou régionale.

CHAPITRE 4 Conclusions générales

Au cours de mon parcours de recherche, j'ai eu l'opportunité de superviser un nombre important d'étudiants à différents niveaux. J'ai encadré avec enthousiasme des étudiants de licence (12), de master (5) et de doctorat (6), contribuant ainsi à leur formation académique et à leur développement scientifique. Parallèlement à l'encadrement des étudiants, j'ai eu le privilège de collaborer étroitement avec plusieurs laboratoires de renom (NASA, CSIRO, Univ. Lund, Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics - Hefei, China- LaMP, PC2A, LASIRE, LPCA, IRCICA, CRISTAL⁸, etc...) . Ces collaborations se sont traduites par des échanges fructueux et une complémentarité des expertises. Les partenariats avec ces laboratoires ont été bénéfiques pour le partage des connaissances, l'accès à des équipements de pointe et la réalisation de recherches multidisciplinaires. Ces collaborations ont également ouvert de nouvelles perspectives de recherche et ont renforcé la qualité et l'impact de mes travaux. Les nombreuses expériences d'encadrement et de collaboration ont contribué à ma croissance académique et ont enrichi ma vision de la recherche. Je suis reconnaissante envers tous les étudiants et les collaborateurs qui ont participé à cette aventure scientifique, et je suis convaincu que ces expériences continueront d'influencer positivement mes futurs travaux de recherche.

Bien qu'il soit difficile de tirer des conclusions impartiales sur ses propres travaux de recherche et d'évaluer sa contribution personnelle dans une recherche collective impliquant de nombreux collègues et étudiants, il est néanmoins possible de mettre en évidence les principales contributions de ces différents groupes de recherche sur le cycle de vie des aérosols jusqu'à présent. Ces contributions comprennent la mise en évidence des conditions favorables à la formation de nouvelles particules notamment en milieu urbain, les interactions des aérosols avec la vapeur d'eau et nos travaux sur le lien entre leur propriétés optiques et chimiques.

Les villes et leurs citoyens font face à des problèmes critiques découlant de la croissance de l'industrie et des régions urbaines. Comme le souligne l'OMS ("Air quality guidelines global update 2006.," n.d.), cette croissance représente l'un des risques pour la santé environnementale les plus importants et reste l'une des principales causes de mortalité. Plus précisément, la pollution de l'air se distingue comme un contributeur principal de divers problèmes de santé, notamment le cancer du poumon et l'asthme bronchique (Cohen et al., 2017; Hu et al., 2023; Mikati et al., 2018) mais aussi de problèmes environnementaux (Manisalidis et al., 2020). Les polluants particuliers observés dans les zones urbaines, sont enrichies en métaux dangereux et en composés organiques (Zhang et al., 2020) pouvant induire un stress oxydatif supplémentaire (Terzano et al., 2010). Cette pollution met non seulement en danger la santé immédiate, mais compromet également la durabilité à long terme des environnements de vie urbains.

Les perspectives à long terme de mes travaux de recherche portent sur une meilleure caractérisation et prévision de la pollution, et notamment des polluants particuliers, en milieu

⁸ Centre de Recherche en Informatique, Signal, et Automatique de Lille

urbain. Pour atteindre ces objectifs il faut développer les outils d'observations et densifier les réseaux déjà existants mais aussi développer des outils pour utiliser ces mesures afin de prévoir les événements de pic de pollution. En collaboration avec le PC2A, nous travaillons sur la miniaturisation des instruments de références afin de densifier les réseaux existants avec des instruments à bas cout et de permettre d'estimer l'exposition individuelle des personnes. En effet, depuis 2017, je suis impliquée dans la fabrication et le déploiement de mini capteurs pour la mesure de la concentration massique des particules (PM₁, PM_{2.5} et PM₁₀). Cette nouvelle thématique a permis de mettre en évidence les niveaux de pollution importants dans le métro Lillois (Crumeyrolle et al., 2018). Une interface, dédiée aux volontaires et/ou aux chercheurs, de traitement des données est en cours de développement chez AERIS/ICARE et pourra être utilisée nationalement car adaptable à tous types de capteurs (projet AERIS/CASPA). A l'heure actuelle, les micro capteurs sont déployés auprès de volontaires de la métropole lilloise pour déterminer leurs expositions individuelles aux particules mais aussi aux rayonnements Ultra-Violet via le projet EPOUV (LEFE 2023 porté par F. Minvielle), via le projet PAMELA porté par L. Dauchet (médecin épidémiologiste) et financé par l'ISITE et via le projet ANR2023 MOBICARD porté par S. Gabet (IMPECS⁹). Les objectifs de ces projets sont d'estimer l'exposition à des polluants (particulaires, UV et gazeux), d'alerter les personnes sur leurs habitudes au quotidien et de faire le lien avec l'état de santé des volontaires (questionnaire et/ou mesure de la capacité respiratoire, analyse sanguine et urinaire).

En collaboration avec CRISTAL (INRIA) et dans le cadre de la thèse de **M. Rahmani**, la méthode PMFORECAST basée sur de l'intelligence artificielle et des réseaux de neurones est développée pour prédire les concentrations en polluants particulaires (PM₁₀, PM_{2.5} et PM₁). Les méthodes prédictives statistiques reposent sur une approche de modélisation pour prédire la qualité de l'air dans le futur en se basant sur des séries temporelles passées d'observations. Contrairement aux méthodes de prévision physiques, les approches statistiques impliquent moins de calcul, car elles contournent les mécanismes complexes d'émission, de diffusion, de vieillissement et de dépôt des polluants. Malgré les progrès notables (Abimannan et al., 2020; Tsai et al., 2018; Yuan and Yang, 2023), la précision des prédictions dépend fortement de la qualité et de la représentativité des données séquentielles, avec des ensembles de données incomplets ou biaisés, compromettant potentiellement les performances du modèle. Par ailleurs, le déploiement de tels modèles à grande échelle nécessite des considérations soigneuses en matière d'efficacité computationnelle et de traitement en ligne, notamment dans les zones urbaines où un volume important de données pourrait être généré et collecté. En réponse à ces défis, un modèle de prévision LSTM (Long and Short Term Memory) temporel (PMFORECAST) a été conçu (Rahmani et al., 2024). En plus de tirer parti des forces de l'architecture LSTM standard, notre modèle capture habilement les dépendances temporelles et intègre des mécanismes pour adresser les problèmes de qualité des données, améliorant ainsi la précision des prévisions. De plus, le mécanisme temporel intégré dans notre modèle contribue à une prévision robuste et durable à long terme. Cette étude se poursuit actuellement afin de développer ce modèle pour prendre en compte l'interaction de divers ensembles de données (réseau de stations de mesure), visant à une compréhension plus complète de l'évolution de la qualité de l'air. Un aspect notable de ce modèle porte aussi sur l'utilisation de données issues capteurs bas cout localement disponibles

⁹ IMPECS : IMPact de l'Environnement Chimique sur la Santé

provenant de dispositifs existants. Cette approche enrichit non seulement l'adaptabilité du modèle mais améliore également son accessibilité tout en réduisant à la fois le temps et la consommation d'énergie. Ces résultats pourront alors être comparés avec les résultats de la thèse de M. Dabrowski dirigée par J. Riedi au LOA dont les objectifs sont d'étudier les possibilités offertes par différentes architectures d'IA pour estimer les concentrations de PM_{2.5} en surface à partir de mesures satellitaires d'épaisseur optique et de champs météorologiques de base (Pression, Humidité et Vent).

Afin de réduire la pollution de l'air extérieur, notamment dans les zones urbaines, les politiques publiques encouragent le passage des transports routiers motorisés à d'autres modes de transport moins polluants, notamment le transport ferroviaire. En collaboration avec le PC2A et dans le cadre de la thèse de V. **Rakotonirinjanahary**, la qualité de l'air dans les Enceintes Ferroviaire Souterraine (EFS) sur une longue période de temps (depuis 2018) est analysée. En effet, la qualité de l'air dans les EFS pose un problème de santé publique significatif en raison de concentrations extrêmement élevées et la nature chimique (métaux lourds) des particules en suspension (PM₁₀ et PM_{2.5}). Bien que les passagers passent seulement de brèves périodes de temps (environ entre 5 et 15 minutes) dans ces stations, une exposition à court terme à des niveaux élevés de polluants particuliers peut entraîner diverses conséquences néfastes pour la santé (Thangavel et al., 2022). Malgré de nombreuses campagnes de mesures dans les EFS situées dans différents pays, la variabilité de ces concentrations d'une station à l'autre est encore mal comprise (Barmpareos et al., 2016). En se basant sur ce jeu de données exceptionnel (fourni par la SNCF), une méthodologie a été développée pour établir un profil de référence des concentrations en masse des particules (Rakotonirinjanahary et al., To be submitted). Cette méthodologie fournit trois résultats exploitables : un profil typique pour les jours de semaine, un profil typique pour les week-ends, et un coefficient d'amplitude de concentration de PM quotidien pour la période considérée. De plus, notre analyse révèle l'évolution temporelle à long terme de la concentration de PM dans les EFS, mettant en évidence des tendances saisonnières (inverses à celles observées en air extérieur) avec des valeurs plus élevées observées en été et des valeurs plus basses en hiver. Cette méthodologie sera par la suite adoptée pour estimer l'efficacité des systèmes de filtration mis en place pour quelques mois dans plusieurs EFS de la SNCF en 2019, 2020 et 2024. Par la suite, l'utilisation du modèle PMFORECAST, ou d'une version plus adaptée à l'air intérieur, est envisagée sur ce jeu de données pour évaluer la pertinence de l'IA pour étudier la qualité de l'air en milieu confiné et pollué.

CHAPITRE 5 Références

Abimannan, S., Chang, Y.-S., Lin, C.-Y., 2020. Air Pollution Forecasting Using LSTM-Multivariate Regression Model, in: Hsu, C.-H., Kallel, S., Lan, K.-C., Zheng, Z. (Eds.), *Internet of Vehicles. Technologies and Services Toward Smart Cities*, Lecture Notes in Computer Science. Springer International Publishing, Cham, pp. 318–326. https://doi.org/10.1007/978-3-030-38651-1_25

Air quality guidelines global update 2006. [WWW Document], n.d. URL <https://www.who.int/publications-detail-redirect/WHO-SDE-PHE-OEH-06.02> (accessed 3.6.24).

Albrecht, B.A., 1989. Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science* 245, 1227–1230. <https://doi.org/10.1126/science.245.4923.1227>

Al-Saadi, J., Soja, A., Bradley, R., Szykman, J., Wiedinmyer, C., Emmons, L., Kondragunta, S., Zhang, X., Kittaka, C., Schaack, T., Bowman, K., 2008. Intercomparison of near-real-time biomass burning emissions estimates constrained by satellite fire data. *J. Appl. Remote Sens.* 2. <https://doi.org/10.1117/1.2948785>

Andrejczuk, M., Grabowski, W.W., Reisner, J., Gadian, A., 2010. Cloud-aerosol interactions for boundary layer stratocumulus in the Lagrangian Cloud Model. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 115.

Arends, B.G., Baard, J.H., Ten Brink, H.M., 1997. Trends in summer sulphate in Europe. *Atmos. Environ.* 31, 4063–4072. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(97\)00283-5](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(97)00283-5)

Arola, A., Schuster, G., Myhre, G., Kazadzis, S., Dey, S., Tripathi, S.N., 2011. Inferring absorbing organic carbon content from AERONET data. *Atmospheric Chem. Phys.* 11, 215–225.

