



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par *l'Université Toulouse III - Paul Sabatier*
Discipline ou spécialité : *Physique et Chimie de l'Atmosphère*

Présentée et soutenue par

Martin MENEGOZ

Le 3 Juillet 2009

Titre : *Modélisation globale des interactions
atmosphère-aérosols*

JURY

Robert Rosset président
Maria Kanakidou rapporteur
Yves Balkanski rapporteur
Jean-Claude Roger rapporteur
Paulo Laj examinateur
Didier Tanré examinateur
David Salas y Mélia encadrant
Michel Legrand co-directeur

Ecole doctorale : *Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace*
Unité de recherche : *CNRM/GAME, URA1357*
Directeur(s) de Thèse : *Daniel Cariolle, Michel LEGRAND*

Prologue

Ça y est, le manuscrit est rendu, la soutenance est passée, c'est la fin d'une chouette époque au pays du confit de canard et des bulletins météo gratuits. La première pensée qui me vient au moment d'écrire ces lignes me replonge dans les Hautes-Alpes, dans le bureau d'études où j'ai travaillé avant de démarrer cette thèse. A cette période, mes démarches pour trouver un financement de thèse n'avaient pas abouti, et je travaillais dans un bureau d'études à Gap, près du massif des Ecrins et de la magnifique falaise de Ceüse. Je passai donc mes journées à concevoir des réseaux hydrauliques et des ouvrages d'aménagement de rivières, ce que j'ai trouvé finalement fort intéressant, et ce qui m'a aussi permis de remettre en cause certains préjugés que j'avais sur le travail dans une entreprise privée. Cependant, un jour où je réalisais les plans de la station d'épuration de la commune d'Egalayes, je reçois un coup de fil de David, qui me propose de venir à Toulouse pour travailler sur les aérosols à Météo France. Je me lève doucement pour fermer la porte de mon bureau, gêné du fait que mon chef entende cette idée saugrenue, alors qu'il vient juste de me proposer de transformer mon CDD en CDI. Ce sujet de thèse est arrivé sur mon bureau à Gap grâce à Patrick qui connaît Pierre qui connaît David qui cherche un thésard. Je les remercie tous pour la transmission du message. Je dois beaucoup à Vincent qui m'a aussi bien aidé à cette époque, pendant mon stage de Master, mais aussi pendant mes recherches de financement de thèse. C'est grâce à lui entre autres que je vais continuer l'année prochaine dans la recherche, puisqu'il a appuyé ma candidature pour un post-doc au LGGE. Eh oui, je retourne au pays du gratin dauphinois l'année prochaine. Mais revenons à la période du début de ma thèse : c'est décidé, je quitte les tourtons – ces petits beignets fourrés du gapençais – pour aller découvrir les fameux magrets séchés du Sud-Ouest. En plus, c'est parfait, les Pyrénées sont tous près de Toulouse, ça fera de nouveaux coins où aller se ballader.

Merci tout d'abord à David de m'avoir proposé ce sujet de thèse. Une des plus grandes prouesses que tu as réalisées a été de me former efficacement en informatique. Grâce à toi, un type venu du fin fond de la vallée de la Maurienne fait maintenant tourner des modèles de l'atmosphère sur un super-calculateur ! Si me voilà convaincu que les modèles sont des outils très performants pour étudier l'atmosphère et le climat, je me rappelle aussi combien il peut être difficile de les faire fonctionner et d'interpréter les résultats. Je me souviens de simulations où apparaissaient tout à coup un panache d'aérosols au dessus du Groenland, complètement irréaliste, suite à je ne sais quel bug. Heureusement, les copains et les Pyrénées étant à proximité, une bonne bambée en ski ou une séance de « mise en bouteille » des bras dans une falaise ariégeoise me permettaient de me calmer. Je n'ai ainsi jamais jeté mon ordinateur depuis mon bureau situé au deuxième étage du CNRM... Au final, on a même réussi à faire quelques belles simulations qui m'ont permis de rédiger une thèse ! J'irai jusqu'à dire que j'ai parfois ressenti en ouvrant les fichiers d'une simulation terminée une excitation comparable à ce que l'on peut vivre lorsque l'on va « clipper » la chaîne d'une belle voie d'escalade que l'on va peut-être enchaîner ; attention toutefois à la zippette sous le relais, zone où les points parfois espacés peuvent être source d'émotions fortes...

L'originalité de mon sujet de thèse est qu'il se place à deux étages à la fois : le premier, ciblé sur l'étude des processus physico-chimiques dans l'atmosphère et le deuxième, focalisé sur l'étude du système climatique. C'est la raison pour laquelle j'ai sollicité – parfois très fortement – un grand nombre de personnes sans qui je n'aurais pas réussi grand chose et que je remercie donc beaucoup. Au premier étage, c'est Maud qui a commencé à m'expliquer, très patiemment, comment utiliser le modèle MOCAGE pour simuler les aérosols. Hubert a passé de longs moments à m'aider à intégrer dans MOCAGE la chimie du soufre, qu'Ingrid avait déjà préparé dans sa propre version de MOCAGE. Vincent-Henri, Martine et Béatrice m'ont épaulé à la fois sur de nombreuses questions techniques, mais aussi sur une multitude d'aspects scientifiques. Dirk a la capacité de réaliser ce qu'un être humain normal n'est pas capable d'envisager avec MOCAGE, et en plus avec une sérénité impressionnante. Je le remercie pour avoir mis au point des outils précieux pour ma thèse.

Au deuxième étage, je remercie Mathieu, qui m'a bien aidé à m'intégrer dans le monde de la modélisation, et avec qui c'était un vrai plaisir de partager un bureau. Nous avons eu l'occasion de partager de nombreuses discussions passionnées et passionnantes, et j'espère qu'il y en aura encore d'autres dans le futur, que ce soit dans les Alpes ou les Pyrénées. Mes nouveaux collègues de bureau, Ramdane et Benjamin, m'ont particulièrement bien épaulé pendant la dernière ligne droite. J'espère atteindre un jour le niveau de ces « champions » (prononcer le mot à l'américaine). Merci à Aurélien pour le temps qu'il a passé à m'expliquer scilab, et pour ses livraisons de canard du Gers. Je ne désespère pas revenir un de ces quatre dans le Sud-ouest pour grimper avec lui par beau temps. Merci à Fabrice de m'avoir prêté de belles chaussures pour ma soutenance. Lorsque nous entendions le réveil, les aventures partagées ensemble sur les parois pyrénéennes restent pour moi des souvenirs inoubliables. Merci beaucoup à Aurore d'avoir relu l'ensemble de ma thèse et de m'avoir ensuite apporté de précieux commentaires. Un grand merci à Virginie qui m'a parfaitement coaché pour le dernier chapitre et qui est à l'origine du « vendredi c'est permis ». Merci à Bertrand qui m'a fait comprendre, justement un vendredi soir dans un bar, qu'il ne fallait pas attendre d'avoir des résultats pour publier - ce type serait vraiment un type bien s'il faisait de l'escalade au lieu de regarder le foot à la télé -. Merci à Hervé pour ses conseils scientifiques et humains ; Ta franchise et ta manière d'aller droit au but (encore un footeux...) sont à mon avis une très bonne école pour les jeunes. Merci à Clotilde pour son enthousiasme sur les projets les plus variés. Merci à tous les collègues des soirées toulousaines. Merci à Martine pour son dynamisme dans l'organisation de ma soutenance, à Sophie pour ses compétences en informatique et en gestion des ressources en café, à Annie qui gère les pages perso, à Jean-François le boss, et à tous les collègues qui nourrissent les débats animés à la pause de 10h00. Bon courage aux nouveaux thésards, Malik, Anne-Sophie, Yannick, avec qui j'ai partagé de très bons moments.

Merci beaucoup à Maria Kanakidou, Jean-Claude Roger et Yves Balkanski ainsi qu'au reste du jury d'avoir accepté d'évaluer mon travail.

Je remercie beaucoup toute ma famille ; mes parents qui m'ont laissé libre de choisir mes chemins, mes deux frangines, qui de par leur parcours varié m'ouvrent les yeux sur d'autres sujets que la recherche et la montagne. A ce propos, je remercie les falaises d'Ariège, « Alliat », « Génat », « le Quié », celles de Saint-Antonin-Noble-Val, « Anglars », « Couyrac » et « Manjo-Carn » mais aussi « Pène-Haute » et « Suberpène », les massifs sauvages du Luchonnais et du Couserans, les cascades de Gavarnie, le superbe rocher de l'Ossau, les beaux vallons enneigés des Hautes-Pyrénées, le fabuleux calcaire espagnol de Montrebey, Rodellar et de bien d'autres vallées hispaniques. Mais tous ces lieux auraient un charme bien moindre s'ils n'étaient pas visités avec les meilleurs amis - alpins, pyrénéens ou venant d'ailleurs - ou avec Amandine, ma compagne de cordée favorite.

Résumé

Les aérosols agissent sur l'équilibre radiatif de la Terre en diffusant et en absorbant le rayonnement solaire et en interagissant avec les nuages. Une première étape pour quantifier l'impact des aérosols sur le climat est l'évaluation de la composition atmosphérique en aérosols. C'est l'objectif central de ce travail de thèse. Trois espèces sont étudiées en particulier : le sulfate, le carbone-suie et les poussières désertiques. Des simulations pluriannuelles de l'évolution de ces aérosols ont été réalisées avec le modèle de chimie-transport MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle). Dans ce cadre, la représentation du cycle du soufre a été intégrée à MOCAGE, pour permettre une description de l'aérosol sulfaté. Les simulations réalisées sont analysées en Europe ainsi qu'aux hautes latitudes Nord et Sud. L'ensemble des puits et sources est alors mis en évidence pour chacun des aérosols étudiés. Les résultats sont confrontés à des observations et à des simulations réalisées par d'autres centres de recherche, notamment ceux qui ont participé au projet international AEROCOM (AEROSol Comparison between Observation and Models). La charge de sulfate simulée apparaît très sensible à la représentation du lessivage, principal puits de cet aérosol. Différents tests de sensibilité sont réalisés, et permettent de proposer une optimisation de la paramétrisation de ce processus dans le modèle. La concentration en aérosols dans les expériences réalisées apparaît par ailleurs très sensible aux forçages météorologiques utilisés pour les simulations. Cet aspect est étudié en détail, avant de proposer une évaluation de la charge atmosphérique globale en aérosols. La dernière partie de ce travail de thèse présente une analyse des interactions entre atmosphère et aérosols dans la région Nord-Atlantique. Les champs d'aérosols élaborés grâce aux simulations MOCAGE sont utilisés pour réaliser une simulation climatique avec le modèle ARPEGE-Climat, permettant de discuter l'impact de la présence des aérosols sur la persistance des régimes de temps dans cette région. Les conclusions de cette thèse présentent les axes clés à respecter en ce qui concerne la modélisation des aérosols atmosphériques d'une part et la modélisation de leur impact sur le climat d'autre part.

Table des matières

Introduction	11
Chapitre 1 : Enjeu de l'étude des aérosols dans la compréhension du système climatique	14
1.1	<i>Les facteurs de variabilité du système climatique</i> 14
1.2	<i>Evolutions naturelles et anthropiques des aérosols atmosphériques</i> 17
1.3	<i>La modélisation des aérosols atmosphériques et de leur influence sur le climat</i> 19
1.3.1	Connaissance actuelle des processus physiques mis en jeu 19
1.3.2	Les moyens actuels disponibles à l'étude des aérosols 21
1.3.3	Evaluation de l'effet direct des aérosols anthropiques 23
1.3.4	Evaluation des effets indirects..... 29
1.4	<i>Les objectifs de cette thèse</i> 31
Chapitre 2 : Présentation du modèle de chimie-transport MOCAGE	32
2.1	<i>Historique du modèle MOCAGE</i> 33
2.2	<i>Représentation des processus dynamiques et physiques</i> 34
2.2.1	Le schéma d'advection..... 34
2.2.2	Le transport convectif..... 34
2.2.3	La diffusion 36
2.2.4	Le dépôt sec et humide des espèces gazeuses 37
2.3	<i>Modélisation de la chimie atmosphérique</i> 38
2.3.1	Le schéma chimique de MOCAGE..... 38
2.3.2	Schéma chimique du cycle du soufre 38
2.4	<i>Introduction de l'aérosol dans MOCAGE</i> 42
2.4.1	Aérosols primaires et secondaires 42
2.4.2	Représentation des distributions d'aérosols dans MOCAGE 42
2.4.3	Représentation des puits d'aérosols dans MOCAGE..... 48
2.5	<i>Description de la configuration de MOCAGE utilisée dans nos simulations</i> 54
2.5.1	Résolution horizontale..... 54
2.5.2	Résolution verticale..... 54
2.5.3	Les forçages météorologiques 55
2.5.4	Temps de calcul des simulations réalisées avec MOCAGE..... 56
2.5.5	Emissions des aérosols et des gaz 57
2.5.6	Efficacité des différents puits sur chaque type d'aérosol..... 60

Chapitre 3 :	Modélisation et observation de l'aérosol atmosphérique dans différentes régions du globe	65
3.1	<i>Le cycle du soufre dans une atmosphère polluée : cas de l'Europe</i>	66
<i>Abstract</i>		67
3.1.1	Introduction	67
3.1.2	Experimental setup	68
3.1.3	Seasonal and inter annual variability of the sulphate burden over Europe	71
3.1.4	Comparison between EMEP observations and MOCAGE outputs	80
3.1.5	Conclusions	84
3.2	<i>L'aérosol atmosphérique aux hautes latitudes</i>	86
3.2.1	Antarctique	87
3.2.2	Arctique	94
3.3	<i>Optimisation de la représentation du lessivage</i>	104
3.3.1	Incertitudes sur la modélisation du sulfate atmosphérique	104
3.3.2	Description du test de sensibilité	105
3.3.3	Sensibilité de la charge de sulfate aux différentes version du lessivage	107
3.3.4	Confrontation des simulations avec des observations de surface	108
3.3.5	Conclusion sur le choix de la paramétrisation du lessivage	111
Chapitre 4 :	Evaluation des concentrations atmosphériques en aérosol à l'échelle planétaire	113
4.1	<i>Première évaluation des simulations de l'aérosol atmosphérique avec le modèle MOCAGE (Martet, 2008)</i>	114
4.1.1	Description détaillée des expériences AEROCOM	114
4.1.2	MOCAGE versus AEROCOM A et B	115
4.2	<i>Variabilité de la charge en aérosols simulée par MOCAGE et les modèles AEROCOM</i>	117
4.2.1	Mise en place d'expériences de sensibilité des champs d'aérosols aux champs météorologiques	118
4.2.2	Le sulfate	118
4.2.3	Le Carbone-suie	122
4.2.4	Les poussières désertiques	124
4.2.5	Conclusion sur la sensibilité des simulations de l'aérosol au champs météorologiques utilisés	126
4.2.6	Vers un couplage MOCAGE-ARPEGE-Climat	129
4.3	<i>Fermeture du bilan de sulfate à la tropopause</i>	130
4.4	<i>Charge atmosphérique en aérosols simulée par MOCAGE</i>	134
4.4.1	Le sulfate	134
4.4.2	Le Carbone-suie	138
4.4.3	Les poussières minérales	140

Chapitre 5 : Interactions atmosphère-aérosols en hiver dans l'Atlantique Nord	144
5.1 Introduction.....	146
5.2 The MOCAGE CTM.....	148
5.2.1 General features of the CTM.....	148
5.2.2 Aerosol representation on the model.....	148
5.2.3 The 2000-2005 simulation	149
5.2.4 Validation of the simulation	149
5.2.5 Aerosol budget over the North-Atlantic Region	150
5.3 Aerosol distribution induced by North-Atlantic-European weather regimes	153
5.3.1 Weather regimes classification.....	153
5.3.2 Aerosol budget variations associated to weather regimes.....	156
5.3.3 Zonal regime signature.....	158
5.3.4 Blocking regime signature	160
5.3.5 NAO- regime signature	162
5.3.6 Atlantic ridge signature	164
5.4 Feedback of the aerosol distribution on the weather regimes	166
5.4.1 The ARPEGE global climate model	166
5.4.2 Atmosphere-forced experiments	167
5.4.3 Impact of the aerosol distribution on the weather regimes persistence.....	168
5.5 Discussion	169
5.6 Conclusion.....	171
Conclusion et perspectives	172
Bibliographie	178

Introduction

Le temps qu'il fera demain où qu'il a fait hier est un sujet souvent prétexte à des conversations animées. Au fil de l'histoire de ces discussions, qu'elles aient eu lieu dans une caverne préhistorique, dans un marché de la Grèce antique, chez un paysan aymara de l'altiplano bolivien, dans un bar à tapas espagnol du vingtième siècle, à l'Académie française des sciences, ou dans une multitude d'époques et de lieux, une distinction entre différentes échelles de temps caractéristiques a été établie pour décrire au mieux l'évolution de l'atmosphère. La prévision du temps est ainsi définie comme la discipline qui consiste à prévoir quelques jours à l'avance les variables météorologiques comme la pression, la température, les précipitations, la vitesse et la direction du vent. L'étude de la moyenne de ces variables chaotiques à des échelles de temps de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de milliers d'années concerne une autre discipline que l'on appelle l'étude du climat. Mélanger allègrement les objectifs ainsi que les outils propres à ces deux disciplines présente un double risque : celui de rendre désagréable une discussion, couplé à celui de commettre des erreurs scientifiques.