Augustin, P., Billet, S., Crumeyrolle, S., Deboudt, K., Dieudonné, E., Flament, P., Fourmentin, M., Guilbaud, S., Hanoune, B., Landkocz, Y., Méausoone, C., Roy, S., Schmitt, F.G., Sentchev, A., Sokolov, A., 2020. Impact of Sea Breeze Dynamics on Atmospheric Pollutants and Their Toxicity in Industrial and Urban Coastal Environments. *Remote Sens.* 12, 648. <https://doi.org/10.3390/rs12040648>

Aulinger, A., Matthias, V., Zeretzke, M., Bieser, J., Quante, M., Backes, A., 2016. The impact of shipping emissions on air pollution in the greater North Sea region – Part 1: Current emissions and concentrations. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 739–758. <https://doi.org/10.5194/acp-16-739-2016>

Baklanov, A., Lawrence, M., Pandis, S., Mahura, A., Finardi, S., Moussiopoulos, N., Beekmann, M., Laj, P., Gomes, L., Jaffrezo, J.-L., Borbon, A., Coll, I., Gros, V., Sciare, J., Kukkonen, J., Galmarini, S., Giorgi, F., Grimmond, S., Esau, I., Stohl, A., Denby, B., Wagner, T., Butler, T., Baltensperger, U., Bultjes, P., van den Hout, D., van der Gon, H.D., Collins, B., Schlunzen, H., Kulmala, M., Zilitinkevich, S., Sokhi, R., Friedrich, R., Theloke, J., Kummer, U., Jalkanen, L., Halenka, T., Wiedensholer, A., Pyle, J., Rossow, W.B., 2010. MEGAPOLI: concept of multi-scale modelling of megacity impact on air quality and climate, in: *Advances in Science and Research*. Presented at the 9th EMS Annual Meeting and 9th European Conference on Applications of Meteorology 2009 -, Copernicus GmbH, pp. 115–120. <https://doi.org/10.5194/asr-4-115-2010>

Barmmparesos, N., Assimakopoulos, V.D., Assimakopoulos, M.N., Tsairidi, E., Barmmparesos, N., Assimakopoulos, V.D., Assimakopoulos, M.N., Tsairidi, E., 2016. Particulate matter levels and comfort conditions in the trains and platforms of the Athens underground metro. *AIMS Environ. Sci.* 3, 199–219. <https://doi.org/10.3934/environsci.2016.2.199>

Barth, M.C., Rutledge, S.A., Brune, W.H., Cantrell, C.A., 2019. Introduction to the Deep Convective Clouds and Chemistry (DC3) 2012 Studies. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 124, 8095–8103. <https://doi.org/10.1029/2019JD030944>

Bellouin, N., Rae, J., Jones, A., Johnson, C., Haywood, J., Boucher, O., 2011. Aerosol forcing in the Climate Model Intercomparison Project (CMIP5) simulations by HadGEM2-ES and the role of ammonium nitrate. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 116. <https://doi.org/10.1029/2011JD016074>

Benas, N., Solodovnik, I., Stengel, M., Hüser, I., Karlsson, K.-G., Håkansson, N., Johansson, E., Eliasson, S., Schröder, M., Hollmann, R., Meirink, J.F., 2023. CLAAS-3: the third edition of the CM SAF cloud data record based on SEVIRI observations. *Earth Syst. Sci. Data* 15, 5153–5170. <https://doi.org/10.5194/essd-15-5153-2023>

Berland, K., Rose, C., Pey, J., Culot, A., Freney, E., Kalivitis, N., Kouvarakis, G., Cerro, J.C., Mallet, M., Sartelet, K., Beckmann, M., Bourriane, T., Roberts, G., Marchand, N., Michalopoulos, N., Sellegri, K., 2017. Spatial extent of new particle formation events over the Mediterranean Basin from multiple ground-based and airborne measurements. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 9567–9583. <https://doi.org/10.5194/acp-17-9567-2017>

Birmili, W., Tomsche, L., Sonntag, A., Opelt, C., Weinhold, K., Nordmann, S., Schmidt, W., 2013. Variability of aerosol particles in the urban atmosphere of Dresden (Germany): Effects of spatial scale and particle size. *Meteorol. Z.* 195–211. <https://doi.org/10.1127/0941-2948/2013/0395>

Boers, R., Brandsma, T., Siebesma, A.P., 2017. Impact of aerosols and clouds on decadal trends in all-sky solar radiation over the Netherlands (1966–2015). *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 8081–8100. <https://doi.org/10.5194/acp-17-8081-2017>

Bohren, C.F., Huffman, D.R., 1983. Absorption and scattering of light by small particles. Wiley.

Bond, T.C., Bergstrom, R.W., 2006. Light Absorption by Carbonaceous Particles: An Investigative Review. *Aerosol Sci. Technol.* 40, 27–67. <https://doi.org/10.1080/02786820500421521>

Bond, T.C., Habib, G., Bergstrom, R.W., 2006. Limitations in the enhancement of visible light absorption due to mixing state. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 111, D20211. <https://doi.org/10.1029/2006JD007315>

Boucher, O., Lohmann, U., 1995. The sulfate-CCN-cloud albedo effect. *Tellus B Chem. Phys. Meteorol.* 47, 281–300. <https://doi.org/10.3402/tellusb.v47i3.16048>

Boucher, O., Randall, D., Artaxo, P., Bretherton, C., Feingold, G., Forster, P.M., Kerminen, V.-M., Kondo, Y., Liao, H., Lohmann, U., Rasch, P., Satheesh, S.K., Sherwood, S., Stevens, B., Zhang, X.Y., 2013. Clouds and Aerosols, in: *Climate Change 2013: The Physical Science Basis.*, in: Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press.

Bougiatioti, A., Nikolaou, P., Stavroulas, I., Kouvarakis, G., Weber, R., Nenes, A.,

Kanakidou, M., Mihalopoulos, N., 2016. Particle water and pH in the eastern Mediterranean: source variability and implications for nutrient availability. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 4579–4591. <https://doi.org/10.5194/acp-16-4579-2016>

Bousiotis, D., Brean, J., Pope, F.D., Dall'Osto, M., Querol, X., Alastuey, A., Perez, N., Petäjä, T., Massling, A., Nøjgaard, J.K., Nordstrøm, C., Kouvarakis, G., Vratolis, S., Eleftheriadis, K., Niemi, J.V., Portin, H., Wiedensohler, A., Weinhold, K., Merkel, M., Tuch, T., Harrison, R.M., 2021. The effect of meteorological conditions and atmospheric composition in the occurrence and development of new particle formation (NPF) events in Europe. *Atmospheric Chem. Phys.* 21, 3345–3370. <https://doi.org/10.5194/acp-21-3345-2021>

Bower, K.N., Choulaton, T.W., Gallagher, M.W., Colvile, R.N., Wells, M., Beswick, K.M., Wiedensohler, A., Hansson, H.-C., Svenningsson, B., Swietlicki, E., Wendisch, M., Berner, A., Kruisz, C., Laj, P., Facchini, M.C., Fuzzi, S., Bizjak, M., Dollard, G., Jones, B., Acker, K., Wieprecht, W., Preiss, M., Sutton, M.A., Hargreaves, K.J., Storeton-West, R.L., Cape, J.N., Arends, B.G., 1997. Observations and modelling of the processing of aerosol by a hill cap cloud. *Atmos. Environ.* 31, 2527–2543. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(96\)00317-2](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(96)00317-2)

Cappa, C.D., Kolesar, K.R., Zhang, X., Atkinson, D.B., Pekour, M.S., Zaveri, R.A., Zelenyuk, A., Zhang, Q., 2016. Understanding the optical properties of ambient sub- and supermicron particulate matter: results from the CARES 2010 field study in northern California. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 6511–6535. <https://doi.org/10.5194/acp-16-6511-2016>

Casquero-Vera, J.A., Lyamani, H., Titos, G., Minguillón, M.C., Dada, L., Alastuey, A., Querol, X., Petäjä, T., Olmo, F.J., Alados-Arboledas, L., 2021. Quantifying traffic, biomass burning and secondary source contributions to atmospheric particle number concentrations at urban and suburban sites. *Sci. Total Environ.* 768, 145282. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.145282>

Cazorla, A., Bahadur, R., Suski, K.J., Cahill, J.F., Chand, D., Schmid, B., Ramanathan, V., Prather, K.A., 2013. Relating aerosol absorption due to soot, organic carbon, and dust to emission sources determined from in-situ chemical measurements. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 9337–9350. <https://doi.org/10.5194/acp-13-9337-2013>

Cheng, Y.F., Wiedensohler, A., Eichler, H., Su, H., Gnauk, T., Brüggemann, E., Herrmann, H., Heintzenberg, J., Slanina, J., Tuch, T., Hu, M., Zhang, Y.H., 2008. Aerosol optical properties and related chemical apportionment at Xinken in Pearl River Delta of China. *Atmos. Environ., PRIDE-PRD 2004 Campaign : Program of Regional Integrated Experiments on Air Quality over Pearl River Delta of China* 42, 6351–6372. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.02.034>

Cheng, Z., Jiang, J., Chen, C., Gao, J., Wang, S., Watson, J.G., Wang, H., Deng, J., Wang, B., Zhou, M., Chow, J.C., Pitchford, M.L., Hao, J., 2014. Estimation of Aerosol Mass Scattering Efficiencies under High Mass Loading: Case Study for the Megacity of Shanghai, China [WWW Document]. *ACS Publ.* <https://doi.org/10.1021/es504567q>

Choi, M.Y., Chan, C.K., 2002. The Effects of Organic Species on the Hygroscopic Behaviors of Inorganic Aerosols. *Environ. Sci. Technol.* 36, 2422–2428. <https://doi.org/10.1021/es0113293>

Choi, Y., Ghim, Y.S., 2016. Estimation of columnar concentrations of absorbing and

scattering fine mode aerosol components using AERONET data. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 121, 13,628–13,640. <https://doi.org/10.1002/2016JD025080>

Chu, D.A., Kaufman, Y.J., Zibordi, G., Chern, J.D., Mao, J., Li, C., Holben, B.N., 2003. Global monitoring of air pollution over land from the Earth Observing System-Terra Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS). *J. Geophys. Res. Atmospheres* 108. <https://doi.org/10.1029/2002JD003179>

Chylek, P., Lee, J.E., Romonosky, D.E., Gallo, F., Lou, S., Shrivastava, M., Carrico, C.M., Aiken, A.C., Dubey, M.K., 2019. Mie Scattering Captures Observed Optical Properties of Ambient Biomass Burning Plumes Assuming Uniform Black, Brown, and Organic Carbon Mixtures. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 124, 11406–11427. <https://doi.org/10.1029/2019JD031224>

Clegg, S.L., Seinfeld, J.H., 2004. Improvement of the Zdanovskii–Stokes–Robinson Model for Mixtures Containing Solutes of Different Charge Types. *J. Phys. Chem. A* 108, 1008–1017. <https://doi.org/10.1021/jp030827q>

Cohen, A.J., Brauer, M., Burnett, R., Anderson, H.R., Frostad, J., Estep, K., Balakrishnan, K., Brunekreef, B., Dandona, L., Dandona, R., Feigin, V., Freedman, G., Hubbell, B., Jobling, A., Kan, H., Knibbs, L., Liu, Y., Martin, R., Morawska, L., Pope, C.A., Shin, H., Straif, K., Shaddick, G., Thomas, M., van Dingenen, R., van Donkelaar, A., Vos, T., Murray, C.J.L., Forouzanfar, M.H., 2017. Estimates and 25-year trends of the global burden of disease attributable to ambient air pollution: an analysis of data from the Global Burden of Diseases Study 2015. *Lancet Lond. Engl.* 389, 1907–1918. [https://doi.org/10.1016/S0140-6736\(17\)30505-6](https://doi.org/10.1016/S0140-6736(17)30505-6)

Costa, L.G., Cole, T.B., Dao, K., Chang, Y.-C., Garrick, J.M., 2019. Developmental impact of air pollution on brain function. *Neurochem. Int.* 131, 104580. <https://doi.org/10.1016/j.neuint.2019.104580>

Crumeyrolle, S., Augustin, P., Rivellini, L.-H., Choël, M., Riffault, V., Deboudt, K., Fourmentin, M., Dieudonné, E., Delbarre, H., Derimian, Y., Chiapello, I., 2019. Aerosol variability induced by atmospheric dynamics in a coastal area of Senegal, North-Western Africa. *Atmos. Environ.* 203, 228–241. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.01.041>

Crumeyrolle, S., Chen, G., Ziemba, L., Beyersdorf, A., Thornhill, L., Winstead, E., Moore, R.H., Shook, M.A., Hudgins, C., Anderson, B.E., 2014. Factors that influence surface PM_{2.5} values inferred from satellite observations: perspective gained for the US Baltimore–Washington metropolitan area during DISCOVER-AQ. *Atmos Chem Phys* 14, 2139–2153. <https://doi.org/10.5194/acp-14-2139-2014>

Crumeyrolle, S., Delegove, C., Loasil, R., Hanoune, B., 2018. Determinants of particulate pollution within the Lille Subway trains. <https://doi.org/10.2729>

Crumeyrolle, S., Gomes, L., Tulet, P., Matsuki, A., Schwarzenboeck, A., Crahan, K., 2008. Increase of the aerosol hygroscopicity by cloud processing in a mesoscale convective system: a case study from the AMMA campaign. *Atmos Chem Phys* 8, 6907–6924. <https://doi.org/10.5194/acp-8-6907-2008>

Crumeyrolle, S., Kontkanen, J., Rose, C., Velasquez Garcia, A., Bourrienne, E., Catalfamo, M., Riffault, V., Tison, E., Ferreira de Brito, J., Visez, N., Ferlay, N., Auriol, F., Chiapello, I., 2022. Measurement report: Atmospheric new particle formation in a peri-urban site in Lille, Northern France. *Atmospheric Chem. Phys. Discuss.* 1–35. <https://doi.org/10.5194/acp->

Crumeyrolle, S., Manninen, H.E., Sellegri, K., Roberts, G., Gomes, L., Kulmala, M., Weigel, R., Laj, P., Schwarzenboeck, A., 2010. New particle formation events measured on board the ATR-42 aircraft during the EUCAARI campaign. *Atmos Chem Phys* 10, 6721–6735. <https://doi.org/10.5194/acp-10-6721-2010>

Crumeyrolle, S., Mensah, A., Khlystov, A., Kos, G., ten Brink, H., 2021. On the importance of nitrate for the droplet concentration in stratocumulus in the North-Sea region. *Atmos. Environ.* 252, 118278. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118278>

Crumeyrolle, S., Schwarzenboeck, A., Roger, J.C., Sellegri, K., Burkhardt, J.F., Stohl, A., Gomes, L., Quennehen, B., Roberts, G., Weigel, R., Villani, P., Pichon, J.M., Bourrienne, T., Laj, P., 2013. Overview of aerosol properties associated with air masses sampled by the ATR-42 during the EUCAARI campaign (2008). *Atmos Chem Phys* 13, 4877–4893. <https://doi.org/10.5194/acp-13-4877-2013>

Cubison, M.J., Ervens, B., Feingold, G., Docherty, K.S., Ulbrich, I.M., Shields, L., Prather, K., Hering, S., Jimenez, J.L., 2008. The influence of chemical composition and mixing state of Los Angeles urban aerosol on CCN number and cloud properties. *Atmospheric Chem. Phys.* 8, 5649–5667. <https://doi.org/10.5194/acp-8-5649-2008>

Dall’Osto, M., Beddows, D.C.S., Asmi, A., Poulain, L., Hao, L., Freney, E., Allan, J.D., Canagaratna, M., Crippa, M., Bianchi, F., de Leeuw, G., Eriksson, A., Swietlicki, E., Hansson, H.C., Henzing, J.S., Granier, C., Zemankova, K., Laj, P., Onasch, T., Prevot, A., Putaud, J.P., Sellegri, K., Vidal, M., Virtanen, A., Simo, R., Worsnop, D., O’Dowd, C., Kulmala, M., Harrison, R.M., 2018. Novel insights on new particle formation derived from a pan-european observing system. *Sci. Rep.* 8, 1482. <https://doi.org/10.1038/s41598-017-17343-9>

DeCarlo, P.F., Slowik, J.G., Worsnop, D.R., Davidovits, P., Jimenez, J.L., 2004. Particle Morphology and Density Characterization by Combined Mobility and Aerodynamic Diameter Measurements. Part 1: Theory. *Aerosol Sci. Technol.* 38, 1185–1205. <https://doi.org/10.1080/027868290903907>

Deng, C., Fu, Y., Dada, L., Yan, C., Cai, R., Yang, D., Zhou, Y., Yin, R., Lu, Y., Li, X., Qiao, X., Fan, X., Nie, W., Kontkanen, J., Kangasluoma, J., Chu, B., Ding, A., Kerminen, V.-M., Paasonen, P., Worsnop, D.R., Bianchi, F., Liu, Y., Zheng, J., Wang, L., Kulmala, M., Jiang, J., 2020. Seasonal Characteristics of New Particle Formation and Growth in Urban Beijing. *Environ. Sci. Technol.* 54, 8547–8557. <https://doi.org/10.1021/acs.est.0c00808>

Deng, J., Wang, T., Liu, L., Jiang, F., 2010. Modeling heterogeneous chemical processes on aerosol surface. *Particuology* 8, 308–318. <https://doi.org/10.1016/j.partic.2009.12.003>

Dos Santos, V.N., Herrmann, E., Manninen, H.E., Hussein, T., Hakala, J., Nieminen, T., Aalto, P.P., Merkel, M., Wiedensohler, A., Kulmala, M., Petäjä, T., Hämeri, K., 2015. Variability of air ion concentrations in urban Paris. *Atmospheric Chem. Phys.* 15, 13717–13737. <https://doi.org/10.5194/acp-15-13717-2015>

Dowd, C.D.O., 2001. Biogenic coastal aerosol production and its influence on aerosol radiative properties. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 106, 1545–1549. <https://doi.org/10.1029/2000JD900423>

Ebert, M., Weinbruch, S., Hoffmann, P., Ortner, H.M., 2004. The chemical composition and complex refractive index of rural and urban influenced aerosols determined by individual

particle analysis. *Atmos. Environ.*, Contains Special Issue section on Measuring the composition of Particulate Matter in the EU 38, 6531–6545. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.08.048>

Engel-Cox, J.A., Hoff, R.M., Rogers, R., Dimmick, F., Rush, A.C., Szykman, J.J., Al-Saadi, J., Chu, D.A., Zell, E.R., 2006. Integrating lidar and satellite optical depth with ambient monitoring for 3-dimensional particulate characterization. *Atmos. Environ.* 40, 8056–8067. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.02.039>

Engel-Cox, J.A., Holloman, C.H., Coutant, B.W., Hoff, R.M., 2004. Qualitative and quantitative evaluation of MODIS satellite sensor data for regional and urban scale air quality. *Atmos. Environ.* 38, 2495–2509. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.01.039>

Fierz-Schmidhauser, R., Zieger, P., Wehrle, G., Jefferson, A., Ogren, J.A., Baltensperger, U., Weingartner, E., 2010. Measurement of relative humidity dependent light scattering of aerosols. *Atmos Meas Tech* 3, 39–50. <https://doi.org/10.5194/amt-3-39-2010>

Fung, P.L., Sillanpää, S., Niemi, J.V., Kousa, A., Timonen, H., Zaidan, M.A., Saukko, E., Kulmala, M., Petäjä, T., Hussein, T., 2022. Improving the current air quality index with new particulate indicators using a robust statistical approach. *Sci. Total Environ.* 844, 157099. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.157099>

Ganguly, D., Jayaraman, A., 2006. Physical and optical properties of aerosols over an urban location in western India: Implications for shortwave radiative forcing. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 111. <https://doi.org/10.1029/2006JD007393>

Garrett, T.J., Zhao, C., Dong, X., Mace, G.G., Hobbs, P.V., 2004. Effects of varying aerosol regimes on low-level Arctic stratus. *Geophys. Res. Lett.* 31, L17105. <https://doi.org/10.1029/2004GL019928>

Größ, J., Hamed, A., Sonntag, A., Spindler, G., Manninen, H.E., Nieminen, T., Kulmala, M., Hörrak, U., Plass-Dülmer, C., Wiedensohler, A., Birmili, W., 2018. Atmospheric new particle formation at the research station Melpitz, Germany: connection with gaseous precursors and meteorological parameters. *Atmospheric Chem. Phys.* 18, 1835–1861. <https://doi.org/10.5194/acp-18-1835-2018>

Guo, S., Hu, M., Zamora, M.L., Peng, J., Shang, D., Zheng, J., Du, Z., Wu, Z., Shao, M., Zeng, L., Molina, M.J., Zhang, R., 2014. Elucidating severe urban haze formation in China. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 111, 17373–17378. <https://doi.org/10.1073/pnas.1419604111>

Gupta, P., Christopher, S.A., 2009. Particulate matter air quality assessment using integrated surface, satellite, and meteorological products: 2. A neural network approach. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 114. <https://doi.org/10.1029/2008JD011497>

Gupta, P., Christopher, S.A., Box, M.A., Box, G.P., 2007. Multi year satellite remote sensing of particulate matter air quality over Sydney, Australia. *Int. J. Remote Sens.* 28, 4483–4498. <https://doi.org/10.1080/01431160701241738>

Gupta, P., Christopher, S.A., Wang, J., Gehrig, R., Lee, Y., Kumar, N., 2006. Satellite remote sensing of particulate matter and air quality assessment over global cities. *Atmos. Environ.* 40, 5880–5892. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.03.016>

Hammer, E., Bukowiecki, N., Gysel, M., Jurányi, Z., Hoyle, C.R., Vogt, R., Baltensperger, U., Weingartner, E., 2014. Investigation of the effective peak supersaturation for liquid-phase clouds at the high-alpine site Jungfrauoch, Switzerland (3580 m a.s.l.). *Atmospheric*

Chem. Phys. 14, 1123–1139. <https://doi.org/10.5194/acp-14-1123-2014>

Hand, J., Copeland, S.A., Mcdade, C., Day, D., Moore, J., Dillner, A., Pitchford, M., Indresand, H., Schichtel, B., Malm, W., Watson, J., 2011. Spatial and seasonal patterns and temporal variability of haze and its constituents in the United States, IMPROVE Report V.

Hand, J.L., Kreidenweis, S.M., 2002. A New Method for Retrieving Particle Refractive Index and Effective Density from Aerosol Size Distribution Data. *Aerosol Sci. Technol.* 36, 1012–1026. <https://doi.org/10.1080/02786820290092276>

Hand, J.L., Malm, W.C., 2007. Review of aerosol mass scattering efficiencies from ground-based measurements since 1990. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 112, D16203. <https://doi.org/10.1029/2007JD008484>

Hartmann, D.L., Ockert-Bell, M.E., Michelsen, M.L., 1992. The Effect of Cloud Type on Earth's Energy Balance: Global Analysis. *J. Clim.* 5, 1281–1304. [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(1992\)005<1281:TEOCTO>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(1992)005<1281:TEOCTO>2.0.CO;2)

Hayden, K.L., Macdonald, A.M., Gong, W., Toom-Sauntry, D., Anlauf, K.G., Leithead, A., Li, S.-M., Leitch, W.R., Noone, K., 2008. Cloud processing of nitrate. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 113. <https://doi.org/10.1029/2007JD009732>

He, Q., Li, C., Mao, J., Lau, A.K.-H., Chu, D.A., 2008. Analysis of aerosol vertical distribution and variability in Hong Kong. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 113. <https://doi.org/10.1029/2008JD009778>

Hegg, D.A., 1985. The importance of liquid-phase oxidation of SO₂ in the troposphere. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 90, 3773–3779. <https://doi.org/10.1029/JD090iD02p03773>

Hoff, R.M., Christopher, S.A., 2009. Remote sensing of particulate pollution from space: have we reached the promised land? *J. Air Waste Manag. Assoc.* 59, 645–675.

Hoffer, A., Gelencsér, A., Guyon, P., Kiss, G., Schmid, O., Frank, G.P., Artaxo, P., Andreae, M.O., 2006. Optical properties of humic-like substances (HULIS) in biomass-burning aerosols. *Atmospheric Chem. Phys.* 6, 3563–3570.

Hoppel, W.A., Frick, G.M., Fitzgerald, J.W., Larson, R.E., 1994. Marine boundary layer measurements of new particle formation and the effects nonprecipitating clouds have on aerosol size distribution. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 99, 14443–14459. <https://doi.org/10.1029/94JD00797>

Hu, M., Peng, J., Sun, K., Yue, D., Guo, S., Wiedensohler, A., Wu, Z., 2012a. Estimation of Size-Resolved Ambient Particle Density Based on the Measurement of Aerosol Number, Mass, and Chemical Size Distributions in the Winter in Beijing. *Environ. Sci. Technol.* 46, 9941–9947. <https://doi.org/10.1021/es204073t>

Hu, M., Peng, J., Sun, K., Yue, D., Guo, S., Wiedensohler, A., Wu, Z., 2012b. Estimation of Size-Resolved Ambient Particle Density Based on the Measurement of Aerosol Number, Mass, and Chemical Size Distributions in the Winter in Beijing. *Environ. Sci. Technol.* 46, 9941–9947. <https://doi.org/10.1021/es204073t>

Hu, W., Fang, L., Zhang, H., Ni, R., Pan, G., 2023. Changing trends in the air pollution-related disease burden from 1990 to 2019 and its predicted level in 25 years. *Environ. Sci. Pollut. Res.* 30, 1761–1773. <https://doi.org/10.1007/s11356-022-22318-z>

Junkermann, W., Hacker, J.M., 2018. Ultrafine Particles in the Lower Troposphere: Major Sources, Invisible Plumes, and Meteorological Transport Processes. *Bull. Am. Meteorol.*

Soc. 99, 2587–2602. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-18-0075.1>

Kalkavouras, P., Bossioli, E., Bezantakos, S., Bougiatioti, A., Kalivitis, N., Stavroulas, I., Kouvarakis, G., Protonotariou, A.P., Dandou, A., Biskos, G., Mihalopoulos, N., Nenes, A., Tombrou, M., 2017. New particle formation in the southern Aegean Sea during the Etesians: importance for CCN production and cloud droplet number. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 175–192. <https://doi.org/10.5194/acp-17-175-2017>

Kanakidou, M., Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., Barnes, I., Dentener, F.J., Facchini, M.C., Van Dingenen, R., Ervens, B., Nenes, A., Nielsen, C.J., Swietlicki, E., Putaud, J.P., Balkanski, Y., Fuzzi, S., Horth, J., Moortgat, G.K., Winterhalter, R., Myhre, C.E.L., Tsigaridis, K., Vignati, E., Stephanou, E.G., Wilson, J., 2005. Organic aerosol and global climate modelling: a review. *Atmospheric Chem. Phys.* 5, 1053–1123. <https://doi.org/10.5194/acp-5-1053-2005>

Kandler, K., Benker, N., Bundke, U., Cuevas, E., Ebert, M., Knippertz, P., Rodríguez, S., Schütz, L., Weinbruch, S., 2007. Chemical composition and complex refractive index of Saharan Mineral Dust at Izaña, Tenerife (Spain) derived by electron microscopy. *Atmos. Environ.* 41, 8058–8074. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.06.047>

Karamchandani, P., Venkatram, A., 1992. The role of non-precipitating clouds in producing ambient sulfate during summer: Results from simulations with the Acid Deposition and Oxidant Model (ADOM). *Atmospheric Environ. Part Gen. Top.* 26, 1041–1052. [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(92\)90036-K](https://doi.org/10.1016/0960-1686(92)90036-K)