Historiquement, ce n'est que lors du siècle dernier que les variables météorologiques ont commencé à être enregistrées de manière systématique, permettant de bien connaître le climat là où elles ont été observées. Depuis la fin des années soixante-dix, les satellites d'observation de la terre ont permis d'obtenir des données bien plus complètes permettant d'appréhender des variations des paramètres climatiques à l'échelle globale. Par ailleurs, nombre de données paléoclimatiques, tirées entre autres des cernes des arbres, des coraux, des sédiments et des glaces nous donnent des informations sur le climat qui existait sur Terre dans le passé. Des carottes de glace prélevées récemment en Antarctique ont ainsi permis de reconstruire la composition chimique de l'atmosphère – liée aux évolutions climatiques – jusqu'à il y a près de 800 000 années. L'ensemble de ces observations a permis d'améliorer la connaissance des facteurs qui peuvent être à l'origine des changements climatiques.

En 1941, Milutin Milanković présente une théorie largement validée aujourd'hui, liant les variations des mouvements astronomiques de la Terre à l'alternance d'époques glaciaires et interglaciaires dont les périodes varient d'une dizaine à plusieurs centaines de milliers d'années. À ces échelles de temps, la température moyenne du globe peut avoir subi des variations de l'ordre de trois à quatre degrés. À des échelles de temps plus courtes, des variations naturelles du système climatique sont aussi observées, mais souvent plus locales que globales. C'est le cas du petit âge de glace, période plus froide – de l'ordre d'un degré – qui a été observée en de nombreuses régions de l'hémisphère Nord sur la période 1550-1850. Les variations de l'intensité solaire peuvent avoir des impacts climatiques à des échelles de temps de plusieurs années à plusieurs dizaines d'années. Aux échelles de temps interannuelles, des modifications de la composition chimique de l'atmosphère liées à une éruption volcanique, ou des interactions entre les diverses composantes du système climatique, comme le couplage océan-atmosphère peuvent aussi modifier significativement les températures et les précipitations en diverses régions du globe. L'oscillation australe, appelée ENSO (El Niño Southern Oscillation) est un exemple de cette variabilité naturelle « interne » à des échelles de temps inter-annuelles. Les variations naturelles du climat sont associées au travers de différentes rétroactions à des variations naturelles de la concentration des composés atmosphériques. Parmi eux, les différents gaz à effet de serre réchauffent l'atmosphère en bloquant une partie du rayonnement infra-rouge émis par la surface terrestre.

Essentiellement depuis la fin du 18^{ième} siècle avec la première révolution industrielle, les activités humaines ont commencé à modifier significativement la composition chimique de l'atmosphère. De la fin du 18^{ième} siècle à aujourd'hui, la concentration de dioxyde de carbone est ainsi passée de 280 à 385 ppm (partie par million), celle du méthane de 700 à 1800 ppb (partie par milliard) environ et celle d'oxyde nitreux de 270 à 320 ppm. L'augmentation artificielle de la teneur atmosphérique de ces composés, ainsi que de l'ozone troposphérique et des halocarbones accroît la capacité de l'atmosphère à réfléchir vers la surface terrestre le rayonnement infra-rouge que celle-ci émet. Lors du siècle dernier, un réchauffement moyen de $0.74 \text{ °C} \pm 0.18 \text{ °C}$, étroitement lié à l'émission de ces gaz à effet de serre a ainsi été observé à la surface de la terre, (IPCC, 2007).

Outre une multitude de composés gazeux, l'atmosphère contient aussi des particules en suspension, les aérosols. Ceux-ci, à la différence des gaz à effet de serre dont la durée de vie est de l'ordre de quelques années à quelques centaines d'années, ne séjournent dans l'atmosphère que quelques semaines avant d'être déposés au sol. Contrairement aux gaz à effet de serre qui se répartissent de manière relativement homogène dans toute l'atmosphère, ils ont une distribution géographique très hétérogène. À cause de leur comportement physico-chimique complexe, il est difficile de déterminer précisément la quantité et la nature de ces aérosols. Selon leur taille et leur composition très variables, ils peuvent interférer avec le rayonnement infra-rouge émis par la surface terrestre et l'atmosphère mais aussi avec le rayonnement de courte longueur d'onde émis par le soleil. Les nuages ne peuvent se former que grâce à la présence de ces aérosols, qui jouent le rôle de noyau de condensation pour les gouttelettes d'eau nuageuses. Les activités humaines modifient la composition atmosphérique en aérosols, ce qui a un impact sur le bilan radiatif de l'atmosphère, ainsi que sur la physique des nuages.

Au fil des progrès de l'informatique, il a peu à peu été possible d'utiliser des modèles numériques pour décrire d'une part les évolutions de la composition physico-chimique de l'atmosphère et d'autre part le système climatique. Ces outils permettent de résoudre efficacement les équations de la physique et de la chimie sur l'ensemble de l'atmosphère, en la découpant en un certain nombre de mailles. On obtient alors une description des différentes variables physiques sur un domaine considéré. Les sorties des modèles numériques peuvent être confrontées aux observations, ce qui permet de critiquer la manière dont on a représenté les processus physiques dans les modèles. Une fois validé, un modèle permet aussi de représenter les évolutions de l'atmosphère dans des endroits où peu d'observations sont disponibles, mais aussi d'estimer les caractéristiques du système climatique à des époques passées et futures.

Un aboutissement de l'étude du système climatique grâce à l'utilisation de modèles numériques et à la confrontation de leurs résultats avec les observations est la dernière synthèse réalisée par le Groupe Intergouvernemental d'Etude Climatiques (International Panel on Climate Change en anglais, IPCC) en 2007. Le système climatique à l'équilibre est défini par l'équilibre au sommet de l'atmosphère des flux infrarouges - émis par la surface terrestre et l'atmosphère - et des flux de courte longueur d'onde - directement émis par le soleil ou réfléchis par la surface terrestre -. L'IPCC définit un forçage radiatif comme une perturbation du bilan radiatif planétaire au sommet de la troposphère induit par un processus physique. Il estime le forçage radiatif des gaz à effet de serre anthropiques à 2.6 W.m^{-2} , $\pm 0.25 \text{ W.m}^{-2}$. Concernant les aérosols anthropiques, leur forçage radiatif est négatif, mais des incertitudes importantes persistent quant à leur évaluation : il est estimé à -1.2 W.m^{-2} , dans une fourchette de confiance à 90 % allant de -2.7 à -0.4 W.m^{-2} . Pour diminuer ces incertitudes, de nombreux points ont encore besoin d'être éclairés, notamment l'estimation des émissions d'aérosols, la connaissance des différentes réactions chimiques et des différents processus physiques en jeu, l'estimation des propriétés radiatives des aérosols, ainsi que les interactions entre les nuages et les aérosols.

Ce travail de thèse s'inscrit dans l'objectif de réduire une part de ces incertitudes. Trois composés présents sous forme d'aérosols dans l'atmosphère sont étudiés en particulier : le sulfate, le carbone élémentaire, appelé aussi carbone-suie et les poussières désertiques. Les principaux puits et sources de ces aérosols sont caractérisés, de manière à pouvoir ensuite être représentés correctement dans un modèle numérique. Plusieurs simulations ont été réalisées, représentant le comportement physico-chimique de l'atmosphère sur quelques années. Les résultats de ces simulations sont confrontés à des observations et à des simulations réalisées par d'autres centres de recherche. Ce travail propose au final les principales clés pour représenter correctement les distributions d'aérosols dans un modèle, étape nécessaire à l'évaluation de l'impact des aérosols sur le climat.

Chapitre 1 : Enjeu de l'étude des aérosols dans la compréhension du système climatique

1.1 Les facteurs de variabilité du système climatique

Le système climatique est le siège de nombreux processus et interactions entre l'atmosphère, les océans ainsi que les autres bassins d'eau, la surface terrestre, la neige et la glace de mer et la biosphère. Il évolue dans le temps sous l'influence de sa propre dynamique interne mais aussi sous l'effet de perturbations externes qui sont appelées « forçages », qui peuvent être naturels ou anthropiques. L'équilibre radiatif de la Terre peut être modifié par différents forçages, qui peuvent concerner :

- des variations du rayonnement solaire incident lui-même, liées à des variations des paramètres astronomiques terrestres, ou à des changements de l'activité solaire elle-même.
- des changements d'albédo de la Terre impliquant une variation de la fraction du rayonnement solaire incident qui est réfléchi vers l'espace. Cela peut avoir lieu suite à une modification du couvert nuageux, de l'étendue des surfaces de la planète recouvertes de glace, du contenu atmosphérique en particules ou du type de végétation.
- des changements du flux infra-rouge terrestre émis vers l'espace, liés à des modifications de la concentration des gaz à effet de serre ou de certains aérosols (lors d'éruptions volcaniques par exemple), ou directement liés à des modifications de l'émissivité de la surface.

L'IPCC (2007) définit un forçage radiatif comme un changement du bilan radiatif évalué au sommet de la troposphère. Un forçage radiatif positif implique un réchauffement global de la troposphère contrairement à un forçage radiatif négatif qui la refroidit. C'est cette définition du forçage radiatif qui est utilisée dans la suite de ce texte. Le climat peut répondre soit directement à un forçage radiatif, soit indirectement à travers divers mécanismes de rétroactions. Ces rétroactions entre les différentes composantes du système climatique peuvent soit augmenter (rétroaction positive) soit diminuer (rétroaction négative) l'effet direct d'un forçage initial. Une période glaciaire initiée par une variation des paramètres astronomiques terrestres implique un refroidissement qui va augmenter la surface des calottes de glace et donc l'albédo moyen de la terre, induisant lui-même un refroidissement du climat. Ce processus est un exemple de rétroaction positive. Détecter, comprendre et quantifier précisément ces rétroactions est un des défis auxquels les scientifiques doivent faire face pour tenter de résoudre la question du changement climatique. La modélisation numérique est un outil efficace pour étudier l'ensemble des processus responsables de l'équilibre radiatif de la terre et nous aider à comprendre les interactions entre les différentes composantes du système climatique. Les modèles constituent de plus notre seul moyen d'appréhender les phénomènes à venir, qu'aucun autre outil ne saurait remplacer.

Toutes les études de modélisation réalisées jusqu'à ce jour sont unanimes quant à un réchauffement global du système climatique actuel lié aux activités humaines. Ce résultat est en accord avec le réchauffement déjà observé au cours du 20^{ème} siècle (Folland et al., 2001). Celui-ci est dû au forçage radiatif des gaz à effet de serre anthropiques, estimé à $+1.6 \text{ W.m}^{-2} \pm$

0.2 W.m^{-2} pour le dioxyde de carbone, $+1 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.1 \text{ W.m}^{-2}$ pour la somme des forçages du méthane, de l'oxyde nitreux et des halocarbones, et à environ $+0.4 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.2 \text{ W.m}^{-2}$ pour l'ozone troposphérique (c.f. Fig. 1.1, IPCC, 2007). Cependant le réchauffement observé est plus faible que celui qui a été initialement simulé par les modèles, dans lesquels seule l'augmentation déjà constatée des gaz à effet de serre était prise en compte (Mitchell et al., 2001). Cela a conduit les chercheurs, dans un premier temps, à penser que la sensibilité du climat réel, c'est-à-dire sa capacité à réagir plus ou moins fortement à un forçage externe, se situait du côté bas des simulations. Une deuxième explication est apparue il y a une vingtaine d'années : le forçage négatif exercé par les aérosols pourrait avoir contrebalancé une partie du réchauffement lié à l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre (Wigley, 1989, Boucher et Anderson, 1995). En effet, les aérosols affectent le bilan radiatif de plusieurs manières : de façon directe en diffusant et en absorbant le rayonnement solaire incident ; et de façon indirecte via la modification des propriétés des nuages. Ces effets indirects sont nombreux et difficilement quantifiables. Leur estimation se limite souvent à celle de l'un d'entre eux, mieux connu que les autres, qui concerne le changement d'albédo des nuages induit par la modification du nombre et de la taille des aérosols. En moyenne, ces effets directs et indirects ont pour conséquence de diminuer le rayonnement solaire incident à la surface de la Terre. La figure 1.1 montre l'estimation de ces forçages par l'IPCC (2007) : $-0.5 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.2 \text{ W.m}^{-2}$ pour les effets directs des aérosols, et -0.7 W.m^{-2} dans un intervalle de confiance à 95 % allant de -0.3 à -1.8 W.m^{-2} pour la modification de l'albédo des nuages liée à la présence d'aérosols anthropiques.

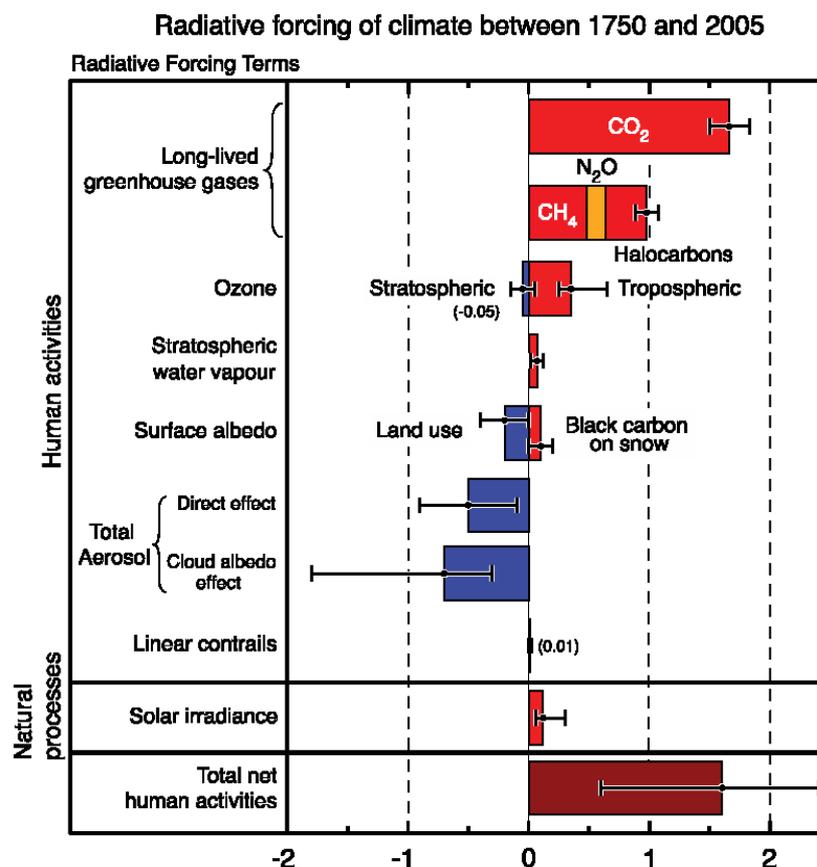


Figure 1.1 : Estimation des forçages radiatifs des perturbations climatiques d'origine naturelle et anthropique. Rapport IPCC (2007).

La prise en compte de l'effet radiatif des aérosols dans les modèles a permis d'améliorer la comparaison de l'évolution des températures globales simulées et observées depuis le début de l'ère industrielle (Hasselmann, 1997 ; Hegerl et al., 1997 ; Houghton et al., 1995 ; Kattenberg et al., 1996; Mitchell et al., 1995; Roeckner et al., 1996). L'émission d'aérosols anthropiques dans les régions industrielles qui se situent dans l'Hémisphère Nord permet d'expliquer pourquoi le réchauffement moyen est plus faible dans l'Hémisphère Nord. Les aérosols, en se déposant en surface dans les régions englacées, diminuent l'albédo de la glace. Ce processus est une des explications possibles du déclenchement des transitions glaciaires/interglaciaires. (Krinner et al., 2006). Néanmoins notre compréhension du forçage par les aérosols reste partielle (Forster et Ramaswamy, 2007) interdisant aujourd'hui de formuler une conclusion définitive sur l'impact des aérosols. Les incertitudes proviennent principalement des difficultés d'appréhension du comportement physico-chimique des aérosols ainsi que de leur propriétés radiatives et de leurs interactions avec les nuages.

1.2 Evolutions naturelles et anthropiques des aérosols atmosphériques

Les aérosols ont été définis dans le troisième rapport de l'IPCC (2001) comme des particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes nuageuses. Ils possèdent de nombreuses sources naturelles et anthropiques réparties de façon hétérogène sur l'ensemble du globe. Ils peuvent être directement émis dans l'atmosphère – on parle alors d'aérosols primaires – ou peuvent être issus de réactions chimiques hétérogènes, produisant de la matière solide à partir de gaz précurseurs – on parle alors d'aérosols secondaires. Ils résident peu de temps dans l'atmosphère car ils sont déposés sous l'effet de leur poids (sédimentation), de la diffusion turbulente des aérosols contenus dans la couche limite atmosphérique vers la surface (dépôt sec) ou par les précipitations (dépôt humide). Ils sont impliqués dans de nombreux processus chimiques, physiques et microphysiques qui ont lieu au cours de leur transport dans l'atmosphère. Contrairement aux gaz à effet de serre, la composition, la taille et les concentrations d'aérosols varient fortement en chaque point de l'espace et à chaque instant. Sous le nom générique d'« aérosols », c'est en fait une multitude de particules aux caractéristiques différentes que l'on regroupe. C'est de cette variabilité extrême que naissent les difficultés de l'étude des aérosols mais aussi tout le défi scientifique. La prise en compte des aérosols dans les modèles est ainsi un problème ardu. Les processus affectant les aérosols impliquent une gamme d'échelles d'espace et de temps qui n'est pas adaptée à la maille et au pas de temps grossier des modèles globaux. Ils sont donc représentés au travers de paramétrisations souvent imprécises à cause de notre connaissance partielle de la chimie et de la physique des aérosols. La réponse du climat à une perturbation si peu homogène représentée dans les modèles numériques est logiquement plus complexe que la réponse à une perturbation homogène.

On estime que les aérosols atmosphériques étaient essentiellement d'origine naturelle jusqu'au 18^{ième} siècle, mis à part les aérosols liés à la consommation de combustibles végétaux et aux feux de biomasse, d'origine naturelle ou anthropique. Ces derniers sont composés de carbone organique, dénommé OC (Organic Carbon), et d'espèces inorganiques dont le sulfate et le carbone élémentaire ou carbone-suie, dénommé BC (Black-Carbon). Les aérosols naturels peuvent aussi contenir des sels marins, des poussières minérales et du sulfate issu de l'oxydation de composés soufrés émis par les océans. Une grande partie des aérosols naturels contient des composés organiques. Ceux-ci sont soit émis directement dans l'atmosphère, comme le OC, soit issus de l'oxydation de composés organiques gazeux, les VOC (Volatil Organic Compounds), émis majoritairement par la biosphère. Les aérosols issus de l'oxydation des VOC sont dénommés SOA (Secondary Organic Aerosol), ou OC secondaires. Notons par ailleurs que le OC ne représente généralement qu'une partie de la matière organique dans les aérosols. La matière organique sèche totale, communément désignée POM (Particulate Organic Matter) est considérée égale à 1.3 fois la masse de OC (Textor et al., 2006).

Depuis le 18^{ième} siècle, la concentration atmosphérique en aérosols ne cesse d'être modifiée par les activités humaines. De grandes quantités de sulfate, de nitrate, de BC et de OC sont injectées dans l'atmosphère, par la combustion de carburants fossiles ou végétaux et par les activités industrielles (Bond, 2004). La présence de l'homme sur terre induit aussi des émissions d'aérosols minéraux dans l'atmosphère, à cause de la désertification de certaines régions, de l'assèchement de zones humides ou de grands lacs – c'est le cas par exemple de la mer d'Aral -, de la pratique de l'agriculture extensive, d'activités industrielles comme la production de ciments, et du transport (Prospero et al, 2000).

Tous ces différents composés solides, d'origine naturelle ou anthropique peuvent être présents dans l'atmosphère soit isolés les uns des autres – on parle alors d'aérosols en mélange externe – soit regroupés au sein de la même particule – on parle alors d'aérosols en mélange interne -. La figure 1.2 décrit la manière dont différents composés peuvent se rassembler au sein d'un même aérosol dans le cas d'un mélange interne. Le carbone organique, le carbone-suie et les poussières minérales constituent préférentiellement les noyaux des aérosols en mélange interne, alors que les espèces ioniques comme le sulfate, le nitrate et les sels marins se trouvent préférentiellement à la surface des aérosols.

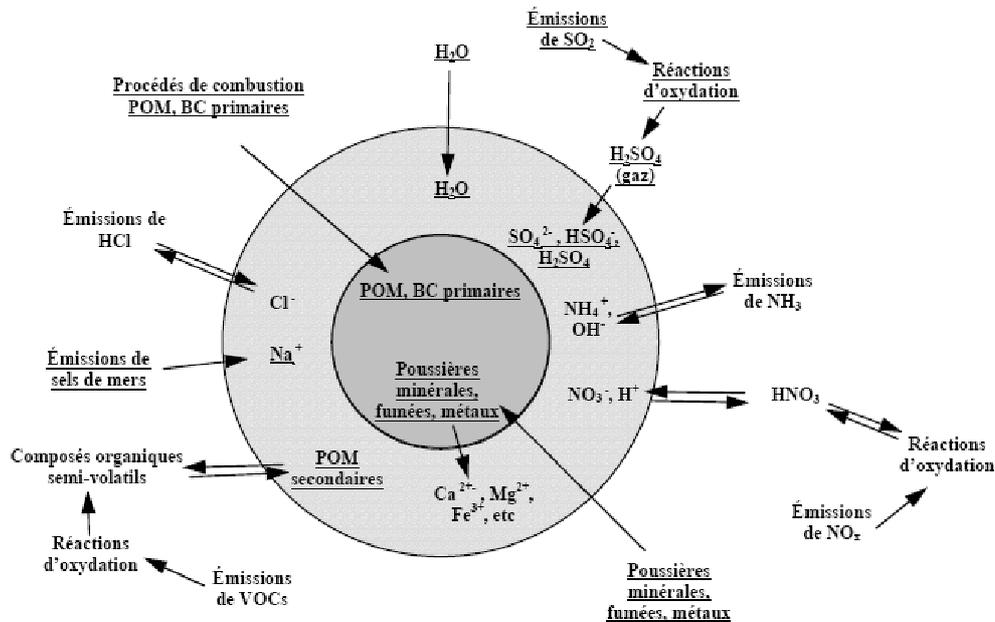


Figure 1.2 : Composition chimique d'un aérosol en mélange interne (IPCC, 2001).

1.3 La modélisation des aérosols atmosphériques et de leur influence sur le climat

1.3.1 Connaissance actuelle des processus physiques mis en jeu

Les effets directs et les effets indirects des aérosols sur le climat sont des processus physiquement bien distincts, et sont donc en général étudiés de manière séparée dans les modèles.

1.3.1.1 Effet direct des aérosols

Les effets directs regroupent les mécanismes par lesquels les particules absorbent, diffusent et émettent une quantité d'énergie dépendant de la longueur d'onde des spectres solaire et infrarouge. Le sulfate, le nitrate, le BC, le OC primaire et secondaire, les poussières minérales ont été identifiés comme des aérosols exerçant un forçage significatif dans le bilan radiatif terrestre. Ce forçage dépend des propriétés optiques des aérosols et de la température du milieu atmosphérique dans lequel ils se situent. Les propriétés optiques des aérosols sont généralement caractérisées à l'aide de l'efficacité d'extinction, Q_{ext} , de leur albédo de simple diffusion, ω_a et du paramètre d'asymétrie, g_a . Ces propriétés sont sensibles à la taille, à la composition chimique des aérosols et à l'humidité relative de l'atmosphère (Haywood et Boucher, 2000). La figure 1.3 présente l'évolution de Q_{ext} et de ω_a en fonction de la taille des particules sur le spectre solaire. L'extinction, c'est à dire la somme de la diffusion et de l'absorption est la plus efficace pour des particules de 0.1 μm à 2 μm . ω_a représente la capacité des aérosols à absorber le rayonnement solaire, il dépend aussi, entre autre, de la taille des particules (Fig. 1.3). g_a traduit la fraction de rayonnement qui est diffusé dans le sens du rayonnement incident.

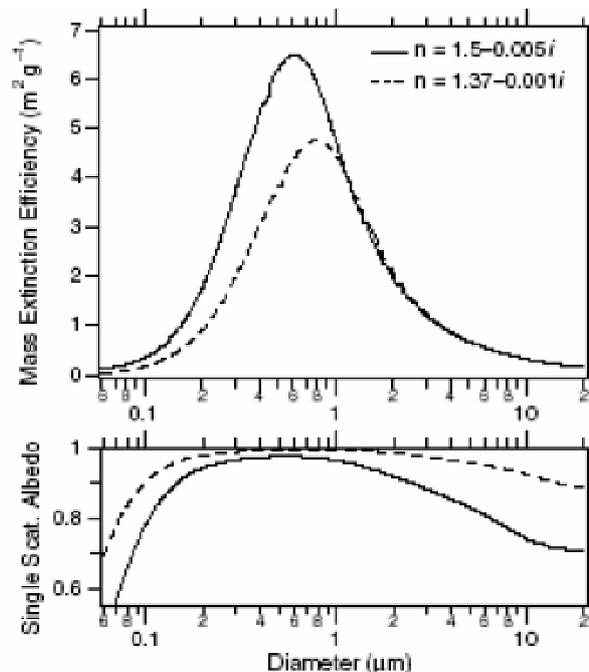


Figure 1.3 : Evolution de l'efficacité d'extinction ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols en fonction de la taille des particules. Valeurs intégrées sur un spectre solaire typique. D'après IPCC (2001).

Les aérosols à fort pouvoir diffusif, comme le sulfate et le OC exercent un forçage radiatif direct négatif. En considérant le haut de l'atmosphère, les aérosols à fort pouvoir absorbant, comme le BC, exercent un forçage radiatif négatif au dessus des surface sombres comme les océans et certaines forêts, et un forçage radiatif positif au dessus de surfaces claires comme les déserts et les surfaces enneigées ou englacées (Chylek et Wong, 1995). Si le signe du forçage radiatif peut varier au sommet de l'atmosphère selon le type d'aérosol, les effets directs des aérosols induisent toujours une diminution du rayonnement de courte longueur d'onde à la surface. Par ailleurs, seule une forte concentration d'aérosols de grande taille présents sur une grande épaisseur dans l'atmosphère peut exercer un forçage radiatif significatif dans les grandes longueurs d'onde. C'est le cas typique d'épisodes de transport de poussières désertiques.

1.3.1.2 Effets indirects

Les effets indirects concernent les mécanismes par lesquels les aérosols modifient la microphysique et donc les propriétés radiatives, la structure et la durée de vie des nuages (Fig. 1.4). Le processus-clé à appréhender pour déterminer les effets indirects des aérosols concerne leur capacité à jouer le rôle de noyau de condensation pour les gouttelettes d'eau nuageuses, qui dépend de leur taille, leur composition chimique, et de l'état physique du milieu environnant (Penner et al, 2001). L'effet microphysique induit sur le nombre et la taille des gouttelettes d'eau nuageuses engendre une modification de l'albédo des nuages (Lohmann et Feitcher, 2005). Cet effet est souvent dénommé le premier effet indirect (Ramaswamy et al., 2001). Les effets induits sur la teneur en eau liquide, la forme, et la durée de vie des nuages sont couramment dénommés second effet indirect (Ramaswamy et al., 2001). Le premier effet indirect peut être considéré comme un forçage radiatif qui ne modifie pas la teneur en eau liquide des nuages, et n'a donc pas d'interaction directe avec le cycle hydrologique. Ce n'est pas le cas du second effet indirect qui concerne des modifications du cycle hydrologique, et qui est considéré comme une rétroaction et non pas comme un forçage par l'IPCC (2001). Les aérosols peuvent aussi réchauffer l'atmosphère environnante en absorbant l'énergie solaire. Cet effet, appelé effet semi-direct, n'est pas considéré comme un forçage mais comme une rétroaction, et ne peut pas non plus être comptabilisé séparément des autres processus énergétiques et hydrologiques avec lesquels il interagit. Dans les nuages à phase mixte glace-eau, trois effets indirects ont été recensés. Si on considère une atmosphère polluée, fortement concentrée en aérosols de petite taille et donc en petits noyaux de condensation, ces trois effets sont les suivants (Lohmann et Feitcher, 2005) :

- Le passage à l'état solide des gouttelettes d'eau est retardé
- L'augmentation du nombre de noyaux de condensation en phase glace augmente l'efficacité à précipiter du nuage.
- La réduction de la taille des gouttelettes d'eau nuageuse diminue l'efficacité de formation du givre.

L'ampleur des incertitudes liées aux effets des aérosols sur les nuages en phase mixte, dont on ne connaît ni la valeur ni le signe explique pourquoi l'IPCC (2007) ne se prononce pas sur l'évaluation globale de ces forçages radiatifs. La figure 1.4 présente l'ensemble des forçages radiatifs induits par les aérosols selon l'IPCC (2007). Les trois effets indirects dans les nuages à phase mixte glace-eau décrits par Lohmann et Feitcher, (2005) sont compris dans ce que l'IPCC appelle en anglais « Indirect effect on ice clouds », alors que les autres parties de la figure concernent effets associés aux nuages en phase liquide.

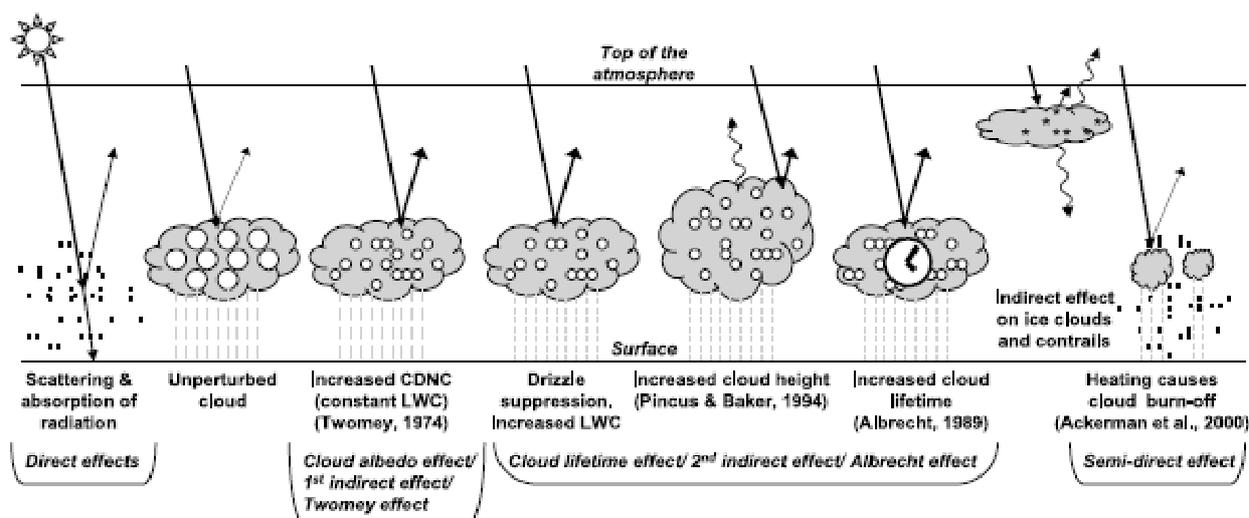


Figure 1.4 : Représentation schématique des différents effets des aérosols liées à la modification des propriétés des nuages. Les points noirs représentent les particules d'aérosols et les cercles blancs correspondent aux nombres de gouttelettes nuageuses. Les traits noirs représentent le rayonnement solaire incident et réfléchi par les nuages ; les lignes ondulées correspondent au rayonnement infrarouge émis. D'après IPCC, (2007).