Karumanchi, S., Siemiatycki, J., Richardson, L., Hatzopoulou, M., Lequy, E., 2021. Spatial and temporal variability of airborne ultrafine particles in the Greater Montreal area: Results of monitoring campaigns in two seasons. *Sci. Total Environ.* 771, 144652. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.144652>

Kassianov, E., Barnard, J., Pekour, M., Berg, L.K., Shilling, J., Flynn, C., Mei, F., Jefferson, A., 2014. Simultaneous retrieval of effective refractive index and density from size distribution and light-scattering data: weakly absorbing aerosol. *Atmospheric Meas. Tech.* 7, 3247–3261. <https://doi.org/10.5194/amt-7-3247-2014>

Kerminen, V.-M., Chen, X., Vakkari, V., Petäjä, T., Kulmala, M., Bianchi, F., 2018. Atmospheric new particle formation and growth: review of field observations. *Environ. Res. Lett.* 13, 103003. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aadf3c>

Kerminen, V.-M., Lihavainen, H., Komppula, M., Viisanen, Y., Kulmala, M., 2005. Direct observational evidence linking atmospheric aerosol formation and cloud droplet activation. *Geophys. Res. Lett.* 32. <https://doi.org/10.1029/2005GL023130>

Kerminen, V.-M., Paramonov, M., Anttila, T., Riipinen, I., Fountoukis, C., Korhonen, H., Asmi, E., Laakso, L., Lihavainen, H., Swietlicki, E., Svenningsson, B., Asmi, A., Pandis, S.N., Kulmala, M., Petäjä, T., 2012. Cloud condensation nuclei production associated with atmospheric nucleation: a synthesis based on existing literature and new results. *Atmospheric Chem. Phys.* 12, 12037–12059. <https://doi.org/10.5194/acp-12-12037-2012>

Keywood, M., Selleck, P., Reisen, F., Cohen, D., Chambers, S., Cheng, M., Cope, M., Crumeyrolle, S., Dunne, E., Emmerson, K., Fedele, R., Galbally, I., Gillett, R., Griffiths, A., Guerette, E.-A., Harnwell, J., Humphries, R., Lawson, S., Miljevic, B., Molloy, S., Powell, J., Simmons, J., Ristovski, Z., Ward, J., 2019. Comprehensive aerosol and gas data set from the Sydney Particle Study. *Earth Syst. Sci. Data* 11, 1883–1903. <https://doi.org/10.5194/essd-11->

Kirchstetter, T.W., Novakov, T., Hobbs, P.V., 2004. Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 109, D21208. <https://doi.org/10.1029/2004JD004999>

Kirkby, J., Curtius, J., Almeida, J., Dunne, E., Duplissy, J., Ehrhart, S., Franchin, A., Gagné, S., Ickes, L., Kürten, A., Kupc, A., Metzger, A., Riccobono, F., Rondo, L., Schobesberger, S., Tsagkogeorgas, G., Wimmer, D., Amorim, A., Bianchi, F., Breitenlechner, M., David, A., Dommen, J., Downard, A., Ehn, M., Flagan, R.C., Haider, S., Hansel, A., Hauser, D., Jud, W., Junninen, H., Kreissl, F., Kvashin, A., Laaksonen, A., Lehtipalo, K., Lima, J., Lovejoy, E.R., Makhmutov, V., Mathot, S., Mikkilä, J., Minginette, P., Mogo, S., Nieminen, T., Onnela, A., Pereira, P., Petäjä, T., Schnitzhofer, R., Seinfeld, J.H., Sipilä, M., Stozhkov, Y., Stratmann, F., Tomé, A., Vanhanen, J., Viisanen, Y., Vrtala, A., Wagner, P.E., Walther, H., Weingartner, E., Wex, H., Winkler, P.M., Carslaw, K.S., Worsnop, D.R., Baltensperger, U., Kulmala, M., 2011. Role of sulphuric acid, ammonia and galactic cosmic rays in atmospheric aerosol nucleation. *Nature* 476, 429–433. <https://doi.org/10.1038/nature10343>

Komppula, M., Lihavainen, H., Kerminen, V.-M., Kulmala, M., Viisanen, Y., 2005. Measurements of cloud droplet activation of aerosol particles at a clean subarctic background site. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 110. <https://doi.org/10.1029/2004JD005200>

Kontkanen, J., Lehtipalo, K., Ahonen, L., Kangasluoma, J., Manninen, H.E., Hakala, J., Rose, C., Sellegri, K., Xiao, S., Wang, L., Qi, X., Nie, W., Ding, A., Yu, H., Lee, S., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Kulmala, M., 2017. Measurements of sub-3 nm particles using a particle size magnifier in different environments: from clean mountain top to polluted megacities. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 2163–2187. <https://doi.org/10.5194/acp-17-2163-2017>

Kulmala, M., 2003. Atmospheric science. How particles nucleate and grow. *Science* 302, 1000–1001. <https://doi.org/10.1126/science.1090848>

Kulmala, M., Asmi, A., Lappalainen, H.K., Carslaw, K.S., Pöschl, U., Baltensperger, U., Hov, Ø., Brenquier, J.-L., Pandis, S.N., Facchini, M.C., Hansson, H.-C., Wiedensohler, A., O'Dowd, C.D., 2009. Introduction: European Integrated Project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions (EUCAARI) – integrating aerosol research from nano to global scales. *Atmospheric Chem. Phys.* 9, 2825–2841. <https://doi.org/10.5194/acp-9-2825-2009>

Kulmala, M., Dal Maso, M., Mäkelä, J.M., Pirjola, L., Väkevä, M., Aalto, P., Miikkulainen, P., Hämeri, K., O'Dowd, C.D., 2001. On the formation, growth and composition of nucleation mode particles. *Tellus Ser. B Chem. Phys. Meteorol.* 53, 479–490. <https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.2001.530411.x>

Kulmala, M., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Ding, A.J., Wang, L., 2017. Atmospheric gas-to-particle conversion: why NPF events are observed in megacities? *Faraday Discuss.* 200, 271–288. <https://doi.org/10.1039/C6FD00257A>

Kulmala, M., Kontkanen, J., Junninen, H., Lehtipalo, K., Manninen, H.E., Nieminen, T., Petäjä, T., Sipilä, M., Schobesberger, S., Rantala, P., Franchin, A., Jokinen, T., Järvinen, E., Äijälä, M., Kangasluoma, J., Hakala, J., Aalto, P.P., Paasonen, P., Mikkilä, J., Vanhanen, J., Aalto, J., Hakola, H., Makkonen, U., Ruuskanen, T., Mauldin, R.L., Duplissy, J., Vehkamäki, H., Bäck, J., Kortelainen, A., Riipinen, I., Kurtén, T., Johnston, M.V., Smith, J.N., Ehn, M., Mentel, T.F., Lehtinen, K.E.J., Laaksonen, A., Kerminen, V.-M., Worsnop, D.R., 2013. Direct

Observations of Atmospheric Aerosol Nucleation. *Science* 339, 943–946. <https://doi.org/10.1126/science.1227385>

Kulmala, M., Petäjä, T., Ehn, M., Thornton, J., Sipilä, M., Worsnop, D.R., Kerminen, V.-M., 2014. Chemistry of Atmospheric Nucleation: On the Recent Advances on Precursor Characterization and Atmospheric Cluster Composition in Connection with Atmospheric New Particle Formation. *Annu. Rev. Phys. Chem.* 65, 21–37. <https://doi.org/10.1146/annurev-physchem-040412-110014>

Kulmala, M., Vehkamäki, H., Petäjä, T., Dal Maso, M., Lauri, A., Kerminen, V.-M., Birmili, W., McMurry, P.H., 2004. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations. *J. Aerosol Sci.* 35, 143–176. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2003.10.003>

Kumar, N., Chu, A., Foster, A., 2008. Remote sensing of ambient particles in Delhi and its environs: estimation and validation. *Int. J. Remote Sens.* 29, 3383–3405. <https://doi.org/10.1080/01431160701474545>

Kumar, N., Chu, A., Foster, A., 2007. An empirical relationship between PM_{2.5} and aerosol optical depth in Delhi Metropolitan. *Atmospheric Environ. Oxf. Engl.* 1994 41, 4492–4503. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.01.046>

Kurtén, T., Torpo, L., Ding, C.-G., Vehkamäki, H., Sundberg, M.R., Laasonen, K., Kulmala, M., 2007. A density functional study on water-sulfuric acid-ammonia clusters and implications for atmospheric cluster formation. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 112. <https://doi.org/10.1029/2006JD007391>

Kuwata, M., Kondo, Y., 2008. Dependence of size-resolved CCN spectra on the mixing state of nonvolatile cores observed in Tokyo. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 113. <https://doi.org/10.1029/2007JD009761>

Laaksonen, A., Hamed, A., Joutsensaari, J., Hiltunen, L., Cavalli, F., Junkermann, W., Asmi, A., Fuzzi, S., Facchini, M.C., 2005. Cloud condensation nucleus production from nucleation events at a highly polluted region. *Geophys. Res. Lett.* 32. <https://doi.org/10.1029/2004GL022092>

Lack, D.A., Cappa, C.D., 2010. Impact of brown and clear carbon on light absorption enhancement, single scatter albedo and absorption wavelength dependence of black carbon. *Atmos Chem Phys* 10, 4207–4220. <https://doi.org/10.5194/acp-10-4207-2010>

Lampilahti, J., Leino, K., Manninen, A., Poutanen, P., Franck, A., Peltola, M., Hietala, P., Beck, L., Dada, L., Quéléver, L., Öhrnberg, R., Zhou, Y., Ekblom, M., Vakkari, V., Zilitinkevich, S., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Kulmala, M., 2021a. Aerosol particle formation in the upper residual layer. *Atmospheric Chem. Phys.* 21, 7901–7915. <https://doi.org/10.5194/acp-21-7901-2021>

Lampilahti, J., Manninen, H.E., Leino, K., Väänänen, R., Manninen, A., Buenrostro Mazon, S., Nieminen, T., Leskinen, M., Enroth, J., Bister, M., Zilitinkevich, S., Kangasluoma, J., Järvinen, H., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Kulmala, M., 2020. Roll vortices induce new particle formation bursts in the planetary boundary layer. *Atmospheric Chem. Phys.* 20, 11841–11854. <https://doi.org/10.5194/acp-20-11841-2020>

Lampilahti, J., Manninen, H.E., Nieminen, T., Mirme, S., Ehn, M., Pullinen, I., Leino, K., Schobesberger, S., Kangasluoma, J., Kontkanen, J., Järvinen, E., Väänänen, R., Yli-Juuti,

T., Krejci, R., Lehtipalo, K., Levula, J., Mirme, A., Decesari, S., Tillmann, R., Worsnop, D.R., Rohrer, F., Kiendler-Scharr, A., Petäjä, T., Kerminen, V.-M., Mentel, T.F., Kulmala, M., 2021b. Zeppelin-led study on the onset of new particle formation in the planetary boundary layer. *Atmospheric Chem. Phys.* 21, 12649–12663. <https://doi.org/10.5194/acp-21-12649-2021>

Laskina, O., Morris, H.S., Grandquist, J.R., Qin, Z., Stone, E.A., Tivanski, A.V., Grassian, V.H., 2015. Size Matters in the Water Uptake and Hygroscopic Growth of Atmospherically Relevant Multicomponent Aerosol Particles. *J. Phys. Chem. A* 119, 4489–4497. <https://doi.org/10.1021/jp510268p>

Leaitch, W.R., Banic, C.M., Isaac, G.A., Couture, M.D., Liu, P.S.K., Gultepe, I., Li, S.-M., Kleinman, L., Daum, P.H., MacPherson, J.I., 1996. Physical and chemical observations in marine stratus during the 1993 North Atlantic Regional Experiment: Factors controlling cloud droplet number concentrations. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 101, 29123–29135. <https://doi.org/10.1029/96JD01228>

Leriche, M., Curier, R.L., Deguillaume, L., Caro, D., Sellegri, K., Chaumerliac, N., 2007. Numerical quantification of sources and phase partitioning of chemical species in cloud: application to wintertime anthropogenic air masses at the Puy de Dôme station. *J. Atmospheric Chem.* 57, 281–297. <https://doi.org/10.1007/s10874-007-9073-y>

Levin, Z., Ganor, E., Gladstein, V., 1996. The effects of desert particles coated with sulfate on rain formation in the eastern Mediterranean. *J. Appl. Meteorol.* 35, 1511–1523.

Li, L., Dubovik, O., Derimian, Y., Schuster, G.L., Lapyonok, T., Litvinov, P., Ducos, F., Fuertes, D., Chen, C., Li, Z., Lopatin, A., Torres, B., Che, H., 2019. Retrieval of aerosol components directly from satellite and ground-based measurements. *Atmospheric Chem. Phys.* 19, 13409–13443. <https://doi.org/10.5194/acp-19-13409-2019>

Li, L., Yang, J., Wang, Y., 2015. Retrieval of High-Resolution Atmospheric Particulate Matter Concentrations from Satellite-Based Aerosol Optical Thickness over the Pearl River Delta Area, China. *Remote Sens.* 7, 7914–7937. <https://doi.org/10.3390/rs70607914>

Li, W., Shao, L., Zhang, D., Ro, C.-U., Hu, M., Bi, X., Geng, H., Matsuki, A., Niu, H., Chen, J., 2016. A review of single aerosol particle studies in the atmosphere of East Asia: morphology, mixing state, source, and heterogeneous reactions. *J. Clean. Prod., Preventing Smog Crises* 112, 1330–1349. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2015.04.050>

Li, Z., Gu, X., Wang, L., Li, D., Xie, Y., Li, K., Dubovik, O., Schuster, G., Goloub, P., Zhang, Y., Li, L., Ma, Y., Xu, H., 2013. Aerosol physical and chemical properties retrieved from ground-based remote sensing measurements during heavy haze days in Beijing winter. *Atmos Chem Phys* 13, 10171–10183. <https://doi.org/10.5194/acp-13-10171-2013>

Lihavainen, H., Kerminen, V.-M., Komppula, M., Hatakka, J., Aaltonen, V., Kulmala, M., Viisanen, Y., 2003. Production of “potential” cloud condensation nuclei associated with atmospheric new-particle formation in northern Finland. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 108. <https://doi.org/10.1029/2003JD003887>

Lihavainen, H., Kerminen, V.-M., Komppula, M., Hyvärinen, A.-P., Laakia, J., Saarikoski, S., Makkonen, U., Kivekäs, N., Hillamo, R., Kulmala, M., Viisanen, Y., 2008. Measurements of the relation between aerosol properties and microphysics and chemistry of low level liquid water clouds in Northern Finland. *Atmospheric Chem. Phys.* 8, 6925–6938. <https://doi.org/10.5194/acp-8-6925-2008>

- Liu, J., Bergin, M., Guo, H., King, L., Kotra, N., Edgerton, E., Weber, R.J., 2013. Size-resolved measurements of brown carbon in water and methanol extracts and estimates of their contribution to ambient fine-particle light absorption. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 12389–12404. <https://doi.org/10.5194/acp-13-12389-2013>
- Liu, Z., Hu, B., Ji, D., Wang, Yonghong, Wang, M., Wang, Yuesi, 2015. Diurnal and seasonal variation of the PM_{2.5} apparent particle density in Beijing, China. *Atmos. Environ.* 120, 328–338. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.09.005>
- Lohmann, U., 2006. Aerosol effects on clouds and climate. *Space Sci. Rev.* 125, 129–137. <https://doi.org/10.1007/s11214-006-9051-8>
- Ma, N., Birmili, W., 2015. Estimating the contribution of photochemical particle formation to ultrafine particle number averages in an urban atmosphere. *Sci. Total Environ.* 512–513, 154–166. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.01.009>
- MacDonald, A.B., Hossein Mardi, A., Dadashazar, H., Azadi Aghdam, M., Crosbie, E., Jonsson, H.H., Flagan, R.C., Seinfeld, J.H., Sorooshian, A., 2020. On the relationship between cloud water composition and cloud droplet number concentration. *Atmospheric Chem. Phys.* 20, 7645–7665. <https://doi.org/10.5194/acp-20-7645-2020>
- Mallet, M., Roger, J.C., Despiou, S., Dubovik, O., Putaud, J.P., 2003. Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE. *Atmospheric Res.* 69, 73–97. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2003.07.001>
- Malm, W.C., Schichtel, B.A., Pitchford, M.L., 2011. Uncertainties in PM_{2.5} Gravimetric and Speciation Measurements and What We Can Learn from Them. *J. Air Waste Manag. Assoc.* 61, 1131–1149. <https://doi.org/10.1080/10473289.2011.603998>
- Manisalidis, I., Stavropoulou, E., Stavropoulos, A., Bezirtzoglou, E., 2020. Environmental and Health Impacts of Air Pollution: A Review. *Front. Public Health* 8.
- Massoli, P., Bates, T.S., Quinn, P.K., Lack, D.A., Baynard, T., Lerner, B.M., Tucker, S.C., Brioude, J., Stohl, A., Williams, E.J., 2009. Aerosol optical and hygroscopic properties during TexAQS-GoMACCS 2006 and their impact on aerosol direct radiative forcing. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 114. <https://doi.org/10.1029/2008JDO11604>
- Matsuki, A., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Crumeyrolle, S., Venzac, H., Laj, P., Gomes, L., 2010. Temporal and vertical variations of aerosol physical and chemical properties over West Africa: AMMA aircraft campaign in summer 2006. *Atmos Chem Phys* 10, 8437–8451. <https://doi.org/10.5194/acp-10-8437-2010>
- Michel Flores, J., Bar-Or, R.Z., Bluvshstein, N., Abo-Riziq, A., Kostinski, A., Borrmann, S., Koren, I., Koren, I., Rudich, Y., 2012. Absorbing aerosols at high relative humidity: linking hygroscopic growth to optical properties. *Atmos Chem Phys* 12, 5511–5521. <https://doi.org/10.5194/acp-12-5511-2012>
- Mikati, I., Benson, A.F., Luben, T.J., Sacks, J.D., Richmond-Bryant, J., 2018. Disparities in Distribution of Particulate Matter Emission Sources by Race and Poverty Status. *Am. J. Public Health* 108, 480–485. <https://doi.org/10.2105/AJPH.2017.304297>
- Mishra, V.K., Kumar, P., Van Poppel, M., Bleux, N., Frijns, E., Reggente, M., Berghmans, P., Int Panis, L., Samson, R., 2012. Wintertime spatio-temporal variation of ultrafine particles in a Belgian city. *Sci. Total Environ.* 431, 307–313. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2012.05.054>

Moosmüller, H., Chakrabarty, R.K., Arnott, W.P., 2009. Aerosol light absorption and its measurement: A review. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf., Light Scattering: Mie and More Commemorating 100 years of Mie's 1908 publication* 110, 844–878. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.035>

Morawska, L., Thomas, S., Bofinger, N., Wainwright, D., Neale, D., 1998. Comprehensive characterization of aerosols in a subtropical urban atmosphere: particle size distribution and correlation with gaseous pollutants. *Atmos. Environ.* 32, 2467–2478. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(98\)00023-5](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00023-5)

Moteki, N., Kondo, Y., Nakamura, S., 2010. Method to measure refractive indices of small nonspherical particles: Application to black carbon particles. *J. Aerosol Sci.* 41, 513–521. <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2010.02.013>

Myhre, G., Samset, B.H., Schulz, M., Balkanski, Y., Bauer, S., Bernsten, T.K., Bian, H., Bellouin, N., Chin, M., Diehl, T., Easter, R.C., Feichter, J., Ghan, S.J., Hauglustaine, D., Iversen, T., Kinne, S., Kirkevåg, A., Lamarque, J.-F., Lin, G., Liu, X., Lund, M.T., Luo, G., Ma, X., Noije, T.V., Penner, J.E., Rasch, P.J., Ruiz, A., Seland, Ø., Skeie, R.B., Stier, P., Takemura, T., Tsigaridis, K., Wang, P., Wang, Z., Xu, L., Yu, H., Yu, F., Yoon, J.-H., Zhang, K., Zhang, H., Zhou, C., 2013. Radiative Forcing of the Direct Aerosol Effect from AeroCom Phase II Simulations. *Atmospheric Chem. Phys.* 18, 1853–1877. <https://doi.org/10.5194/acp-13-1853-2013>

Németh, Z., Rosati, B., Zíková, N., Salma, I., Bozó, L., Dameto de España, C., Schwarz, J., Ždímal, V., Wonaschütz, A., 2018. Comparison of atmospheric new particle formation events in three Central European cities. *Atmos. Environ.* 178, 191–197. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.01.035>

Nieminen, T., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Aalto, P.P., Arshinov, M., Asmi, E., Baltensperger, U., Beddows, D.C.S., Beukes, J.P., Collins, D., Ding, A., Harrison, R.M., Henzing, B., Hooda, R., Hu, M., Hörrak, U., Kivekäs, N., Komsaare, K., Krejci, R., Kristensson, A., Laakso, L., Laaksonen, A., Leaitch, W.R., Lihavainen, H., Mihalopoulos, N., Németh, Z., Nie, W., O'Dowd, C., Salma, I., Sellegri, K., Svenningsson, B., Swietlicki, E., Tunved, P., Ulevicius, V., Vakkari, V., Vana, M., Wiedensohler, A., Wu, Z., Virtanen, A., Kulmala, M., 2018. Global analysis of continental boundary layer new particle formation based on long-term measurements. *Atmospheric Chem. Phys.* 18, 14737–14756. <https://doi.org/10.5194/acp-18-14737-2018>

Nieminen, T., Manninen, H.E., Sihto, S.-L., Yli-Juuti, T., Maudin, R.L., Petäjä, T., Rii-pininen, I., Kerminen, V.-M., Kulmala, M., 2009. Connection of sulfuric acid to atmospheric nucleation in boreal forest. *Environ. Sci. Technol.* 43, 4715–4721. <https://doi.org/10.1021/es803152j>

Nilsson, E.D., Rannik, Ü., Kumala, M., Buzorius, G., O'dowd, C.D., 2001. Effects of continental boundary layer evolution, convection, turbulence and entrainment, on aerosol formation. *Tellus B Chem. Phys. Meteorol.* 53, 441–461. <https://doi.org/10.3402/tellusb.v53i4.16617>

Paasonen, P., Peltola, M., Kontkanen, J., Junninen, H., Kerminen, V.-M., Kulmala, M., 2018. Comprehensive analysis of particle growth rates from nucleation mode to cloud condensation nuclei in boreal forest. *Atmospheric Chem. Phys.* 18, 12085–12103.

<https://doi.org/10.5194/acp-18-12085-2018>

Pascal, M., Corso, M., Chanel, O., Declercq, C., Badaloni, C., Cesaroni, G., Henschel, S., Meister, K., Haluza, D., Martin-Olmedo, P., Medina, S., Aphekom group, 2013. Assessing the public health impacts of urban air pollution in 25 European cities: results of the Aphekom project. *Sci. Total Environ.* 449, 390–400. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.01.077>

Peng, Y., Dong, Y., Li, X., Liu, X., Dai, J., Chen, C., Dong, Z., Du, C., Wang, Z., 2017. Different Characteristics of New Particle Formation Events at Two Suburban Sites in Northern China. *Atmosphere* 8, 258. <https://doi.org/10.3390/atmos8120258>

Pierce, J.R., Adams, P.J., 2009. Uncertainty in global CCN concentrations from uncertain aerosol nucleation and primary emission rates. *Atmospheric Chem. Phys.* 9, 1339–1356. <https://doi.org/10.5194/acp-9-1339-2009>

Pikridas, M., Sciare, J., Freutel, F., Crumeyrolle, S., von der Weiden-Reinmueller, S.-L., Borbon, A., Schwarzenboeck, A., Merkel, M., Crippa, M., Kostenidou, E., Psichoudaki, M., Hildebrandt, L., Engelhart, G.J., Petäjä, T., Prevot, A.S.H., Drewnick, F., Baltensperger, U., Wiedensohler, A., Kulmala, M., Beekmann, M., Pandis, S.N., 2015. In situ formation and spatial variability of particle number concentration in a European megacity. *Atmospheric Chem. Phys.* 15, 10219–10237. <https://doi.org/10.5194/acp-15-10219-2015>

Pio, C.A., Cardoso, J.G., Cerqueira, M.A., Calvo, A., Nunes, T.V., Alves, C.A., Custódio, D., Almeida, S.M., Almeida-Silva, M., 2014. Seasonal variability of aerosol concentration and size distribution in Cape Verde using a continuous aerosol optical spectrometer. *Front. Environ. Sci.* 2.

Pitchford, M., Malm, W., Schichtel, B., Kumar, N., Lowenthal, D., Hand, J., 2007. Revised Algorithm for Estimating Light Extinction from IMPROVE Particle Speciation Data. *J. Air Waste Manag. Assoc.* 57, 1326–1336. <https://doi.org/10.3155/1047-3289.57.11.1326>

Pitz, M., Schmid, O., Heinrich, J., Birmili, W., Maguhn, J., Zimmermann, R., Wichmann, H.-E., Peters, A., Cyrys, J., 2008. Seasonal and Diurnal Variation of PM_{2.5} Apparent Particle Density in Urban Air in Augsburg, Germany. *Environ. Sci. Technol.* 42, 5087–5093. <https://doi.org/10.1021/es7028735>

Planche, C., Wobrock, W., Flossmann, A.I., Tridon, F., Van Baelen, J., Pointin, Y., Hagen, M., 2010. The influence of aerosol particle number and hygroscopicity on the evolution of convective cloud systems and their precipitation: A numerical study based on the COPS observations on 12 August 2007. *Atmospheric Res.* 98, 40–56. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2010.05.003>

Politis, 2013. Ultrafine particles (UFP) and health effects. Dangerous. Like no other PM? Review and analysis. *Glob. NEST J.* 10, 439–452. <https://doi.org/10.30955/gnj.000579>

Rahmani, M., Crumeyrolle, S., Allegri-Martiny, N., Rouvoy, R., Taherkordi, A., 2024. PMFORECAST: Leveraging Temporal LSTM to Deliver In situ Air Quality Predictions. *Atmos. Environ.*

Rakotonirinjanahary, V., Crumeyrolle, S., Bogdan, M., Hanoune, B., To be submitted. A NOVEL METHOD FOR ESTABLISHING TYPICAL DAILY PROFILE OF PM CONCENTRATIONS IN UNDERGROUND RAILWAY STATIONS.