1.3.2 Les moyens actuels disponibles à l'étude des aérosols

1.3.2.1 Les observations

Depuis le début des années 1980, suite à la prise de conscience des impacts des aérosols sur la santé et le climat, de nombreux réseaux d'observation des aérosols ont été mis en place, permettant une estimation des concentrations en aérosols à la surface de la terre. C'est le cas du réseau EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme) en Europe (Hjellbrekke, 2004), et IMPROVE (Interagency Monitoring of protected Visual Environment) en Amérique du Nord, qui regroupent des données collectées depuis une vingtaine d'années. Plus récemment, le réseau d'observation CESOA collecte des observations aux hautes latitudes Sud. Ces réseaux sont un moyen essentiel de validation des modèles globaux en surface, mais l'impact des aérosols sur le climat étant très lié à leur répartition sur la verticale, ces mesures ne sont pas suffisantes pour appréhender les quantités d'aérosols ainsi que leur forçage radiatif. Depuis une dizaine d'années, des réseaux de photomètres et de LIDAR ont été installés comme le réseau mondial AERONET (AERosol RObotic NETwork ; <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/index.html>), le réseau européen EARLINET (A European Aerosol Research Lidar Network to Establish an Aerosol Climatology ; <http://www.earlinet.org/>) ou les réseaux asiatiques ADNET (Asian Dust Network ; <http://www-lidar.nies.go.jp/AD-Net/>) et MPLNET (Micro-Pulse Lidar Network ; <http://mplnet.gsfc.nasa.gov/data.html>). Ce type d'observation fournit des mesures de l'épaisseur optique sur toute la hauteur de l'atmosphère, ce qui permet d'estimer les quantités d'aérosols sur la verticale. Les observations satellite comme les images MODIS (MoDerate resolution Imaging Spectrometer ; http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/MOD04_L2/index.html) fournissent une estimation de l'épaisseur optique et de l'effet direct des aérosols à échelle globale. Mais ces observations ne sont pas complètes, notamment en ce qui concerne les zones où l'albédo de la surface terrestre est élevé, sur les déserts et les zones englacées entre autres, mais aussi dans les zones couvertes par des nuages. Plus récemment, le projet CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite

Observation ; http://eosweb.larc.nasa.gov/PRODOCS/calipso/table_calipso.html) a permis d'embarquer à bord de satellites des LIDAR, fournissant des profils verticaux de l'épaisseur optique des aérosols le long de la trajectoire du satellite. Cet outil est actuellement très utilisé pour valider les modèles numériques.

L'inconvénient majeur des observations réalisées par LIDAR ou satellite est qu'elles ne permettent pas de séparer les contributions des différents types d'aérosols, excepté dans les situations où l'un d'entre eux est largement majoritaire, dans le cas d'un épisode de transport de poussières désertiques par exemple. La plate-forme Internet ICARE regroupe tout un ensemble d'observations de satellites et de LIDAR, et organise la distribution de ces données selon les besoins des utilisateurs (<http://www.icare.univ-lille1.fr/>).

1.3.2.2 La modélisation

Les simulations de l'évolution des aérosols réalisées par les modèles dans le cadre du projet AEROCOM (global AEROSol model interCOMparison, Textor et al., 2006) ont permis de réelles avancées entre les exercices IPCC de 2001 et de 2007. Plusieurs modèles parviennent maintenant à décrire les aérosols de manière de plus en plus complète. L'épaisseur optique simulée, somme de l'épaisseur optique de la contribution de chaque type d'aérosol est donc maintenant directement comparable à l'épaisseur optique observée par les satellites. Le projet AEROCOM s'est articulé autour de différents exercices de modélisation : une expérience dans laquelle chaque modèle utilise les émissions de son choix (expérience A), et deux expériences dans lesquelles chaque modèle utilise les inventaires d'émissions préconisés par AEROCOM: une expérience avec des émissions représentatives de l'année 2000 (« expérience B ») et une expérience avec un inventaire recensant les émissions pré-industrielles (« expérience PRE »). L'analyse de l'ensemble des simulations réalisées par les modèles qui ont participé à l'exercice a permis d'estimer les quantités et l'épaisseur optique des différents aérosols présents dans l'atmosphère. Dans le cadre de l'expérience A, Textor et al. (2006) présentent les moyennes inter-modèle des principaux puits et sources d'aérosols, associées à leur « diversité inter-modèles » δ , définie comme l'écart-type normalisé par la moyenne des modèles. Les émissions totales d'aérosols sont ainsi estimées à 18800 Tg/an ($\delta = \pm 176\%$), dont 16 600 Tg/an ($\delta = \pm 199\%$) de sels marins, 1840 Tg/an, ($\delta = \pm 49\%$) de poussières désertiques, 179 Tg/an, ($\delta = \pm 22\%$) de sulfates, 96.6 Tg/an, ($\delta = \pm 26.1\%$) de POM et 11.9 Tg/an ($\delta = \pm 23\%$) de BC. La charge totale d'aérosols est estimée à 30.6 Tg ($\delta = \pm 29\%$) variant de 13.2 Tg à 47 Tg selon les modèles. Les charges de poussière et de sels marins sont estimées respectivement à 19.2 Tg ($\delta = \pm 40\%$) et 7.5 Tg ($\delta = \pm 54\%$), celle de sulfate à 2 Tg ($\delta = \pm 25\%$), celle de POM à 1.7 Tg ($\delta = \pm 25\%$) et celle de BC à 0.24 Tg ($\delta = \pm 42\%$). Le temps de vie des aérosols est défini comme le rapport de la charge en aérosols sur la somme des puits. Il est estimé à une demi-journée pour les sels marins, quatre jours pour le sulfate et les poussières minérales, six jours pour les POM et sept jours pour BC. Dans le cadre de l'expérience B, Textor et al. (2007) montrent que la diversité de la charge en aérosols simulée par les modèles est très peu réduite lorsqu'ils utilisent les mêmes émissions. Cela est dû au fait que les incertitudes sur la modélisation des aérosols proviennent essentiellement de la représentation du transport, du dépôt, de la chimie et de la microphysique. Une discussion sur les différents puits et sources d'aérosols est réalisée dans le troisième chapitre, au travers d'une confrontation de nos résultats avec ceux des autres modèles du projet AEROCOM. La suite de ce chapitre est une présentation des connaissances actuelles sur les quantités des différents type d'aérosols et de leur effet sur le climat.

1.3.3 Evaluation de l'effet direct des aérosols anthropiques

Dans la réalité, une grande part des aérosols est présent dans l'atmosphère en « mélange interne ». Il est donc purement artificiel de séparer le forçage radiatif des aérosols en plusieurs composantes associées à chaque espèce chimique, celles-ci ayant des propriétés radiatives modifiées selon la manière dont elles sont regroupées entre elles au sein d'une même particule. Un certain nombre de modèles numériques commencent à prendre en compte cet aspect. Cependant, le découpage de l'effet direct des aérosols en plusieurs composantes associées à chaque aérosol reste une approximation raisonnable par rapport à la connaissance que l'on a de ces processus aujourd'hui. Elle est d'ailleurs largement utilisée, notamment dans le cadre du projet AEROCOM. Une évaluation de l'effet direct associé à chaque type d'aérosol est présentée dans les paragraphes suivants. La conclusion de cette section 1.3.3 propose une estimation de l'effet direct induit par l'ensemble des aérosols, en confrontant notamment les résultats des modèles avec des observations satellites.

1.3.3.1 Le sulfate

L'aérosol sulfaté est défini par l'IPCC (2007) comme une particule d'acide sulfurique partiellement ou totalement neutralisée par de l'ammonium, présent sous forme de gouttelette liquide ou partiellement cristallisée. Il est formé par des réactions en phase aqueuse dans les gouttelettes d'eau nuageuse, par l'oxydation en phase gazeuse de SO₂ par OH et par condensation à la surface de particules pré-existantes (Penner et al, 2001). La principale source de sulfate est l'oxydation du SO₂ provenant de la combustion de carburant fossiles (72 %). Seul 2 % du sulfate provient des feux de biomasse. Les sources naturelles proviennent de l'oxydation du dimethylsulfide émis par le phytoplancton océanique (19%), et des émissions volcaniques de SO₂ (7%) (Haywood et Boucher, 2000). Dans les vingt-cinq dernières années, les émissions de SO₂ ont été divisées par trois (Vestreng et al, 2004) en Europe et ont diminué de 30 % aux Etats-Unis (EPA, 2003), alors qu'elles ont significativement augmenté en Asie du Sud-Est (Van Aardenne et al., 2001). Stern et al. (2005) estiment que les émissions anthropiques globales de SO₂ sont passées de 73 à 54 TgS/an entre 1980 et 2000. Le sulfate diffuse complètement le rayonnement solaire mais n'absorbe que très peu le rayonnement infra-rouge (Penner et al., 2001). Son coefficient d'extinction dépend fortement de l'humidité relative (Tang et al., 1995). Le comportement radiatif des sulfates est cependant complexe car cet aérosol est souvent présent en mélange externe ou interne avec les autres types d'aérosols. L'estimation du forçage radiatif des aérosols sulfatés est très différente selon les modèles à cause des différentes représentations des propriétés optiques du sulfate, de l'hygroscopicité des particules, de la réflectance de la surface, du schéma radiatif utilisé, de la formation des nuages, du mélange interne ou externe des particules, et de tous les processus physiques paramétrisés à une échelle sous-maille (Ramaswamy et al., 2001). A titre d'exemple, Myhre et al. (2004) montrent que les variations des champs d'humidité spécifique entre deux modèles impliquent des différences de 60 % dans l'estimation du forçage radiatif des sulfates. Compte-tenu de l'ensemble des conclusions et des incertitudes décrites dans ce paragraphe, **l'IPCC (2007) estime le forçage radiatif des sulfates à $-0.4 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.2 \text{ W.m}^{-2}$.**

1.3.3.2 Les aérosols organiques issus de la combustion de carburants fossiles

Les aérosols organiques sont principalement émis par la combustion de carburants fossiles et de végétaux, ainsi que par des sources biogéniques. Ils sont soit émis directement dans l'atmosphère, soit issus de l'oxydation de composés gazeux. Des centaines de composés organiques ont été détectés dans l'atmosphère, ce qui rend la modélisation des aérosols organiques particulièrement délicate (Mc Figgans et al., 2006). Ito et Penner (2005) estiment que les émissions anthropiques d'aérosols organiques primaires ont augmenté d'un facteur trois entre 1870 et 2000 pour atteindre la valeur actuelle de 7.5 TgC/an. Les quantités émises sont très variables d'une étude à l'autre : Les émissions anthropiques à la fin du XXI^{ème} siècle sont estimées entre 10 et 30 TgC/an par Liousse et al. (1996) et entre 5 et 17 TgC/an par Bond (2004). La quantité d'aérosols organiques secondaires dépend de la concentration de gaz précurseurs, dénommés NMVOC (Non Methan Organic Compounds), émis majoritairement par la biosphère. Les activités humaines peuvent engendrer des modifications de la concentration d'oxydants dans l'atmosphère (Berglen et al., 2004), et donc modifier la production d'aérosols secondaires. Dans les zones polluées, les concentrations en OC sont souvent du même ordre de grandeur que celles de sulfate (Bond, 2001). Après leur émission dans l'atmosphère, les propriétés chimiques, hygroscopiques et optiques des aérosols organiques continuent à évoluer, car ils réagissent avec les oxydants présents dans l'atmosphère. En se basant sur des observations et des principes chimiques, plusieurs études ont permis de séparer les aérosols organiques en différentes classes ayant des caractéristiques communes en termes d'indice de réfraction, d'hygroscopicité et de propriétés d'activation des gouttelettes d'eau nuageuses (Ming et Russel, 2002). Cela a permis d'améliorer la représentation des aérosols organiques dans les modèles (Kanakidou et al., 2005). Classiquement, les modèles séparent les aérosols organiques en deux classes principales, selon qu'ils soient solubles ou non dans l'eau. En ce qui concerne les aérosols organiques secondaires, les modèles les considèrent souvent comme une simple source additionnelle d'aérosol organique primaire.

L'observation des propriétés radiatives des aérosols organiques émis par la combustion de carburants fossiles a permis de constater qu'ils étaient peu absorbants en général, hormis pour une partie du rayonnement solaire dans l'ultraviolet et le visible (Bond, 2001). La plupart des aérosols organiques diffusent fortement le rayonnement solaire. **L'IPCC (2007) estime le forçage radiatif des aérosols organiques primaires émis par la combustion des carburants fossiles à $-0.05 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.05 \text{ W.m}^{-2}$.**

1.3.3.3 Les aérosols de carbone-suie issus de la combustion de carburants fossiles

Les aérosols de carbone-suie sont des aérosols primaires directement émis par des processus de combustion incomplète de carburants fossile ou de biocarburants et de feux de biomasse. La majeure partie du BC est donc d'origine anthropique. Les émissions de BC sont relativement variables d'un inventaire à un autre. Ito et Penner (2005) estiment que les émissions de BC liées à la combustion de carburants fossiles ont augmenté d'un facteur trois entre 1950 et 2000, atteignant 2.8 TgC/an. Bond et al. (2004) proposent comme valeur 3 TgC/an et Novakov et al. (2003) 5.6 TgC/an. Bond et al. (2004) évaluent les émissions de BC liés à la combustion de végétaux à 1.7 TgC/an et celles liées aux feux de biomasse à 3.3 TgC/an, ce qui permet d'estimer les émissions totales de BC à 8 TgC/an avec une marge d'incertitude d'un facteur deux.

Les particules de BC sont émises sous forme de chaînes moléculaires complexes, elles tendent à s'agglomérer les unes aux autres en vieillissant, ce qui modifie leurs propriétés optiques au cours du temps. Ramanathan et al. (2001b) observent sur le sous-continent indien un forçage radiatif pour le BC de -23 W.m^{-2} en surface, plus grand que celui mesuré au sommet de l'atmosphère, -0.7 W.m^{-2} . Cette différence s'explique par le fait que les particules de BC absorbent fortement le rayonnement solaire. Par ailleurs, le forçage de ces aérosols peut être fortement positif en dessus de surfaces avec un albédo élevé comme les surfaces enneigées ou englacées ainsi qu'en dessus des nuages. Il est donc essentiel de connaître le profil vertical de ces aérosols pour estimer leur forçage radiatif, selon qu'ils se trouvent en dessus ou en dessous de la couverture nuageuse. Ce profil vertical dépend de la manière dont sont transportées les particules dans l'atmosphère, mais il dépend aussi du dépôt humide, très variable selon le caractère hydrophile ou hydrophobe des différentes particules de BC (Stier et al., 2006b). **L'IPCC (2007) estime le forçage radiatif des aérosols de carbone-suie provenant de la combustion de carburants fossiles à $+0.2 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.15 \text{ W.m}^{-2}$.** Ce chiffre ne comprend ni l'effet semi-direct ni l'impact sur l'albédo des surfaces enneigées ou englacées des aérosols de carbone-suie.

L'effet semi-direct des aérosols de carbone-suie est difficilement quantifiable, car il est étroitement lié à l'ensemble des rétroactions nuageuses, elles-mêmes considérées comme une des plus grande incertitudes dans les études de l'évolution du climat (IPCC, 2007). La présence de BC dans l'atmosphère est associée à une diminution du rayonnement solaire net en surface. L'effet semi-direct fait référence à l'absorption du rayonnement solaire par les particules de carbone-suie qui réémettent un rayonnement infra-rouge, chauffant les masses d'air environnantes, augmentant la stabilité de l'air au niveau de la surface et pouvant évaporer les gouttelettes d'eau nuageuse. Ces processus sont considérés comme des rétroactions avec l'atmosphère et non pas comme des forçages radiatifs (cf. partie 1.3.1.2.), l'IPCC (2007) a donc choisi de ne pas chiffrer les effets semi-directs des particules de carbone-suie. Avec une grande prudence, on peut estimer que ces effets semi-directs peuvent avoir un impact potentiellement important sur le bilan radiatif et le bilan hydrologique de l'atmosphère terrestre.