Ramabhadran, T.E., Peterson, T.W., Seinfeld, J.H., 1976. Dynamics of aerosol coagulation and condensation. *AIChE J.* 22, 840–851. <https://doi.org/10.1002/aic.690220505>

Ramanathan, V., Crutzen, P.J., Kiehl, J.T., Rosenfeld, D., 2001. Aerosols, Climate, and the Hydrological Cycle. *Science* 294, 2119–2124. <https://doi.org/10.1126/science.1064034>

Randriamiarisoa, H., Chazette, P., Couvert, P., Sanak, J., Mégie, G., 2006. Relative humidity impact on aerosol parameters in a Paris suburban area. *Atmos Chem Phys* 6, 1389–1407. <https://doi.org/10.5194/acp-6-1389-2006>

Redelsperger, J.-L., Diedhiou, A., Flamant, C., Janicot, S., Lafore, J.-P., Lebel, T., Polcher, J., Bourlès, B., Caniaux, G., Rosnay, P. de, Desbois, M., Eymard, L., Fontaine, B., Geneau, I., Ginoux, K., Hoepffner, M., Kane, C.S.E., Law, K.S., Mari, C., Marticorena, B., Mougin, É., Pelon, J., Peugeot, C., Protat, A., Roux, F., Sultan, B., Akker, E. van den, 2006. Amma, une étude multidisciplinaire de la mousson ouest-africaine. *La Météorologie* 54, 22. <https://doi.org/10.4267/2042/20098>

Reutter, P., Su, H., Trentmann, J., Simmel, M., Rose, D., Gunthe, S.S., Wernli, H., Andreae, M.O., Pöschl, U., 2009. Aerosol- and updraft-limited regimes of cloud droplet formation: influence of particle number, size and hygroscopicity on the activation of cloud condensation nuclei (CCN). *Atmospheric Chem. Phys.* 9, 7067–7080. <https://doi.org/10.5194/acp-9-7067-2009>

Richardson, C.B., Spann, J.F., 1984. Measurement of the water cycle in a levitated ammonium sulfate particle. *J. Aerosol Sci.* 15, 563–571. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(84\)90019-3](https://doi.org/10.1016/0021-8502(84)90019-3)

Rissler, J., Nordin, E.Z., Eriksson, A.C., Nilsson, P.T., Frosch, M., Sporre, M.K., Wierzbicka, A., Svenningsson, B., Löndahl, J., Messing, M.E., Sjogren, S., Hemmingsen, J.G., Loft, S., Pagels, J.H., Swietlicki, E., 2014. Effective Density and Mixing State of Aerosol Particles in a Near-Traffic Urban Environment. *Environ. Sci. Technol.* 48, 6300–6308. <https://doi.org/10.1021/es5000353>

Roberts, G.C., Andreae, M.O., Zhou, J., Artaxo, P., 2001. Cloud condensation nuclei in the Amazon Basin: “marine” conditions over a continent? *Geophys. Res. Lett.* 28, 2807–2810. <https://doi.org/10.1029/2000GL012585>

Robinson, A.L., Donahue, N.M., Shrivastava, M.K., Weitkamp, E.A., Sage, A.M., Grieshop, A.P., Lane, T.E., Pierce, J.R., Pandis, S.N., 2007. Rethinking Organic Aerosols: Semivolatile Emissions and Photochemical Aging. *Science* 315, 1259–1262. <https://doi.org/10.1126/science.1133061>

Rogers, R.R., 1975. An elementary parcel model with explicit condensation and supersaturation. *Atmosphere* 13, 192–204. <https://doi.org/10.1080/00046973.1975.9648397>

Roig Rodelas, R., Chakraborty, A., Perdrix, E., Tison, E., Riffault, V., 2019. Real-time assessment of wintertime organic aerosol characteristics and sources at a suburban site in northern France. *Atmos. Environ.* 203, 48–61. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.01.035>

Rose, C., Sellegri, K., Asmi, E., Hervo, M., Freney, E., Colomb, A., Junninen, H., Duplissy, J., Sipilä, M., Kontkanen, J., Lehtipalo, K., Kulmala, M., 2015a. Major contribution of neutral clusters to new particle formation at the interface between the boundary layer and the free troposphere. *Atmospheric Chem. Phys.* 15, 3413–3428. <https://doi.org/10.5194/acp-15-3413-2015>

Rose, C., Sellegri, K., Freney, E., Dupuy, R., Colomb, A., Pichon, J.-M., Ribeiro, M., Bourianne, T., Burnet, F., Schwarzenboeck, A., 2015b. Airborne measurements of new particle

formation in the free troposphere above the Mediterranean Sea during the HYMEX campaign. *Atmospheric Chem. Phys.* 15, 10203–10218. <https://doi.org/10.5194/acp-15-10203-2015>

Rosenfeld, D., Lohmann, U., Raga, G.B., O'Dowd, C.D., Kulmala, M., Fuzzi, S., Reissell, A., Andreae, M.O., 2008. Flood or Drought: How Do Aerosols Affect Precipitation? *Science* 321, 1309–1313. <https://doi.org/10.1126/science.1160606>

Russell, L.M., Lenschow, D.H., Laursen, K.K., Krummel, P.B., Siems, S.T., Bandy, A.R., Thornton, D.C., Bates, T.S., 1998. Bidirectional mixing in an ACE 1 marine boundary layer overlain by a second turbulent layer. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 103, 16411–16432. <https://doi.org/10.1029/97JD03437>

Russell, P.B., Bergstrom, R.W., Shinozuka, Y., Clarke, A.D., DeCarlo, P.F., Jimenez, J.L., Livingston, J.M., Redemann, J., Dubovik, O., Strawa, A., 2010. Absorption Angstrom Exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition. *Atmospheric Chem. Phys.* 10, 1155–1169. <https://doi.org/10.5194/acp-10-1155-2010>

Salimi, F., Rahman, M.M., Clifford, S., Ristovski, Z., Morawska, L., 2017. Nocturnal new particle formation events in urban environments. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 521–530. <https://doi.org/10.5194/acp-17-521-2017>

Salma, I., Németh, Z., Kerminen, V.-M., Aalto, P., Nieminen, T., Weidinger, T., Molnár, Á., Imre, K., Kulmala, M., 2016. Regional effect on urban atmospheric nucleation. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 8715–8728. <https://doi.org/10.5194/acp-16-8715-2016>

Salma, I., Varga, V., Németh, Z., 2017. Quantification of an atmospheric nucleation and growth process as a single source of aerosol particles in a city. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 15007–15017. <https://doi.org/10.5194/acp-17-15007-2017>

Sato, M., Hansen, J., Koch, D., Lacis, A., Ruedy, R., Dubovik, O., Holben, B., Chin, M., Novakov, T., 2003. Global atmospheric black carbon inferred from AERONET. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 100, 6319–6324. <https://doi.org/10.1073/pnas.0731897100>

Schaap, M., Apituley, A., Timmermans, R.M.A., Koelemeijer, R.B.A., de Leeuw, G., 2009. Exploring the relation between aerosol optical depth and PM_{2.5} at Cabauw, the Netherlands. *Atmospheric Chem. Phys.* 9, 909–925. <https://doi.org/10.5194/acp-9-909-2009>

Schäfer, K., Harbusch, A., Emeis, S., Koepke, P., Wiegner, M., 2008. Correlation of aerosol mass near the ground with aerosol optical depth during two seasons in Munich. *Atmos. Environ.* 42, 4036–4046. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.01.060>

Schkolnik, G., Chand, D., Hoffer, A., Andreae, M.O., Erlick, C., Swietlicki, E., Rudich, Y., 2007. Constraining the density and complex refractive index of elemental and organic carbon in biomass burning aerosol using optical and chemical measurements. *Atmos. Environ.* 41, 1107–1118. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.09.035>

Schlag, P., Kiendler-Scharr, A., Blom, M.J., Canonaco, F., Henzing, J.S., Moerman, M., Prévôt, A.S.H., Holzinger, R., 2016. Aerosol source apportionment from 1-year measurements at the CESAR tower in Cabauw, the Netherlands. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 8831–8847. <https://doi.org/10.5194/acp-16-8831-2016>

Schmeisser, L., Andrews, E., Ogren, J.A., Sheridan, P., Jefferson, A., Sharma, S., Kim, J.E., Sherman, J.P., Sorribas, M., Kalapov, I., Arsov, T., Angelov, C., Mayol-Bracero, O.L., Labuschagne, C., Kim, S.-W., Hoffer, A., Lin, N.-H., Chia, H.-P., Bergin, M., Sun, J., Liu, P., Wu, H., 2017. Classifying aerosol type using in situ surface spectral aerosol optical properties.

- Atmospheric Chem. Phys. 17, 12097–12120. <https://doi.org/10.5194/acp-17-12097-2017>
- Schuster, G.L., 2005. Inferring black carbon content and specific absorption from Aerosol Robotic Network (AERONET) aerosol retrievals. *J. Geophys. Res.* 110. <https://doi.org/10.1029/2004JD004548>
- Schuster, G.L., Dubovik, O., Arola, A., 2016. Remote sensing of soot carbon – Part 1: Distinguishing different absorbing aerosol species. *Atmospheric Chem. Phys.* 16, 1565–1585. <https://doi.org/10.5194/acp-16-1565-2016>
- Schuster, G.L., Espinosa, W.R., Ziemba, L.D., Beyersdorf, A.J., Rocha-Lima, A., Anderson, B.E., Martins, J.V., Dubovik, O., Ducos, F., Fuertes, D., Lapyonok, T., Shook, M., Derimian, Y., Moore, R.H., 2019. A Laboratory Experiment for the Statistical Evaluation of Aerosol Retrieval (STEAR) Algorithms. *Remote Sens.* 11, 498. <https://doi.org/10.3390/rs11050498>
- Schwartz, J., Dockery, D.W., Neas, L.M., 1996. Is Daily Mortality Associated Specifically with Fine Particles? *J. Air Waste Manag. Assoc.* 46, 927–939. <https://doi.org/10.1080/10473289.1996.10467528>
- Schwartz, S.E., Slingo, A., 1996. Enhanced Shortwave Cloud Radiative Forcing Due To Anthropogenic Aerosols, in: Crutzen, P.J., Ramanathan, V. (Eds.), *Clouds, Chemistry and Climate*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, pp. 191–236. https://doi.org/10.1007/978-3-642-61051-6_9
- Schwarzenboeck, A., Heintzenberg, J., Mertes, S., 2000. Incorporation of aerosol particles between 25 and 850 nm into cloud elements: measurements with a new complementary sampling system. *Atmospheric Res.* 52, 241–260. [https://doi.org/10.1016/S0169-8095\(99\)00034-4](https://doi.org/10.1016/S0169-8095(99)00034-4)
- Sciare, J., Oikonomou, K., Cachier, H., Mihalopoulos, N., Andreae, M.O., Maenhaut, W., Sarda-Estève, R., 2005. Aerosol mass closure and reconstruction of the light scattering coefficient over the Eastern Mediterranean Sea during the MINOS campaign. *Atmospheric Chem. Phys.* 5, 2253–2265. <https://doi.org/10.5194/acp-5-2253-2005>
- Seigneur, C., Saxena, P., 1988. A theoretical investigation of sulfate formation in clouds. *Atmospheric Environ.* 1967 22, 101–115. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(88\)90303-4](https://doi.org/10.1016/0004-6981(88)90303-4)
- Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2016. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, Wiley. ed.
- Sellegri, K., Laj, P., Dupuy, R., Legrand, M., Preunkert, S., Putaud, J.-P., 2003. Size-dependent scavenging efficiencies of multicomponent atmospheric aerosols in clouds. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 108. <https://doi.org/10.1029/2002JD002749>
- Sellegri, K., Rose, C., Marinoni, A., Lupi, A., Wiedensohler, A., Andrade, M., Bonasoni, P., Laj, P., 2019. New Particle Formation: A Review of Ground-Based Observations at Mountain Research Stations. *Atmosphere* 10, 493. <https://doi.org/10.3390/atmos10090493>
- Shamjad, P.M., Tripathi, S.N., Thamban, N.M., Vreeland, H., 2016. Refractive Index and Absorption Attribution of Highly Absorbing Brown Carbon Aerosols from an Urban Indian City-Kanpur. *Sci. Rep.* 6, 37735. <https://doi.org/10.1038/srep37735>
- Shine, K., 2000. Radiative Forcing of Climate Change. *Space Sci. Rev.* 94, 363–373. <https://doi.org/10.1023/A:1026752230256>

Sogacheva, L., Hamed, A., Facchini, M.C., Kulmala, M., Laaksonen, A., 2007. Relation of air mass history to nucleation events in Po Valley, Italy, using back trajectories analysis. *Atmos Chem Phys* 15.