Jacobson (2004) estime par ailleurs que l'albédo planétaire est diminué de 0.4 % par la présence de BC sur les surfaces enneigées. Cette estimation, pourtant validée localement par sa confrontation avec de nombreuses observations, est relativement incertaine à cause des difficultés que l'on a à appréhender les variations d'albédo selon la forme des particules de BC et de neige, ainsi que la manière dont elles sont mélangées. À partir de plusieurs études de modélisation qui ont été réalisées (e.g. Koch, 2001 ; Hansen et al., 2005), **l'IPCC (2007) estime le forçage radiatif lié à la présence de BC sur la neige à $+0.10 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.10 \text{ W.m}^{-2}$.**

1.3.3.4 Les aérosols émis par les feux de biomasse

Les aérosols émis par les feux de biomasse sont un mélange de BC, d'OC et de composés inorganiques comme le sulfate et le nitrate. Ils sont généralement étudiés séparément des autres aérosols car leurs émissions sont très variables à la fois dans l'espace et le temps et sont difficilement contrôlables et mesurables. Un feu de biomasse peut injecter localement dans l'atmosphère de très grandes quantités d'aérosols à des altitudes élevées à cause de la pyroconvection (Formenti et al., 2003). Les émissions d'aérosols provenant des feux de biomasse sont plus difficiles à évaluer que celles des aérosols carbonés anthropiques. Bond et al. (2004) estiment ainsi les valeurs centrales et les intervalles d'incertitude à 3.3 (1.6-9.8) Tg pour BC et 25 (13-57) Tg pour OC.

Le rayonnement solaire est à la fois diffusé et absorbé par les aérosols provenant des feux de biomasse. Le forçage radiatif de ces aérosols dépend fortement de leur profil vertical dans

l'atmosphère, ainsi que de la présence ou non de nuages. L'utilisation récente de mesures par satellites et LIDAR a permis de préciser la représentation de ces aérosols dans les modèles numériques et d'évaluer de manière plus réaliste le forçage radiatif de ces aérosols ce qui n'était pas possible il y a quelques années (Myrhe et al., 2003). Le forçage radiatif associé à ces aérosols est négatif par ciel clair. Par ciel nuageux, il peut atteindre de fortes valeurs positives si les aérosols sont transportés en dessus de la couverture nuageuse (Abel et al., 2005). C'est le cas de Hsu et al. (2003) qui observent lors d'épisodes de feux de biomasse en Asie du Sud-Est une diminution de 100 W.m^{-2} du réfléchissement du rayonnement solaire par une combinaison d'effets directs et indirects.

Textor et al. (2006) montrent que les profils verticaux d'aérosols de feux de biomasse sont très variables d'un modèle à l'autre dans le cadre de l'exercice AEROCOM. La connaissance du profil vertical de ces aérosols est fondamentale pour déterminer l'ordre de grandeur mais aussi le signe de leur forçage radiatif, qui diffère d'une estimation à l'autre. **L'IPCC (2007) évalue le forçage radiatif des aérosols émis par les feux de biomasse à $+0.03 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.12 \text{ W.m}^{-2}$.**

1.3.3.5 Les aérosols de nitrate d'ammonium

Les aérosols de nitrate d'ammonium se forment là où l'atmosphère est peu concentrée en sulfate et fortement concentrée en ammonium. De fortes concentrations de ces aérosols sont observées dans des régions industrialisées alors que l'on en trouve peu dans les zones rurales (Putaud et al., 2004). La diminution des émissions de composés soufrés dans les régions polluées implique une augmentation de la production d'aérosols de nitrate d'ammonium (Liao et Seinfeld, 2005). Peu d'études ont été menées sur l'évolution de ces aérosols dans l'atmosphère, cet aérosol n'a d'ailleurs pas été étudié dans le cadre du projet AEROCOM. Le comportement hygroscopique et les propriétés radiatives des aérosols de nitrate d'ammonium restent mal connus, même si l'on sait qu'ils sont peu absorbants mais fortement diffusifs dans le spectre visible. **L'IPCC évalue le forçage radiatif de ces aérosols à $-0.10 \text{ W.m}^{-2} \pm 0.10 \text{ W.m}^{-2}$.**

1.3.3.6 Les aérosols minéraux

Les aérosols minéraux sont émis dans l'atmosphère par des sources naturelles et anthropiques à la fois. Les sources naturelles concernent essentiellement l'arrachement de particules sur des surfaces désertiques, alors que les sources anthropiques proviennent de l'agriculture (récoltes, labourage et pâturage extensif) et de certaines pratiques industrielles (cimenteries, transport). L'arrachement de particules au sol est aussi intensifié dans les zones humides asséchées par les activités humaines (mer d'Aral, mer Caspienne,...). La difficulté à évaluer le forçage radiatif des aérosols minéraux provient en premier lieu des difficultés à quantifier leurs sources, estimées entre 1000 et 2150 Tg.yr^{-1} (Zender, 2004). Par ailleurs, le signe et l'ordre de grandeur de ce forçage dépendent de la compétition entre l'extinction du rayonnement solaire – fonction de l'albédo simple de diffusion des particules – et de l'extinction du rayonnement de la surface terrestre – déterminé essentiellement par le profil vertical des aérosols -. Le forçage radiatif de l'ensemble des aérosols minéraux, naturels et anthropiques, est calculé à partir de la somme d'une composante négative dans les courtes longueurs d'ondes et d'une composante positive dans les grandes longueurs d'ondes (eg. Liao et al., 2004, Reddy et al., 2005). **L'IPCC évalue à 20% la contribution des émissions anthropiques aux émissions totales de poussières minérales. Il estime que le forçage des aérosols minéraux anthropiques est compris entre -0.3 W.m^{-2} et $+0.1 \text{ W.m}^{-2}$.**

1.3.3.7 Effet direct de tous les aérosols anthropiques combinés

La figure 1.5, construite à partir des simulations des différents modèles qui ont participé à l'exercice AEROCOM synthétise l'état de l'art sur l'effet direct de l'ensemble des aérosols. L'épaisseur optique des aérosols anthropiques atteint des valeurs maximales dans les régions industrialisées et dans les zones où il y a des feux de biomasse (Fig. 1.5.a). La différence entre l'épaisseur optique simulée et observée (Fig. 1.5.b) peut atteindre 0.1. La Figure 1.5.c montre que dans certaines régions d'Afrique du Sud, les aérosols issus de feux de biomasse peuvent exercer un forçage radiatif fortement positif en étant transportés en dessus de la couverture nuageuse. La figure 1.5.d montre l'écart type du forçage radiatif simulé par 9 modèles. Les plus grandes incertitudes, allant jusqu'à $\pm 3 \text{ W.m}^{-2}$, sont rencontrées dans les régions industrialisées d'Asie du Sud-Est ainsi que dans les pays d'Afrique où se produisent d'importants feux de biomasse. La Fig. 1.5.e montre que l'absorption des aérosols anthropiques apporte un flux de chaleur moyen dans l'atmosphère de 0.9 W.m^{-2} , pouvant atteindre localement 5 W.m^{-2} . Ces effets régionaux ainsi que le forçage négatif dans les courtes longueurs d'onde en surface (Fig. 1.5.f) ont un impact certain sur le cycle hydrologique et donc sur le climat.

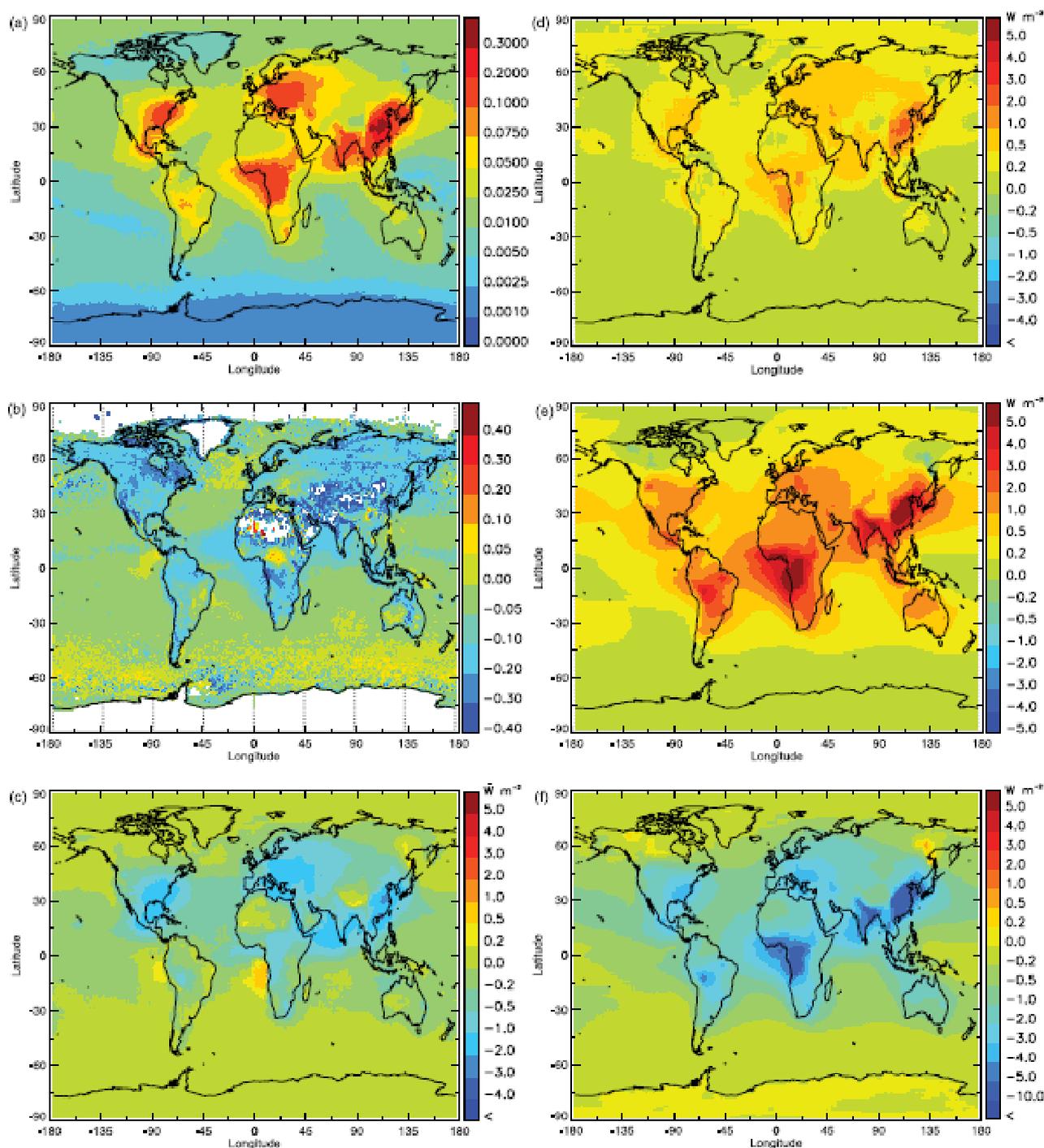


Figure 1.5 : Caractéristiques et effets radiatifs des aérosols anthropiques selon neuf modèles du projet AEROCOM. Toutes les cartes concernent uniquement les aérosols anthropiques, excepté la carte (b) qui concerne à la fois les aérosols anthropiques et naturels. (a) Épaisseur optique à 550 nm des aérosols. (b) Différence entre l'épaisseur optique totale des aérosols modélisée et observée par le satellite MODIS. (c) Forçage radiatif dans les courtes longueurs d'onde. (d) Écart-type des forçages radiatifs décrits par les différents modèles. (e) Flux solaire absorbé par l'atmosphère. (f) Forçage radiatif en surface. Tous les flux et forçages sont exprimés en $W.m^{-2}$ (IPCC, 2007).

Les modèles numériques simulant aujourd'hui la majorité des aérosols anthropiques, leurs résultats peuvent maintenant être confrontés aux images satellites (Fig. 1.4.b), ce qui permet d'évaluer les faiblesses actuelles des modèles : de grandes incertitudes existent encore dans la modélisation des aérosols organiques et la plupart des modèles ne représentent pas les aérosols nitrates ni les poussières minérales anthropiques. Par ailleurs, si la majeure partie des aérosols sont représentés dans les modèles, de nombreuses interactions entre les différentes espèces chimiques ne sont pas prises en compte. Chung et Seinfeld (2002) montrent que les aérosols de carbone-suie peuvent exercer un plus grand forçage radiatif lorsqu'ils sont mélangés avec d'autres particules. Des réactions chimiques hétérogènes entre les poussières minérales et le sulfate atmosphérique peuvent diminuer la charge de celui-ci de 28 % (Liao et al., 2004). Une grande part de l'incertitude dans le forçage radiatif des aérosols provient du fait que les modèles tendent à sous-estimer le pouvoir absorbant des particules de carbone-suie, mais aussi celui des aérosols organiques et des poussières minérales. Enfin, la variabilité du forçage radiatif des aérosols anthropiques est aussi largement liée à la variabilité des modèles à représenter la couverture nuageuse.

Des estimations satellites récentes permettent d'évaluer plus précisément le forçage radiatif des aérosols, notamment par ciel clair. Celles-ci laissent penser que les modèles ont tendance à sous-estimer les effets directs des aérosols de 40 % (Yu et al., 2006). L'analyse d'images satellites a permis d'estimer à 21 % la contribution des aérosols anthropiques à l'épaisseur optique de l'ensemble des aérosols (Kaufman et al., 2005a).

La confrontation des résultats des modèles avec les différentes études réalisées à partir d'images satellites a permis à l'IPCC de réduire l'intervalle d'incertitude de l'effet direct des aérosols. **L'IPCC estime à -0.5 W.m^{-2} à $\pm 0.4 \text{ W.m}^{-2}$ l'effet direct des aérosols anthropiques.**

1.3.4 Evaluation des effets indirects

1.3.4.1 Lien entre les particules et la microphysique nuageuse

Une atmosphère polluée contient un plus grand nombre de particules qu'une atmosphère saine. De plus, les aérosols anthropiques sont généralement de plus petite taille que les aérosols naturels. Les aérosols jouant le rôle de noyaux de condensation pour les gouttelettes d'eau ou les cristaux de glace dans les nuages, la pollution atmosphérique a donc un impact sur la physique des nuages et par suite sur le climat (cf partie 1.3.1.2). Ce paragraphe décrit brièvement jusqu'à quel point il est possible aujourd'hui d'évaluer ces processus ; ces aspects sont détaillés dans les rapports (IPCC, 2007) et (Heintzenberg et Charlson, 2008).

Plusieurs études ont mis en évidence une corrélation négative entre le nombre d'aérosols et la taille des gouttelettes d'eau nuageuse (Twohy et al., 2005). Feingold et al. (2003) confirment que cette relation n'est pas linéaire, et qu'elle vérifie $N_d \approx (N_a)^b$, où N_d est la densité de gouttelettes d'eau nuageuse et N_a le nombre d'aérosols. Le paramètre b est proportionnel à l'hygroscopicité des particules, il peut varier dans un intervalle allant de 0.06 à 0.48 (IPCC, 2007). L'habilité des aérosols à jouer le rôle de noyau de condensation dépend de leur composition chimique (Penner et al., 2004), et essentiellement de leur taille (Dusek et al., 2006). De nombreuses études, basées sur des simulations mais aussi sur des observations montrent qu'une diminution de la taille des gouttelettes d'eau induit une augmentation de l'albédo des nuages (Penner et al., 2004 ; Brenguier et al., 2000 ; Nakajima et al., 2001). Cet effet est généralement représenté dans les modèles, à partir de relations simplifiées entre le nombre d'aérosols et le nombre de gouttelettes d'eau nuageuses d'une part (Boucher et

Lohmann, 1995), et entre le contenu en eau intégré et l'albédo des nuages d'autre part. Cependant, ce type de relation n'est applicable que pour un contenu en eau liquide du nuage à peu près constant dans le temps, ce qui n'est pas forcément observé dans la réalité. Plusieurs études ont montré que le profil d'humidité pilote l'interaction entre les aérosols et le cycle de vie des nuages (Brenquier et al., 2003, Sandu, 2007). Lorsque l'atmosphère libre est suffisamment humide, l'inhibition des précipitations par l'aérosol limite les pertes d'eau condensée dans le nuage, et son contenu en eau intégré, donc son albédo, augmentent. On a là une description du premier effet indirect (augmentation de l'albédo du nuage) ainsi que du second (rallongement de la durée de vie du nuage). Cependant, lorsque l'atmosphère libre est très sèche et chaude, l'entraînement sommital augmente et il assèche progressivement la couche limite, dont le contenu en eau et l'albédo diminuent. Le forçage radiatif de l'effet indirect des aérosols change alors de signe. Ces processus restent mal décrits dans les modèles de climat à l'heure actuelle, dont la résolution est bien supérieure à l'échelle de la microphysique en jeu. Des études à partir de modèles méso-échelle à résolution fine sont encore nécessaires pour élaborer des paramétrisations applicables dans les modèles globaux (Sandu, 2007).

1.3.4.2 Estimation du forçage radiatif lié au changement d'albédo des nuages

L'évaluation du forçage radiatif lié au changement d'albédo des nuages a été évaluée par de nombreux modèles, avec des résultats variant de -0.22 à -1.85 W.m^{-2} . La taille de cet intervalle d'incertitude s'explique par la variété de la représentation des processus mis en jeu (IPCC, 2007). Les modèles ne prennent pas en compte les mêmes aérosols. Liu et Daum (2002) expliquent qu'un élargissement de 15 % de la distribution en taille des aérosols dans un modèle aboutit à une réduction de 10 à 80 % du premier effet indirect.

Les images satellites sont très efficaces pour valider les estimations des effets directs, mais sont plus délicates à utiliser pour estimer les effets indirects. En effet, elles ne permettent pas de différencier les évolutions d'albédo des nuages liées aux variations de la concentration en aérosols de celles liées à la variation du contenu en eau nuageuse. Quaas et Boucher (2005), à partir de données POLDER et MODIS, ont établi des relations entre les propriétés nuageuses et les concentrations d'aérosols. En intégrant ces relations dans des modèles de climat, l'estimation du premier effet indirect des aérosols est diminuée de 50 % par rapport à celle qui avait été faite à partir de relations classiquement utilisées. D'autres études de ce type, combinant observations satellite et modélisation, ont abouti à des évaluations du premier effet indirect plus faibles qu'auparavant, tout en réduisant l'intervalle d'incertitude (Sekiguchi et al., 2006). **L'IPCC (2007) estime le forçage radiatif lié au premier effet indirect à -0.7 W.m^{-2} , dans un intervalle de confiance allant de -0.3 à -1.8 W.m^{-2} .**

1.4 Les objectifs de cette thèse

Les objectifs de cette thèse concernent l'amélioration de la représentation des aérosols dans les modèles globaux, en vue de quantifier la concentration de l'atmosphère en aérosols, ainsi que d'évaluer leur impact sur le climat. Après ce premier chapitre qui synthétise les connaissances actuelles sur cette thématique, un deuxième chapitre présente le modèle de chimie-transport qui a été utilisé tout au long de cette thèse. Ce deuxième chapitre décrit les différentes paramétrisations décrivant le comportement des aérosols dans le modèle, et notamment les modifications qui ont été apportées pour obtenir une configuration optimale dans le cadre de simulations globales pluriannuelles. Le troisième chapitre présente des analyses du comportement de l'aérosol atmosphérique en Europe, ainsi qu'aux hautes latitudes Nord et Sud. Ce chapitre est principalement axé sur l'étude du cycle du soufre, le sulfate étant un aérosol tout récemment pris en compte dans le modèle de chimie-transport que nous avons utilisé. Les atouts et les défauts de ce modèle sont mis en exergue au travers des études régionales exposées dans ce chapitre. Une attention particulière est portée à la représentation du lessivage, point crucial dans la modélisation du sulfate. Le quatrième chapitre est une analyse globale des champs modélisés de sulfate, de carbone-suie et de poussières minérales. Une étude de sensibilité des champs d'aérosols aux forçages météorologiques utilisés dans les simulations permet d'optimiser la modélisation des aérosols. Les résultats sont confrontés avec les simulations réalisées dans le cadre de l'exercice d'intercomparaison AEROCOM. Le cinquième chapitre est une ouverture sur la problématique de l'interaction entre climat, atmosphère et aérosol : les champs d'aérosols que nous avons simulés, validés à partir des analyses présentées dans les chapitre 3 et 4, sont utilisés pour réaliser des simulations avec un modèle de climat. L'impact des aérosols sur les régimes de temps dans le Nord de l'Atlantique est analysé au travers de cette simulation. Les conclusions de cette thèse présentent les principaux points à respecter en ce qui concerne la modélisation des aérosols atmosphériques d'une part et la modélisation de leur impact sur le climat d'autre part.

Chapitre 2 : Présentation du modèle de chimie-transport MOCAGE

Un Modèle de Chimie-Transport (*Chemical-Transport Model* en anglais, CTM) est un modèle qui simule l'évolution de composés chimiques dans l'atmosphère. Modéliser les évolutions d'une espèce chimique particulière nécessite de prendre en compte l'ensemble des réactions chimiques qui impactent la concentration de cette espèce, ainsi que les processus physiques qui vont piloter sa concentration, et en particulier le transport de cette espèce dans l'atmosphère. Les processus d'émission et de dépôt des espèces chimiques doivent aussi être représentés dans un CTM. La modélisation des espèces chimiques dans l'atmosphère est dépendante de celle des variables météorologiques, qui peuvent être simulées par des Modèles de Circulation Générale (MCG, ou GCM en anglais). La simulation d'un CTM est donc nécessairement associée à une simulation réalisée par un MCG. Celle-ci peut être une analyse ou une réanalyse effectuée par un modèle de prévision météorologique, ou une simulation réalisée par un modèle de climat. Un CTM peut fonctionner soit en mode « forcé », c'est à dire qu'il utilise les champs météorologiques d'une simulation réalisée au préalable par un MCG, soit en mode « couplé ». Dans une telle configuration, le CTM et le GCM fonctionnent simultanément, les deux modèles s'échangeant alors des informations au cours de la simulation. Ce type de configuration est très utile pour étudier les rétroactions entre l'atmosphère et les espèces chimiques.

Ce chapitre présente le CTM qui a été utilisé au cours de ce travail de thèse. La section 2.2 expose rapidement l'histoire de ce CTM. La représentation des processus dynamiques et physiques est décrite dans la section 2.2. La section 2.3 présente les différents schémas chimiques qui peuvent être utilisés dans les simulations. La manière dont est pris en compte l'aérosol atmosphérique dans le modèle est exposée dans la section 2.4. La section 2.5 présente la configuration du CTM avec laquelle ce travail de thèse a été réalisé, et en particulier les forçages météorologiques ainsi que l'inventaire d'émissions utilisé au cours de nos simulations. Un bilan des principaux processus pris en compte dans les simulations de l'aérosols avec MOCAGE est établi à la fin de ce chapitre.

2.1 Historique du modèle MOCAGE

Le projet MOCAGE (MODèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle) a été lancé au Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) de Météo-France en 2000. Ce CTM a été configuré pour fonctionner avec les analyses du modèle opérationnel de prévision de Météo-France, ARPEGE. MOCAGE, utilisé tant à l'échelle globale qu'à des échelles régionales, a tout d'abord été utilisé pour modéliser la physique et la chimie des composés atmosphériques gazeux. Il existe actuellement une version de ce modèle dédiée à l'étude de l'aérosol atmosphérique. Elle a été mise en place en 2003 pour l'étude du carbone-suie. Les émissions en surface, l'advection, la convection et la diffusion sont représentés dans le code de manière identique pour les gaz et les aérosols. En revanche, le dépôt sec et le dépôt humide sont décrits différemment pour les gaz et les aérosols ; une paramétrisation spécifique a de plus été insérée pour représenter la sédimentation des aérosols (Nho-Kim, 2003). La représentation des poussières désertiques a ensuite été intégrée dans MOCAGE. Les simulations de cet aérosol, ainsi que celles du carbone-suie et des sels marins a été évaluée à l'échelle globale par Martet (2008). Par ailleurs, des simulations du sulfate avec MOCAGE ont été réalisées par Dombrowski-Etchevers (2008). Le sulfate, contrairement aux autres espèces aérosol prises en compte dans MOCAGE jusqu'à ce moment-là, intervient dans plusieurs réactions chimiques. Dans MOCAGE, différents schémas chimiques peuvent être utilisés pour décrire les réactions chimiques dans lesquelles gaz et aérosols interviennent. Dombrowski-Etchevers (2008) a confronté des simulations de la concentration en sulfate avec des observations réalisées en Europe dans le cadre du projet CARBOSOL (Legrand and Puxbaum, 2007). Ces comparaisons ont permis de mieux évaluer les évolutions locales de la concentration en sulfate aux stations de mesure CARBOSOL, dont certaines sont situées à des altitudes élevées. Cependant, les simulations réalisées dans le cadre de cette étude couvrent des périodes bien plus courtes que le cycle annuel, ce qui rend délicat l'évaluation générale de ces simulations, notamment en terme d'évaluation de la charge globale de sulfate. De plus, dans ces simulations, le sulfate a été considéré comme une espèce gazeuse, alors qu'il est présent sous forme solide dans l'atmosphère.

Dans le cadre de ce travail de thèse, le sulfate a été considéré comme une espèce aérosol, ce qui a nécessité l'introduction de modifications dans le modèle, présentées au cours de ce chapitre. De plus, pour permettre des simulations plus rapides, un nouveau schéma chimique a été intégré dans MOCAGE, limité aux réactions nécessaires à la représentation du sulfate. La configuration de MOCAGE qui est présentée à la fin de ce chapitre est celle qui a été optimisée pour permettre de simuler au mieux le sulfate, le carbone-suie et les poussières désertiques à l'échelle globale.

2.2 Représentation des processus dynamiques et physiques

Le modèle MOCAGE prend en compte l'advection, la convection et la diffusion turbulente des espèces chimiques. La représentation dans MOCAGE de ces processus est décrite dans les trois paragraphes suivants. Le transport par advection, phénomène de grande échelle, peut être résolu sur la grille de MOCAGE. Ce n'est pas le cas de la convection et de la diffusion turbulente, phénomènes de petite échelle, qui ne peuvent être calculés explicitement sur la grille trop grossière de MOCAGE. On fait donc appel à des paramétrisations pour représenter ces deux processus qui sont cruciaux en ce qui concerne le transport des espèces chimiques. Les processus physiques de dépôt sec et humide des espèces gazeuses sont aussi paramétrisés dans le modèle, comme cela est décrit dans le dernier paragraphe de cette section 2.2. Le transport par advection est appliqué avec un pas de temps de 30 minutes, alors que les autres processus physiques sont calculés avec un pas de temps de 15 minutes dans le modèle MOCAGE.

2.2.1 Le schéma d'advection

L'advection dans MOCAGE est décrite par un schéma semi-lagrangien basé sur (Williamson et Rash, 1989). Ce schéma consiste à combiner l'approche lagrangienne et eulérienne : à chaque pas de temps, on calcule les rétro-trajectoires (lagrangiennes) des points d'une grille fixe (eulérienne). Pour une variable conservative, la valeur au point d'arrivée à l'instant $t+dt$ est égale à celle au point de départ à l'instant t . On détermine la position du point de départ par rétro-trajectoires, passant ainsi d'un problème temporel à un problème spatial. Si les points d'arrivée sont répartis sur une grille et si l'on est capable de déterminer la valeur de la variable au point d'origine, alors la distribution spatiale à $t+dt$ est connue. La variable au point d'origine est calculée par interpolation cubique des points de grille l'entourant.

Ce schéma présente l'avantage de fonctionner quelque soit le pas de temps et la résolution du modèle. De plus, le coût de calcul n'est pas proportionnel au nombre de traceurs traités, car les rétro-trajectoires sont indépendantes de l'espèce considérée. Ce schéma a l'inconvénient d'être trop diffusif. De plus, sa non-conservativité nécessite la mise en place d'une contrainte de conservation globale de la masse des traceurs. On trouvera une description plus détaillée de ce schéma dans (Josse, 2004a).

2.2.2 Le transport convectif

La distribution des espèces chimiques est très fortement modifiée par le transport convectif : des espèces émises en basses couches peuvent être transportées en très haute troposphère en quelques dizaines de minutes. De plus, ces espèces ont une durée de vie bien plus longue lorsqu'elles se trouvent en altitude que si elles étaient restées près de la surface. Ces processus doivent donc absolument être représentés dans un modèle de chimie-transport. La convection dans MOCAGE représenté par une paramétrisation qui s'appuie sur les variables météorologiques de grande échelle fournies par le MCG. Dans sa configuration actuelle, MOCAGE reçoit des informations d'ARPEGE toutes les six heures. Ce pas de temps est trop grand pour décrire correctement les mouvements convectifs au sein de l'atmosphère. MOCAGE contient donc sa propre représentation de la convection, processus qui se déroule à

des échelles de temps relativement petites. De plus, la représentation de la convection dans MOCAGE permet de diagnostiquer précisément, via un autre schéma de paramétrisation, le lessivage des espèces chimiques dans les nuages convectifs. La représentation de la convection dans MOCAGE n'est utilisée que pour décrire le transport convectif des espèces chimiques, et n'a aucune rétroaction sur les variables thermodynamiques fournies par le MCG.

Le schéma de convection de MOCAGE est celui de Kain et Fritsch, (1990) - Bechtold et al., (2001), dénommé avec les initiales de ses auteurs (KFB); il est de type « flux de masse ». Le principe d'un tel schéma consiste à considérer l'équilibre dans les nuages entre les flux verticaux, l'entraînement et le déentraînement. Ces flux sont schématisés sur la figure 2.1. L'updraft est le courant ascendant lié à la montée de l'air plus léger que l'air environnant. Le downdraft correspond à la subsidence de masse d'air plus froide dans le nuage. Au cours de ces mouvements verticaux, les différences de flottabilité des masses d'air provoquent des mouvements horizontaux : l'entraînement correspond à l'incorporation dans le nuage de l'air extérieur, et le déentraînement correspond à l'expulsion de l'air du nuage.

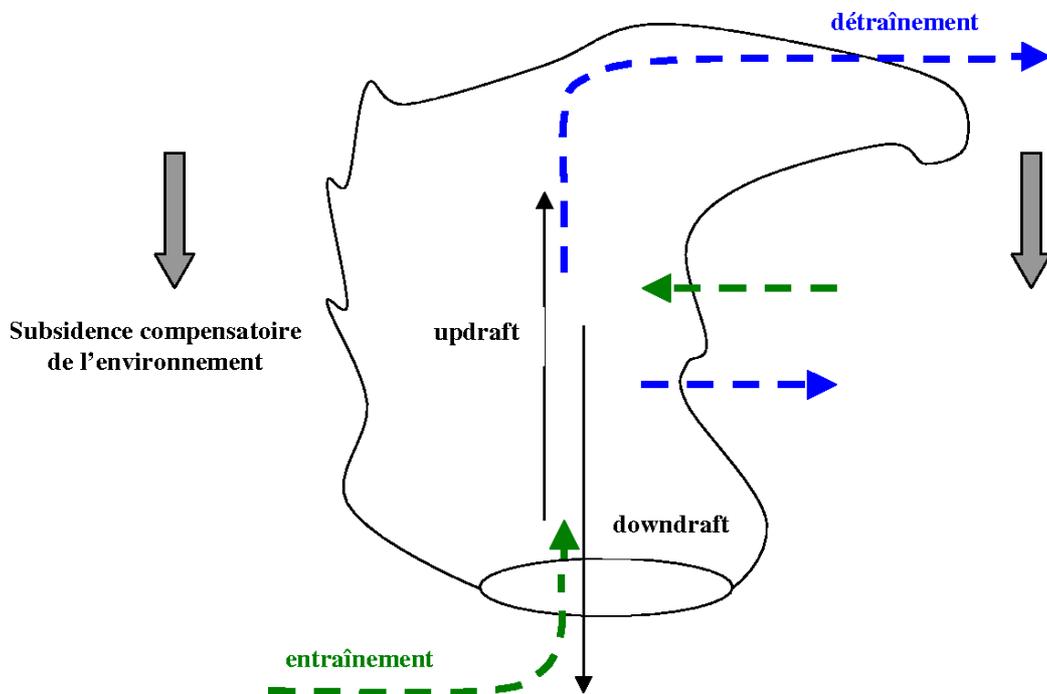


Figure 2.1 : Représentation schématique des phénomènes se déroulant dans un environnement convectif.