Speer, R.E., Edney, E.O., Kleindienst, T.E., 2003. Impact of organic compounds on the concentrations of liquid water in ambient PM_{2.5}. *J. Aerosol Sci.* 34, 63–77. [https://doi.org/10.1016/S0021-8502\(02\)00152-0](https://doi.org/10.1016/S0021-8502(02)00152-0)

Stokes, R.H., Robinson, R.A., 1966. Interactions in Aqueous Nonelectrolyte Solutions. I. Solute-Solvent Equilibria. *J. Phys. Chem.* 70, 2126–2131. <https://doi.org/10.1021/j100879a010>

Svenningsson, B., Rissler, J., Swietlicki, E., Mircea, M., Bilde, M., Facchini, M.C., Decesari, S., Fuzzi, S., Zhou, J., Mønster, J., Rosenørn, T., 2006. Hygroscopic growth and critical supersaturations for mixed aerosol particles of inorganic and organic compounds of atmospheric relevance. *Atmos Chem Phys* 6, 1937–1952. <https://doi.org/10.5194/acp-6-1937-2006>

Tang, I.N., 1996. Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 101, 19245–19250. <https://doi.org/10.1029/96JD03003>

Tang, I.N., Munkelwitz, H.R., Davis, J.G., 1978. Aerosol growth studies — IV. Phase transformation of mixed salt aerosols in a moist atmosphere. *J. Aerosol Sci.* 9, 505–511. [https://doi.org/10.1016/0021-8502\(78\)90015-0](https://doi.org/10.1016/0021-8502(78)90015-0)

Tao, J., Surapipith, V., Han, Z., Prapamontol, T., Kawichai, S., Zhang, L., Zhang, Z., Wu, Y., Li, Jiawei, Li, Jie, Yang, Y., Zhang, R., 2020. High mass absorption efficiency of carbonaceous aerosols during the biomass burning season in Chiang Mai of northern Thailand. *Atmos. Environ.* 240, 117821. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117821>

Terzano, C., Di Stefano, F., Conti, V., Graziani, E., Petroianni, A., 2010. Air pollution ultrafine particles: toxicity beyond the lung. *Eur. Rev. Med. Pharmacol. Sci.* 14, 809–821.

Thangavel, P., Park, D., Lee, Y.-C., 2022. Recent Insights into Particulate Matter (PM_{2.5})-Mediated Toxicity in Humans: An Overview. *Int. J. Environ. Res. Public Health* 19, 7511. <https://doi.org/10.3390/ijerph19127511>

Titos, G., Burgos, M.A., Zieger, P., Alados-Arboledas, L., Baltensperger, U., Jefferson, A., Sherman, J., Weingartner, E., Henzing, B., Luoma, K., O’Dowd, C., Wiedensohler, A., Andrews, E., 2021. A global study of hygroscopicity-driven light-scattering enhancement in the context of other in situ aerosol optical properties. *Atmospheric Chem. Phys.* 21, 13031–13050. <https://doi.org/10.5194/acp-21-13031-2021>

Titos, G., Foyo-Moreno, I., Lyamani, H., Querol, X., Alastuey, A., Alados-Arboledas, L., 2012. Optical properties and chemical composition of aerosol particles at an urban location: An estimation of the aerosol mass scattering and absorption efficiencies. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 117, D04206. <https://doi.org/10.1029/2011JD016671>

Tobon, Y.A., Hajj, D.E., Seng, S., Bengrad, F., Moreau, M., Visez, N., Chiapello, I., Crumeyrolle, S., Choël, M., 2021. Impact of the particle mixing state on the hygroscopicity of internally mixed sodium chloride–ammonium sulfate single droplets: a theoretical and experimental study. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 23, 14391–14403. <https://doi.org/10.1039/D1CP01574E>

Toon, O.B., Maring, H., Dibb, J., Ferrare, R., Jacob, D.J., Jensen, E.J., Luo, Z.J., Mace,

G.G., Pan, L.L., Pfister, L., Rosenlof, K.H., Redemann, J., Reid, J.S., Singh, H.B., Thompson, A.M., Yokelson, R., Minnis, P., Chen, G., Jucks, K.W., Pszenny, A., 2016. Planning, implementation, and scientific goals of the Studies of Emissions and Atmospheric Composition, Clouds and Climate Coupling by Regional Surveys (SEAC4RS) field mission. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 121, 4967–5009. <https://doi.org/10.1002/2015JD024297>

Tørseth, K., Aas, W., Breivik, K., Fjæraa, A.M., Fiebig, M., Hjellbrekke, A.G., Lund Myhre, C., Solberg, S., Yttri, K.E., 2012. Introduction to the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) and observed atmospheric composition change during 1972–2009. *Atmospheric Chem. Phys.* 12, 5447–5481. <https://doi.org/10.5194/acp-12-5447-2012>

Tsai, T.-C., Jeng, Y.-J., Chu, D.A., Chen, J.-P., Chang, S.-C., 2011. Analysis of the relationship between MODIS aerosol optical depth and particulate matter from 2006 to 2008. *Atmos. Environ.* 45, 4777–4788.

Tsai, Y.-T., Zeng, Y.-R., Chang, Y.-S., 2018. Air Pollution Forecasting Using RNN with LSTM, in: 2018 IEEE 16th Intl Conf on Dependable, Autonomous and Secure Computing, 16th Intl Conf on Pervasive Intelligence and Computing, 4th Intl Conf on Big Data Intelligence and Computing and Cyber Science and Technology Congress(DASC/PiCom/DataCom/CyberSciTech). Presented at the 2018 IEEE 16th Intl Conf on Dependable, Autonomous and Secure Computing, 16th Intl Conf on Pervasive Intelligence and Computing, 4th Intl Conf on Big Data Intelligence and Computing and Cyber Science and Technology Congress(DASC/PiCom/DataCom/CyberSciTech), pp. 1074–1079. <https://doi.org/10.1109/DASC/PiCom/DataCom/CyberSciTec.2018.00178>

Tsyro, S.G., 2005. To what extent can aerosol water explain the discrepancy between model calculated and gravimetric PM10 and PM2.5? *Atmos Chem Phys* 19.

Tuch, T.M., Herbarth, O., Franck, U., Peters, A., Wehner, B., Wiedensohler, A., Heintzenberg, J., 2006. Weak correlation of ultrafine aerosol particle concentrations <800 nm between two sites within one city. *J. Expo. Sci. Environ. Epidemiol.* 16, 486–490. <https://doi.org/10.1038/sj.jes.7500469>

Tunved, P., Hansson, H.-C., Kerminen, V.-M., Ström, J., Dal Maso, M., Lihavainen, H., Viisanen, Y., Aalto, P.P., Komppula, M., Kulmala, M., 2006. High natural aerosol loading over boreal forests. *Science* 312, 261–263. <https://doi.org/10.1126/science.1123052>

Twohy, C.H., Coakley, J.A., Tahnk, W.R., 2009. Effect of changes in relative humidity on aerosol scattering near clouds. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 114, n/a–n/a. <https://doi.org/10.1029/2008JD010991>

Twomey, S., 1977. The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds. *J. Atmospheric Sci.* 34, 1149–1152. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1977\)034<1149:TIO-POT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1977)034<1149:TIO-POT>2.0.CO;2)

Valentini, S., Bernardoni, V., Massabò, D., Prati, P., Valli, G., Vecchi, R., 2018. Tailored coefficients in the algorithm to assess reconstructed light extinction at urban sites: A comparison with the IMPROVE revised approach. *Atmos. Environ.* 172, 168–176. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.10.038>

van Donkelaar, A., Martin, R.V., Park, R.J., 2006. Estimating ground-level PM2.5 using aerosol optical depth determined from satellite remote sensing. *J. Geophys. Res. Atmospheres*

111. <https://doi.org/10.1029/2005JD006996>

Velazquez-Garcia, A., Crumeyrolle, S., de Brito, J.F., Tison, E., Bourriane, E., Chiapello, I., Riffault, V., 2023. Deriving composition-dependent aerosol absorption, scattering and extinction mass efficiencies from multi-annual high time resolution observations in Northern France. *Atmos. Environ.* 298, 119613. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2023.119613>

Velazquez-Garcia, A., De Brito, J.F., Crumeyrolle, S., Chiapello, I., Riffault, V., 2024. Assessment of light-absorbing carbonaceous aerosol origins and properties at the ATOLL site in Northern France (preprint). *Atmospheric Aerosols (AA)*. <https://doi.org/10.5194/ar-2024-5>

Vidot, J., Santer, R., Ramon, D., 2007. Atmospheric particulate matter (PM) estimation from SeaWiFS imagery. *Remote Sens. Environ.* 111, 1–10. <https://doi.org/10.1016/j.rse.2007.03.009>

Wagner, R., Ajtai, T., Kandler, K., Lieke, K., Linke, C., Müller, T., Schnaiter, M., Vragel, M., 2012. Complex refractive indices of Saharan dust samples at visible and near UV wavelengths: a laboratory study. *Atmospheric Chem. Phys.* 12, 2491–2512. <https://doi.org/10.5194/acp-12-2491-2012>

Waked, A., Bourin, A., Michoud, V., Perdrix, E., Alleman, L.Y., Sauvage, S., Delaunay, T., Vermeesch, S., Petit, J.-E., Riffault, V., 2018. Investigation of the geographical origins of PM₁₀ based on long, medium and short-range air mass back-trajectories impacting Northern France during the period 2009–2013. *Atmos. Environ.* 193, 143–152. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.08.015>

Walcek, C.J., Taylor, G.R., 1986. A Theoretical Method for Computing Vertical Distributions of Acidity and Sulfate Production within Cumulus Clouds. *J. Atmospheric Sci.* 43, 339–355. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1986\)043<0339:ATMFCV>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1986)043<0339:ATMFCV>2.0.CO;2)

Wang, Q., Sun, Y., Jiang, Q., Du, W., Sun, C., Fu, P., Wang, Z., 2015. Chemical composition of aerosol particles and light extinction apportionment before and during the heating season in Beijing, China. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 120, 12708–12722. <https://doi.org/10.1002/2015JD023871>

Wang, S., Crumeyrolle, S., Zhao, W., Xu, X., Fang, B., Derimian, Y., Chen, C., Chen, W., Zhang, W., Huang, Y., Deng, X., Tong, Y., 2021. Real-time retrieval of aerosol chemical composition using effective density and the imaginary part of complex refractive index. *Atmos. Environ.* 245, 117959. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2020.117959>

Wang, S., Zhao, W., Xu, X., Fang, B., Zhang, Q., Qian, X., Zhang, W., Chen, W., Pu, W., Wang, X., 2017. Dependence of columnar aerosol size distribution, optical properties, and chemical components on regional transport in Beijing. *Atmos. Environ.* 169, 128–139. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.09.016>

Wang, X., Heald, C.L., Sedlacek, A.J., de Sá, S.S., Martin, S.T., Alexander, M.L., Watson, T.B., Aiken, A.C., Springston, S.R., Artaxo, P., 2016. Deriving brown carbon from multi-wavelength absorption measurements: method and application to AERONET and Aethalometer observations. *Atmos Chem Phys* 16, 12733–12752. <https://doi.org/10.5194/acp-16-12733-2016>

Wang, Z., Wu, Z., Yue, D., Shang, D., Guo, S., Sun, J., Ding, A., Wang, L., Jiang, J., Guo, H., Gao, J., Cheung, H.C., Morawska, L., Keywood, M., Hu, M., 2017. New particle formation in China: Current knowledge and further directions. *Sci. Total Environ.* 577, 258–266. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.10.177>

Wang, Z.B., Hu, M., Wu, Z.J., Yue, D.L., Zheng, J., Zhang, R.Y., Pei, X.Y., Paasonen, P., Dal Maso, M., Boy, M., Wiedensohler, A., 2013a. Investigation of the connections between atmospheric new particle formation and organics at an urban site of Beijing (preprint). *Aerosols/Field Measurements/Troposphere/Chemistry* (chemical composition and reactions). <https://doi.org/10.5194/acpd-13-3419-2013>

Wang, Z.B., Hu, M., Wu, Z.J., Yue, D.L., Zheng, J., Zhang, R.Y., Pei, X.Y., Paasonen, P., Dal Maso, M., Boy, M., Wiedensohler, A., 2013b. Investigation of the connections between atmospheric new particle formation and organics at an urban site of Beijing. *Atmospheric Chem. Phys. Discuss.* 13, 3419–3450. <https://doi.org/10.5194/acpd-13-3419-2013>

Warren, S.G., Hahn, C.J., London, J., Chervin, R.M., Jenne, R.L., 1988. Global distribution of total cloud cover and cloud type amounts over the ocean (No. DOE/ER-0406; NCAR/TN-317-STR). USDOE Office of Energy Research, Washington, DC (USA). Carbon Dioxide Research Div.; National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO (USA). <https://doi.org/10.2172/5415329>

Wehner, B., Wiedensohler, A., 2003. Long term measurements of submicrometer urban aerosols: statistical analysis for correlations with meteorological conditions and trace gases. *Atmospheric Chem. Phys.* 3, 867–879. <https://doi.org/10.5194/acp-3-867-2003>

Weijers, E.P., Schaap, M., Nguyen, L., Matthijssen, J., Denier van der Gon, H. a. C., ten Brink, H.M., Hoogerbrugge, R., 2011. Anthropogenic and natural constituents in particulate matter in the Netherlands. *Atmospheric Chem. Phys.* 11, 2281–2294. <https://doi.org/10.5194/acp-11-2281-2011>

Wexler, A.S., Seinfeld, J.H., 1991. Second-generation inorganic aerosol model. *Atmospheric Environ. Part Gen. Top.* 25, 2731–2748. [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(91\)90203-J](https://doi.org/10.1016/0960-1686(91)90203-J)

Wiedensohler, A., Cheng, Y.F., Nowak, A., Wehner, B., Achtert, P., Berghof, M., Birmili, W., Wu, Z.J., Hu, M., Zhu, T., Takegawa, N., Kita, K., Kondo, Y., Lou, S.R., Hofzumahaus, A., Holland, F., Wahner, A., Gunthe, S.S., Rose, D., Su, H., Pöschl, U., 2009. Rapid aerosol particle growth and increase of cloud condensation nucleus activity by secondary aerosol formation and condensation: A case study for regional air pollution in northeastern China. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 114. <https://doi.org/10.1029/2008JD010884>

Wood, R., 2012. Stratocumulus Clouds. *Mon. Weather Rev.* 140, 2373–2423. <https://doi.org/10.1175/MWR-D-11-00121.1>

Wurzler, S., Reisin, T.G., Levin, Z., 2000. Modification of mineral dust particles by cloud processing and subsequent effects on drop size distributions. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 105, 4501–4512.