Ce schéma est formalisé dans MOCAGE par l'équilibre entre les variations de flux de masse vertical $\frac{\partial M}{\partial z}$, l'entraînement E et le déentraînement D :

$$\frac{\partial M}{\partial z} = E - D \quad (2.1)$$

La convection est déclenchée selon un critère qui dépend de la stabilité des masses d'air ainsi que de l'épaisseur du nuage. Une fois déclenchée, on calcule les différents termes de l'équation (2.1), niveau par niveau, en partant des conditions aux limites à la base du nuage. Ce calcul est détaillé dans (Josse, 2004a).

Le transport vertical du rapport de mélange d'une espèce est ensuite représenté par le produit du flux de masse d'air par le gradient de ce rapport de mélange entre l'updraft et l'air environnant.

Notons que ce schéma n'est pas tout à fait conservatif. Pour les aérosols, une correction de masse sur la verticale est appliquée après le passage dans la routine de convection (un coefficient multiplicatif appliqué à l'ensemble du profil vertical de concentration). Notons que cette correction n'est pas appliquée pour les espèces gazeuses, car le lessivage par les nuages convectifs est réalisé dans cette même routine. Pour les espèces aérosols, le lessivage est paramétré dans une autre partie du code, qui est détaillée dans la partie 2.5.5.3.

2.2.3 La diffusion

Dans la couche limite atmosphérique, l'écoulement est fortement turbulent, ce qui va tendre à homogénéiser les concentrations des différentes espèces chimiques de manière très efficace. Les effets de viscosité et de diffusion moléculaire sont négligeables devant les effets de la diffusion turbulente ; ils ne sont donc pas pris en compte dans les modèles de chimie-transport. Prandtl (1942) décrit le mélange turbulent dans une couche limite le long d'une surface en supposant un modèle horizontal. Ce modèle décrit donc la diffusion turbulente uniquement sur la verticale ; Il s'écrit, pour une variable conservative ψ :

$$\left(\frac{\partial \bar{\psi}}{\partial t}\right)_{turb} = -\frac{\partial(\overline{\omega'\psi'})}{\partial z} \quad (2.2)$$

Par analogie à la diffusion moléculaire, Prandtl suppose que les flux turbulents sont proportionnels au gradient moyen de la variable considérée via un coefficient d'échange turbulent K_z :

$$\frac{\partial(\overline{\omega'\psi'})}{\partial z} = -K_z \left(\frac{\partial \bar{\psi}}{\partial z}\right) \quad (2.3)$$

Par suite, on peut écrire qu'un flux de traceur Tr est proportionnel à son gradient vertical de densité ρ_{tr} :

$$Tr = -K_z \left(\frac{\partial \rho_{tr}}{\partial z}\right) \quad (2.4)$$

Dans MOCAGE, pour définir K , on utilise le schéma de paramétrisation de Louis (1979). Ce schéma d'ordre 1 évalue K_z en fonction de la stabilité de l'atmosphère et permet de décrire la diffusion turbulente des différentes espèces, gaz et aérosols, dans le modèle. Il est détaillé dans (Josse, 2004a).

2.2.4 Le dépôt sec et humide des espèces gazeuses

Le dépôt sec des gaz caractérise le transfert d'un gaz depuis l'atmosphère vers la surface terrestre. Il est actif dans la couche limite de surface, qui représente environ 10% de la couche limite atmosphérique, celle-ci ayant une épaisseur variant de quelques dizaines de mètres à 2 à 3 km selon l'état de la surface. Sa paramétrisation, basée sur Wesely (1989), décrit le transfert des gaz atmosphériques vers la surface par diffusion turbulente. Elle est détaillée dans Aguirre-Michou (2005). Dans MOCAGE, un modèle dénommé « SUMO » calcule au préalable les vitesses de dépôt sec, à partir des propriétés physiques des espèces chimiques, des caractéristiques aérodynamique de la surface et des conditions météorologiques. Dans le cadre de nos simulations, nous avons utilisé des moyennes mensuelles de ces vitesses de dépôt, calculées pour l'année 2000. Par souci de simplification, ce sont les mêmes moyennes qui ont été utilisées pour toutes les simulations MOCAGE dans ce travail de thèse, quelque soit l'année de la simulation et les forçages météorologiques utilisés.

Le lessivage désigne l'élimination par les hydrométéores (pluie, neige, brouillard, gouttelettes d'eau nuageuse) d'une particule atmosphérique. L'arrivée au sol de l'espèce lessivée est appelée dépôt humide. D'une manière générale, on distingue le lessivage « dans les nuages » du lessivage « sous les nuages ». Le lessivage « dans les nuages » est décrit dans MOCAGE selon Mari et al. (2000) pour les phénomènes convectifs et selon Giorgi et Chameides (1986) dans les nuages stratiformes (i.e. les nuages de grande échelle). La paramétrisation de Liu et al (2001) est utilisée pour représenter le lessivage sous les nuages convectifs et stratiformes. Le processus de réévaporation des gouttes de pluie sous les nuages, qui réinjecte dans l'atmosphère une partie des espèces lessivées est pris aussi en compte dans MOCAGE. L'ensemble des paramétrisations décrivant ces processus de dépôt humide est détaillé dans Josse (2004a).

2.3 Modélisation de la chimie atmosphérique

2.3.1 Le schéma chimique de MOCAGE

Différents schémas chimiques sont utilisés dans les simulations réalisées avec MOCAGE. Parmi eux, le schéma « RACMOBUS » est une combinaison du schéma troposphérique « RACM » (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism, Stockwell et al. 1997) et du schéma stratosphérique REPROBUS pour la stratosphère (Lefèvre et al., 1994). Une version allégée du schéma RACM a été mise au point par Crassier et al. (2000). Au CNRM, la chimie stratosphérique du schéma REPROBUS a été ajoutée au schéma RELACS, formant un schéma chimique détaillé faisant intervenir 82 espèces et prenant en compte 242 réactions chimiques (Teyssède et al., 2007). Ce schéma a une formulation semi-implicite, et décrit de manière relativement précise la chimie des oxydants atmosphériques. En revanche, il ne prend pas en compte les réactions chimiques qui concernent le cycle du soufre. Leur représentation a été intégrée au schéma RACMOBUS dans MOCAGE par Dombrowski-Etchevers (2008). Dans le cadre de ce travail de thèse, un schéma chimique simplifié a été introduit dans MOCAGE pour décrire le cycle du soufre et la formation des aérosols sulfatés.

2.3.2 Schéma chimique du cycle du soufre

Le cycle du soufre est décrit dans MOCAGE par un schéma simplifié faisant intervenir les principales réactions chimiques nécessaires à la représentation de la formation des aérosols soufrés dans la troposphère. Ces réactions font intervenir six espèces soufrées : le sulfure de diméthyle (DMS), le dioxyde de soufre (SO_2), le sulfure d'hydrogène (H_2S), l'oxysulfure de diméthyle (DMSO), l'acide méthane sulfonique (MSA) et le sulfate non marin (SO_4^{2-}). Les espèces intermédiaires non prises en compte sont admises comme ayant un temps de vie court devant celui des six espèces considérées. Parmi les espèces soufrées, trois sont émises dans l'atmosphère : le DMS, essentiellement d'origine marine, le SO_2 , émis majoritairement par les activités anthropiques et les feux de biomasse, mais aussi par les volcans, et le H_2S , d'origine anthropique et naturelle.

Les oxydants intervenant dans la chimie du soufre sont les suivants : le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 , le radical hydroxyle OH, l'hydroperoxyde HO_2 et le nitrate NO_3 . Dans le cadre des simulations réalisées avec le schéma chimique simplifié, ces champs d'oxydants sont des climatologies mensuelles avec une variation diurne (un champ toute les six heures). Elles ont été obtenues à partir d'une simulation réalisée avec MOCAGE faisant intervenir le schéma chimique plus détaillé RELACS (Teyssède et al., 2007).

Le schéma chimique est illustré par la figure 2.2 et l'ensemble des réactions, avec leurs constantes cinétiques, est répertorié dans la table 2.1. Parmi les neuf réactions chimiques, sept se produisent en phase gazeuse et deux en phase aqueuse :

- *Chimie en phase gazeuse :*

On trouvera une description détaillée de la chimie du soufre en phase gazeuse dans Seinfeld et Pandis (2006, p.266). Sa représentation dans MOCAGE suit le schéma de Pham et al. (1995). Elle comprend les réactions DMS+NO₃ conduisant au SO₂, DMS+OH (voies d'addition et d'abstraction) conduisant au DMSO et au SO₂, DMSO+OH conduisant au SO₂ et au MSA, SO₂+OH conduisant au sulfate et H₂S+OH conduisant au SO₂.

Le pas de temps de la chimie gazeuse dépend du niveau du modèle. Il est plus court aux altitudes où les concentrations des espèces considérées sont les plus fortes et où les réactions chimiques sont les plus actives : Il varie de 15 min au sommet de l'atmosphère à 20 secondes dans les basses couches de la troposphère.

Un critère de conservation du nombre d'atomes de soufre a été mis en place de manière à ce que la quantité de S reste constante au cours de la représentation des processus chimiques dans le code. Notons que ce même type de critère de conservation des atomes est employé dans le schéma chimique RELACS.

- *Chimie aqueuse*

La chimie en phase aqueuse concerne l'oxydation de SO₂ par O₃ et H₂O₂. Le pas de temps de la chimie aqueuse est de 2 minutes pour rendre compte des processus rapides que sont la dissolution du SO₂ gazeux (SO_{2(g)}) en phase aqueuse, la dissociation du SO₂ aqueux (SO_{2(aq)}), et les variations du pH, dont dépend l'oxydation de SO_{2(g)} par O₃. Le pH des gouttelettes d'eau nuageuses est calculé selon l'équation d'électroneutralité dans laquelle NH₄⁺ et H⁺ sont les seuls cations et l'ion NO₃⁻ est négligé :

$$[H^+] = 2[SO_4^{2-}] + 2[HSO_3^{2-}] + [HSO_3^-] + [OH^-] - [NH_4^+] \quad (2.5)$$

Le rapport molaire [NH₄⁺]/[SO₄²⁻] dans l'eau de nuage est fixé à 1.0 dans les environnements éloignés des sources de pollution et 1.5 en environnement pollué. Le critère de l'environnement pollué est une concentration de sulfate dans l'eau de nuage supérieure à 15μM[SO₄²⁻]/M[air]. Cette formulation est établie à partir des mesures de Covert (1988) et des concentrations globales de sulfate reportées par Seinfeld et Pandis (1998).

Les concentrations de SO_{2(aq)} et de ses produits de dissociation (HSO₃⁻ et HSO₃²⁻) sont calculées selon la loi de Henry et des équations de dissociation. Les constantes de solubilité et de dissociation sont répertoriées dans la table 2.4.

Le soufre de nombre d'oxydation IV, S_{IV} (SO_{2(aq)} + HSO₃⁻ + HSO₃²⁻) est oxydé par H₂O_{2(aq)} et O_{3(aq)} selon les cinétiques détaillées dans la table 2.4. ces réactions forment exclusivement du sulfate (soufre de nombre d'oxydation VI).

La chimie en phase aqueuse n'est pas opérationnelle dans la fraction de nuage qui se trouve sous forme de glace. La transition solide-liquide dans le nuage est linéaire entre -20°C (nuage entièrement de glace) et -10°C (nuage de gouttelettes entièrement liquides). Ainsi, la chimie aqueuse est désactivée en deçà de -20°C. Durant un pas de temps physique (15 min), les parcelles d'air des parties claire et nuageuse ne sont pas mélangées au sein d'une même maille. Ainsi, si une espèce réactive est entièrement consommée par la chimie aqueuse, elle ne peut pas être renouvelée par un apport de la partie en ciel clair de la maille.

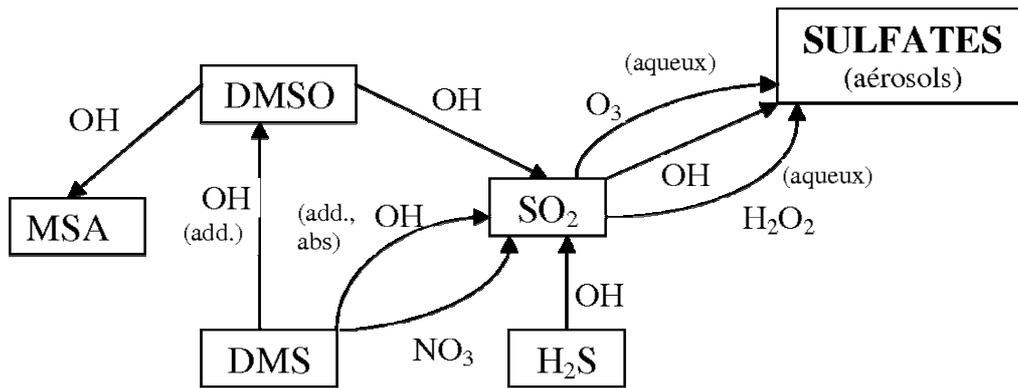


Figure 2.2 : Schéma du cycle du soufre dans MOCAGE (Schéma chimique simplifié)

Le schéma chimique utilisé dans nos simulations décrit des réactions qui ont lieu en grande majorité dans la troposphère. Cependant, le domaine considéré dans le modèle MOCAGE s'étend largement dans la stratosphère (jusqu'à 5 hPa), où d'autres réactions impliquant des composés soufrés ont lieu. Le schéma chimique que nous avons utilisé est appliqué sur la totalité des niveaux de la grille de MOCAGE. En revanche, il est évident que les concentrations en sulfate modélisées dans la stratosphère sont sous-estimées, les réactions produisant du sulfate dans la stratosphère étant négligées. Notre schéma chimique ne prend pas en compte notamment l'oxysulfure de carbone (COS), l'espèce soufrée la plus abondante dans l'atmosphère, mais qui est très peu réactive dans la troposphère. De par sa faible réactivité, le COS a un temps de séjour de l'ordre de un à deux ans dans l'atmosphère (Kjellström, 1998), ce qui lui laisse le temps de pénétrer la stratosphère où il est transformé en sulfate, formant la couche stratosphérique d'aérosols sulfatés (Junge et al., 1961). Par ailleurs, le disulfure de carbone (CS₂), qui est oxydé pour former du COS et du SO₂ est négligé dans le schéma chimique de MOCAGE, car il est émis en très faible quantité (Pham et al., 1995).