Xi, J., Longest, P.W., 2008. Effects of oral airway geometry characteristics on the diffusional deposition of inhaled nanoparticles. *J. Biomech. Eng.* 130, 011008. <https://doi.org/10.1115/1.2838039>

Xie, Y., Ding, A., Nie, W., Mao, H., Qi, X., Huang, X., Xu, Z., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Chi, X., Virkkula, A., Boy, M., Xue, L., Guo, J., Sun, J., Yang, X., Kulmala, M., Fu, C., 2015. Enhanced sulfate formation by nitrogen dioxide: Implications from in situ observations at the SORPES station. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 120, 12679–12694. <https://doi.org/10.1002/2015JD023607>

Xie, Y., Ye, X., Ma, Z., Tao, Y., Wang, R., Zhang, C., Yang, X., Chen, J., Chen, H.,

2017. Insight into winter haze formation mechanisms based on aerosol hygroscopicity and effective density measurements. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 7277–7290. <https://doi.org/10.5194/acp-17-7277-2017>

Xing, L., Fu, T.-M., Cao, J.J., Lee, S.C., Wang, G.H., Ho, K.F., Cheng, M.-C., You, C.-F., Wang, T.J., 2013. Seasonal and spatial variability of the OM/OC mass ratios and high regional correlation between oxalic acid and zinc in Chinese urban organic aerosols. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 4307–4318. <https://doi.org/10.5194/acp-13-4307-2013>

Yao, L., Garmash, O., Bianchi, F., Zheng, J., Yan, C., Kontkanen, J., Junninen, H., Mazon, S.B., Ehn, M., Paasonen, P., Sipilä, M., Wang, M., Wang, X., Xiao, S., Chen, H., Lu, Y., Zhang, B., Wang, D., Fu, Q., Geng, F., Li, L., Wang, H., Qiao, L., Yang, X., Chen, J., Kerminen, V.-M., Petäjä, T., Worsnop, D.R., Kulmala, M., Wang, L., 2018. Atmospheric new particle formation from sulfuric acid and amines in a Chinese megacity. *Science* 361, 278–281. <https://doi.org/10.1126/science.aao4839>

Yao, T., Huang, X., He, L., Hu, M., Sun, T., Xue, L., Lin, Y., Zeng, L., Zhang, Y., 2010. High time resolution observation and statistical analysis of atmospheric light extinction properties and the chemical speciation of fine particulates. *Sci. China Chem.* 53, 1801–1808. <https://doi.org/10.1007/s11426-010-4006-z>

Yli-Juuti, T., Nieminen, T., Hirsikko, A., Aalto, P.P., Asmi, E., Hörrak, U., Manninen, H.E., Patokoski, J., Dal Maso, M., Petäjä, T., Rinne, J., Kulmala, M., Riipinen, I., 2011. Growth rates of nucleation mode particles in Hyytiälä during 2003–2009: variation with particle size, season, data analysis method and ambient conditions. *Atmospheric Chem. Phys.* 11, 12865–12886. <https://doi.org/10.5194/acp-11-12865-2011>

Yoon, Y.J., Ceburnis, D., Cavalli, F., Jourdan, O., Putaud, J.P., Facchini, M.C., Decesari, S., Fuzzi, S., Sellegri, K., Jennings, S.G., O’Dowd, C.D., 2007. Seasonal characteristics of the physicochemical properties of North Atlantic marine atmospheric aerosols. *J. Geophys. Res. Atmospheres* 112. <https://doi.org/10.1029/2005JD007044>

Yuan, E., Yang, G., 2023. SA–EMD–LSTM: A novel hybrid method for long-term prediction of classroom PM_{2.5} concentration. *Expert Syst. Appl.* 230, 120670. <https://doi.org/10.1016/j.eswa.2023.120670>

Yue, D.L., Hu, M., Zhang, R.Y., Wu, Z.J., Su, H., Wang, Z.B., Peng, J.F., He, L.Y., Huang, X.F., Gong, Y.G., Wiedensohler, A., 2011. Potential contribution of new particle formation to cloud condensation nuclei in Beijing. *Atmos. Environ.* 45, 6070–6077. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.07.037>

Zhai, J., Lu, X., Li, L., Zhang, Q., Zhang, C., Chen, H., Yang, X., Chen, J., 2017. Size-resolved chemical composition, effective density, and optical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chem. Phys.* 17, 7481–7493. <https://doi.org/10.5194/acp-17-7481-2017>

Zhang, B., Wu, B., Liu, J., 2020. PM_{2.5} pollution-related health effects and willingness to pay for improved air quality: Evidence from China’s prefecture-level cities. *J. Clean. Prod.* 273, 122876. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2020.122876>

Zhang, R., Jing, J., Tao, J., Hsu, S.-C., Wang, G., Cao, J., Lee, C.S.L., Zhu, L., Chen, Z., Zhao, Y., Shen, Z., 2013. Chemical characterization and source apportionment of PM_{2.5} in Beijing: seasonal perspective. *Atmospheric Chem. Phys.* 13, 7053–7074. <https://doi.org/10.5194/acp-13-7053-2013>

Zhang, R., Khalizov, A.F., Pagels, J., Zhang, D., Xue, H., McMurry, P.H., 2008. Variability in morphology, hygroscopicity, and optical properties of soot aerosols during atmospheric processing. *Proc. Natl. Acad. Sci.* 105, 10291–10296.

Zhang, Y., Li, Z., Sun, Y., Lv, Y., Xie, Y., 2018. Estimation of atmospheric columnar organic matter (OM) mass concentration from remote sensing measurements of aerosol spectral refractive indices. *Atmos. Environ.* 179, 107–117. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.02.010>

Zhou, Y., Wang, Q., Zhang, X., Wang, Y., Liu, S., Wang, M., Tian, J., Zhu, C., Huang, R., Zhang, Q., Zhang, T., Zhou, J., Dai, W., Cao, J., 2019. Exploring the impact of chemical composition on aerosol light extinction during winter in a heavily polluted urban area of China. *J. Environ. Manage.* 247, 766–775. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2019.06.100>

CHAPITRE 6 Liste des Acronymes

AAE – Absorption Ångstrom Exponent
AAP – Appel A Projet
AAPG - Appel A Projet Générique
ACMAP - Atmospheric Composition Modeling and Analysis Program
ACSM - Aerosol Chemical Speciation Monitor
ACTRIS – Aerosol, Clouds and Trace gas Research Infrastructure
ADAV – Association du Droit Au Vélo
AE – Ångstrom Exponent
E-AIM (Extended Aerosol Inorganics Model)
AMMA – Analyse Multidisciplinaire de la Mousson Africaine
AMS – Aerosol Mass Spectrometer
cToF-AMS- Compact Time of Flight Aerosol Mass Spectrometer
AN – Ammonium nitrate
ANR – Agence Nationale de la Recherche
AOD – Aerosol Optical Depth
APS - Aerosol Particle Sizer
AQ – Air Quality
AQG – Air Quality Guidelines
AREA - Aerosol at the hearT of the Earth/Atmosphere system
AS – Ammonium sulfate
ATOLL – Atmospheric Observation in liLLe platform
ATR - Avions de transport régional
BB – Biomass Burning
BBOA - Biomass Burning Organic Aerosol
BC – Black Carbon
BC_{ff} – Black Carbon from fossil fuel
BC_{wb} – Black Carbon from wood burning
BrC – Brown Carbon
CAI – Community Aerosol Inlet
CAPPA - Chemical and Physical Properties of the Atmosphere
CAPS - Cavity Attenuated Phase Shift
CCN – Cloud Condensation Nuclei
CCNC - Cloud Condensation Nuclei Counter
CDNC – Cloud Droplet Number Concentration
CDP - Cross-Disciplinary Project
CEA - Cavity Enhanced Albedometer
CERI EE - Centre for Educational Research and Innovation : Energy and Environment
CL – Couche limite
CLAAS- 3 : Third edition of Cloud property dAtAset using SEVIRI
COV – Composé Organique Volatil
CPC – Condensation Particle Counter
CPER - Contrats de Plan État-Région
CRI – Complex Refractive Index
CSIRO - Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation
CVI – Counterflow Virtual Impactor
DISCOVER-AQ - Deriving Information on Surface Conditions from Column and VERTically Resolved Observations Relevant to Air Quality

DRH – Deliquescence Relative Humidity
 EAE – Extinction Ångstrom Exponent
 eBC – Equivalent Black Carbon
 EFS - Enceintes Ferroviaire Souterraine
 EPA - Environmental Protection Agency
 EPOUV – ExPOsome à l’UV et à la pollution en région Hauts de France (EPOUV)ER
 ERH – Efflorescence Relative Humidity
 EUCAARI - European Integrated Project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions
 FNP - Formation de Nouvelles Particules
 WMO-GAW - World Meteorological Organization-Global Atmosphere Watch
 GIEC - Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat
 GR – Growth Rate
 HdF – Hauts-de-France
 IA – Intelligence Artificielle
 IMPROVE - Interagency Monitoring of Protected Visual Environments
 INTERPLAY IN-siTu obsERvations, hysPLit, And emission inventorY
 LAS - Laser Aerosol Spectrometer
 LASIRE - Laboratoire de Spectroscopie pour les Interactions, la Réactivité et l'Environnement
 LHVP - Laboratoire d’Hygiène de la Ville de Paris
 LIMONADE - Lille MOBILE Network for Air pollution - the Dunkerque Experiments
 LIMONAIR - Lille Mobile Network for Air Pollution Study
 LSTM – Long and Short Term Memory
 LWP – Liquid Water Path
 MAAP - Multi Angle Absorption Photometer
 MABCaM - Multi-channel wavelength- resolved Albedometer for Black Carbon Measurement
 MAE – Mass Absorption Efficiency
 MD – Mineral Dust
 MDRH – Mutual Deliquescence Relative Humidity
 MEE – Mass Extinction Efficiency
 MEGAPOLI- Megacities: Emissions, urban, regional and Global Atmospheric POLLution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation
 MLR – Multiple Linear Regression
 MSE – Mass Scattering Efficiency
 NR-PM₁ – Non-refractory submicron aerosol
 NSF – Nucleation Strength Factor
 OC – Organic Carbon
 OM – Organic Matter
 OMS – Organisation Mondiale de la Santé
 PI – Principal Investigator
 PM₁ – Particulate Matter of aerodynamic diameter $\leq 1 \mu\text{m}$
 PM₁₀ – Particulate Matter of aerodynamic diameter $\leq 10 \mu\text{m}$
 PM_{2.5} – Particulate Matter of aerodynamic diameter $\leq 2.5 \mu\text{m}$
 PMF – Positive Matrix Factorization
 PNSD – Particle Number Size Distribution
 POPSU - Plateforme d’observation des projets et stratégies urbaines
 PSAP - Particle Soot Absorption Photometer
 PUF – Particule Ultra Fine
 RH – Relative Humidity
 SAE – Scattering Ångstrom Exponent

SCM - stratocumulus marin
SEVIRI - Spinning Enhanced Visible and InfraRed Imager
SIRTA - Site Instrumental de Recherche par Télédétection Atmosphérique
SMPS - Scanning Mobility Particle Sizer
SNA- Sulfate Nitrate Ammonium
SSA – Single Scattering Albedo
SSA – Single Scattering Albedo
UE – Unité d'Enseignement
VAM – Volume Aerosol Mixing
WP – Work Package
WRF - *Weather Research and Forecasting (WRF)*
ZSR - Zdanovskii-Stokes-Robinson