Réaction	Vitesse	Référence
Chimie en phase gazeuse		
DMS + OH → SO ₂ + ...	K1=9.6 10 ⁻¹² e ^{-234/T}	a
DMS + OH → xSO ₂ + (1-x)DMSO+...	K2=3.04 10 ⁻¹² e ^{-234/T} * α/(1+α) α = 1.15 10 ⁻³¹ e ^{7460/T} [M] x = 0.6	b
DMS + NO ₃ → SO ₂ + ...	K3 = 1.9 10 ⁻¹³ e ^{-500/T}	c
SO ₂ + OH → sulfate + ...	K4 = α[M]/(1+α[M]/1.5 10 ⁻¹²)*0.6β α = 3*10e-31*(300/T) ^{3.3} β = 1/(1+[log10(α*[M]/1.5*10 ⁻¹²)] ²)	c
DMSO + OH → xSO ₂ + (1-x) MSA+ ...	K5 = 5.8 10 ⁻¹¹	d
H2S + OH → SO ₂ + ...	K6 = 6.0 10 ⁻¹² e ^{-75/T}	c
Chimie en phase aqueuse		
S(IV) + H ₂ O ₂ + → sulfate	K7 _{aq} = 7.5 10 ⁷ e ^{-4430(1/T-1/298)*[H+]_{aq}/(1+13[H+]_{aq})}	
S(IV) + O ₃ + → sulfate	K8 _{1aq} = 4.39 10 ¹¹ e ^(-4131/T) K8 _{2aq} = 3.7 10 ⁵ e ^{(-5530*(1/T-1/298))} K8 _{3aq} = 1.5 10 ⁹ e ^{(-5280*(1/T-1/298))}	e e e
Constantes de solubilité		
SO ₂	1.4 e ^{(2900(1/T-1/298))}	f
H ₂ O ₂	8.3 10 ⁻⁴ e ^{(7400(1/T-1/298))}	g
O ₃	1.0 10 ⁻² e ^{(2300(1/T-1/298))}	g
Constantes de dissociation		
SO ₂ /SO ₃ ⁻	1.3 10 ⁻² e ^{1960(1/T-1/298)}	e
SO ₃ ⁻ /SO ₃ ²⁻	6.6 10 ⁻⁸ e ^{1500(1/T-1/298)}	e
<p>Références : a : Atkinson et al. (1989) ; b : Atkinson et al. (1997) c : Demore et al. (1997) ; NB : l'écriture de K4 (SO₂ + OH → sulfate + ...) diffère selon les références ; il semblerait qu'il y ait une erreur dans Pham et al, 1995 sur le coefficient β (β = 1/(1+[log10(α*[M]/1.5*10⁻¹²)]²) et non pas β = 1/(1+log10(α*[M]/1.5*10⁻¹²)). Il existe une actualisation de ces constantes dans Atkinson et al. (2006) ; d : Chatfield et Crutzen (1990) ; e : Seinfeld et Pandis (1998 et réédition 2006), et Maahs (1983) pour l'erreur ; f : Lide et Frederikse (1995) ; g : Sander (1999) (Sander a répertorié l'ensemble des travaux sur les constantes de solubilité ; ici, les références les plus récentes de sa synthèse ont été utilisées)</p>		

Tableau 2.1 : Constantes cinétiques et physiques du schéma de traitement du soufre dans MOCAGE

2.4 Introduction de l'aérosol dans MOCAGE

2.4.1 Aérosols primaires et secondaires

2.4.1.1 Aérosols primaires

Seuls des aérosols primaires ont été considérés en premier lieu dans MOCAGE. Ils sont considérés comme étant inertes chimiquement, et sont des traceurs qui n'interviennent que dans les paramétrisations physiques du modèle. Les travaux présentés ici concernent le carbone-suie (Black Carbon ou BC) et les poussières désertiques. Ces aérosols sont émis directement dans les premiers niveaux du modèle.

2.4.1.2 Aérosols secondaires

Les aérosols soufrés ont un impact significatif sur le bilan radiatif dans l'atmosphère. C'est pourquoi il est important de les prendre en compte dans les modèles de chimie-transport puis dans les modèles de climat. Une représentation des aérosols soufrés a donc été intégrée dans MOCAGE. Ces aérosols secondaires sont issus majoritairement de l'oxydation du dioxyde de soufre (SO₂). Cette dernière espèce est soit émise directement dans l'atmosphère, soit issue de réactions chimiques faisant intervenir principalement le sulfure de dihydrogène (H₂S) et le Diméthyle Sulfide (DMS). La production chimique de sulfate est simulée dans MOCAGE selon le schéma décrit dans la section 2.3.

D'autres aérosols secondaires, comme par exemple certains aérosols organiques modifient significativement le bilan radiatif à la surface de la terre. Cependant, la complexité des réactions chimiques en jeu, l'incertitude sur les émissions de gaz précurseurs de ces aérosols, la méconnaissance des propriétés physico-chimiques et radiatives de ces aérosols et le manque de données d'observations concernant ces espèces sont autant d'aspects qui compliquent l'étude de l'impact de ces aérosols sur le climat. En ce qui concerne les aérosols secondaires, ce travail se limite à l'étude des aérosols soufrés.

2.4.2 Représentation des distributions d'aérosols dans MOCAGE

Dans l'atmosphère, la composition chimique des aérosols est très variée (sulfates, poussières minérales, carbone-suiés, sels marins, matière organique). De plus, elle évolue très rapidement avec l'âge de la particule dans l'atmosphère. Ainsi, une particule composée d'une seule espèce chimique à sa formation peut, au cours de sa vie dans l'atmosphère, se combiner avec d'autres espèces chimiques par des processus de coagulation (Seinfeld et Pandis, 2006). De plus, les particules hygroscopiques et déliquescentes grandissent avec l'accroissement de l'humidité de l'atmosphère. Leur taille, leur masse volumique et leurs propriétés optiques peuvent alors changer significativement. A ce jour, toutes ces propriétés sont encore mal connues et leur représentation dans des modèles numériques – particulièrement dans des modèles à échelle globale – comporte encore de très fortes incertitudes. Dans MOCAGE, les aérosols sont supposés exister sous forme de « mélange externe », c'est à dire que chaque aérosol est constitué d'une seule espèce chimique.

2.4.2.1 La représentation granulométrique des aérosols dans les modèles

Les processus de lessivage par les précipitations, de dépôt sec à la surface et de sédimentation des aérosols dépendent fortement de la taille des particules (Lunt et Valdes, 2002). Il convient donc de représenter au mieux la granulométrie des aérosols dans les modèles de chimie-transport pour modéliser correctement ces processus physiques. Deux approches sont généralement employées pour prendre en compte la distribution en taille des particules :

- La première consiste à découper la plage de taille des particules en « classes » (ou « bins » en anglais) en fonction de leur diamètre. On peut choisir un grand nombre de « classes » afin d'obtenir un découpage très précis de la distribution (Jacobson, 1997 ; Meng et al., 1998 ; Wexler et al., 1994). Mais un grand nombre de traceurs pénalise éventuellement le coût de calcul.
- La seconde décompose la distribution des aérosols en mode log-normaux, la forme de la distribution est donc définie (Binkowski et Shankar, 1995 ; Ackermann et al., 1998). L'avantage de cette méthode est d'avoir un nombre réduit de traceur et donc un temps de calcul moins important. Par contre, le fait de fixer *a priori* la distribution est une hypothèse forte.

Dans MOCAGE, la distribution des aérosols est décrite selon la première approche. Ce choix a été motivé par la précision apportée par une approche sectionnelle et par la souplesse de la définition de la granulométrie. Cette approche permet de décrire précisément les processus physiques qui dépendent du rayon des aérosols, comme la sédimentation par exemple. De plus, le schéma semi-lagrangien de MOCAGE ayant un temps de calcul pratiquement indépendant du nombre de traceurs, cette approche n'est pas trop pénalisante du point de vue du temps de calcul.

Pour réaliser des simulations de l'aérosol atmosphérique, un inventaire des émissions de surface doit être élaboré. Celui-ci fournit au CTM les quantités d'aérosols qui sont émises en surface. Les caractéristiques géométriques des aérosols émis en surface doivent être connues par le CTM. C'est pourquoi les inventaires d'émissions sont en général accompagnés d'informations sur la géométrie des particules atmosphériques. Des émissions d'aérosols estimées selon des modes log-normaux doivent être réparties dans des classes de tailles différentes pour un modèle qui représente la distribution géométrique des aérosols selon une approche sectionnelle. La méthode qui est appliquée en entrée du modèle MOCAGE pour passer d'une approche log-normale à une approche sectionnelle est détaillée dans la suite de ce chapitre.

2.4.2.2 Discrétisation de la distribution d'aérosols

- *Définition de la distribution cumulative normalisée*

La première étape de la représentation granulométrique des particules est de diviser la plage de variation de la taille des particules en plusieurs intervalles discrets et de calculer le nombre de particules dans chaque classe. On normalise la distribution en divisant la concentration par la dimension de l'intervalle correspondant. Ainsi, si la i ème classe a un nombre N_i de particules, la concentration normalisée n_i de cette classe est :

$$n_i = \frac{N_i}{D_i} \quad (2.6)$$

où D_i est la dimension de l'intervalle de la i ème classe. En considérant un intervalle $[D ; D+dD]$ contenant dN particules, on définit la fonction de la distribution de la taille des particules en nombre $n(D)$ par :

$$n(D) = \frac{dN}{dD} \quad (2.7)$$

où $n(D)dD$ est le nombre de particules par unité de volume d'air. Dans ces conditions, le nombre total des particules par unité de volume N est :

$$N = \int_0^{+\infty} n(D)dD \quad (2.8)$$

et nous pouvons maintenant définir une fonction de la distribution normalisée :

$$\bar{n}(D) = \frac{n(D)}{N} \quad (2.9)$$

Pour une distribution basée non plus sur D , mais sur $\ln(D)$, la fonction de la distribution en nombre $n(\ln(D))$ (nombre de particules par unité du volume d'air ayant un diamètre entre $\ln D$ et $\ln D + d\ln D$) peut-être définie de façon analogue :

$$n(\ln D) = \frac{dN}{d \ln D} \quad (2.10)$$

La distribution normale pour une quantité quelconque u est donnée par :

$$n(u) = \frac{N}{\sqrt{2\pi}\sigma_u} \times \exp\left(-\frac{(u - \bar{u})^2}{2 \times \sigma_u^2}\right) \quad (2.11)$$

où N est le nombre total des particules, \bar{u} la moyenne de la distribution, et σ_u son écart-type. La distribution log-normale d'une population d'aérosols peut ainsi s'écrire :

$$n(\ln D) = \frac{N}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_g} \times \exp\left(-\frac{(\ln D - \ln \bar{D}_g)^2}{2 \times \ln^2 \sigma_g}\right) \quad (2.12)$$

avec deux nouveaux paramètres \bar{D}_g et σ_g qui seront définis plus tard.

La distribution cumulative de la concentration des particules de diamètres plus petits ou égaux à D^* est alors définie par :

$$F(D^*) = \int_0^{D^*} n(D)dD \quad (2.13)$$

De ce fait, pour une distribution log-normale, cette équation devient :

$$F(D^*) = \frac{N}{\sqrt{\pi}} \times \int_{-\infty}^{\frac{(\ln D^* - \ln \bar{D}_g)}{\sqrt{2} \ln \sigma_g}} e^{-\eta^2} d\eta \quad (2.14) \quad \text{avec} \quad \eta = \frac{(\ln D^* - \ln \bar{D}_g)}{\sqrt{2} \ln \sigma_g}$$

Soit $\text{erf}(z)$ la fonction d'erreur :

$$\text{erf}(z) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \times \int_0^z e^{-\eta^2} d\eta \quad (2.15)$$

On a notamment $\text{erf}(0) = 0$ et $\text{erf}(\infty) = 1$;

On obtient alors :

$$F(D) = N \left[\frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left(\frac{\ln(D/\overline{D}_g)}{\sqrt{2} \ln \sigma_g} \right) \right] \quad (2.16)$$

Sous cette forme, il y a une interprétation physique à \overline{D}_g et σ_g . Comme $\operatorname{erf}(0) = 0$,

$$F(\overline{D}_g) = \frac{N}{2} \quad (2.17)$$

\overline{D}_g est donc le diamètre médian, pour lequel la moitié des particules ont un diamètre inférieur à \overline{D}_g et l'autre moitié un diamètre supérieur à \overline{D}_g .

Pour l'interprétation de σ_g , examinons le diamètre D_σ , qui correspond à $\sigma_g = D_\sigma / \overline{D}_g$:

$$F(D_\sigma) = \frac{N}{2} \times \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{1}{\sqrt{2}} \right) \right) = 0.841N \quad (2.18)$$

σ_g est donc interprété comme un écart-type géométrique. En définissant la distribution cumulative normalisée par $\overline{F}(D) = F(D)/N$, on obtient finalement l'équation :

$$\overline{F}(D) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \operatorname{erf} \left(\frac{\ln D - \ln \overline{D}_g}{\sqrt{2} \ln \sigma_g} \right) \quad (2.19)$$

- **Application à une distribution log-normale**

Les émissions fournies dans les cadastres sont la plupart du temps des masses émises accompagnées d'une distribution initiale. Par exemple une courbe log-normale avec un ou plusieurs modes, le diamètre médian et l'écart type sont alors fournis. On utilise la distribution cumulative normalisée pour répartir les quantités d'aérosols dans les différentes classes.

Considérons une population d'aérosols dont la distribution initiale est une distribution mono-mode log-normale et dont le nombre total de particules est N . Le diamètre médian est \overline{D}_g , et l'écart type géométrique est σ_g . La figure 2.6 représente cette courbe ainsi qu'une classe de taille. La surface de la partie colorée, S_i (appelons cette partie de la distribution ci-après « classe-i ») représente la fraction des particules en nombre ayant des diamètres entre $D_{i,l}$ et $D_{i,u}$. Elle peut être calculée par :

$$S_i = \overline{F}(D_{i,u}) - \overline{F}(D_{i,l}) = \frac{1}{2} [\operatorname{erf}(D_{i,u}) - \operatorname{erf}(D_{i,l})] \quad (2.20)$$

où $N \cdot S_i$ est le nombre des particules ayant des diamètres entre $D_{i,l}$ et $D_{i,u}$. On postule que le diamètre moyen D_i de cette classe-i est égal à la moyenne géométrique des deux bornes. Si on suppose en outre que les particules sont sphériques et ont une masse volumique ρ , on peut calculer la masse m_i de cette classe :

$$m_i = N \times S_i \times \frac{\pi}{6} D_i^3 \times \rho \quad (2.21)$$

La masse totale des particules de la distribution, M , est donc :

$$M = N \times \sum_1^n \frac{1}{6} \pi D_i^3 \rho S_i \quad (2.22)$$

où n est le nombre de classes de la discrétisation de la distribution.

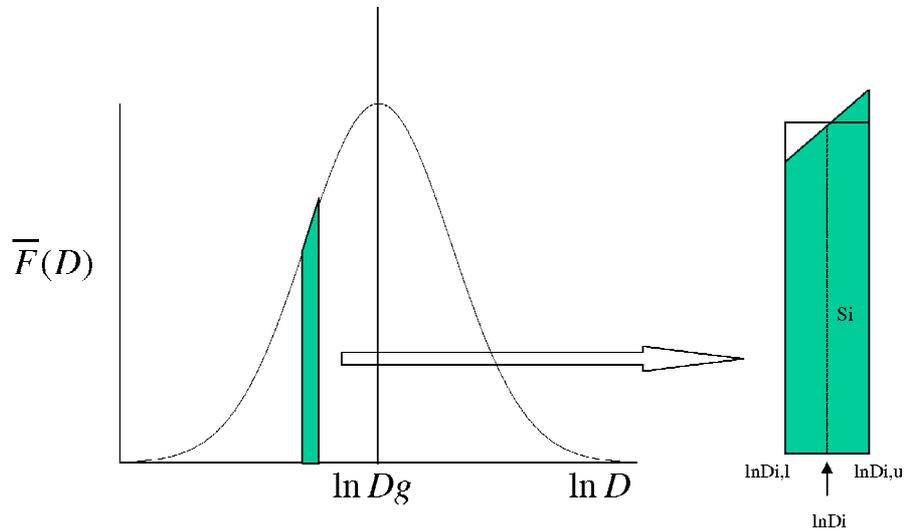


Figure 2.3 – Distribution initiale de la quantité d'aérosols et discrétisation de la classe- i .

Dans un cas général, on peut décrire une population d'aérosols à l'aide de plusieurs modes de distribution log-normale superposés. Dans notre modèle, ce cas peut être traité si l'on connaît la répartition modale en masse (ou en nombre) des émissions d'aérosols, comme suit :

$$M = \sum_{i=1}^n M_i \quad (2.23)$$

où M est la masse totale d'émission, et M_i sont les masses des n modes. Avec cette répartition, on peut reconstituer la distribution de chaque mode et intégrer la distribution comme dans le cas mono-mode. La représentation granulométrique des aérosols en une distribution log-normale mono-mode ou composée de plusieurs modes est caractérisée par : le diamètre médian et l'écart type géométrique pour chaque mode, la masse volumique du composé solide concerné, la masse totale (ou alternativement le nombre total) des aérosols, et enfin la fraction en masse de chaque mode.

Cette discrétisation est souple et permet de définir la répartition des classes d'aérosols de manière plus ou moins précise. Il faut alors trouver un compromis entre nombre de classes et coût de calcul.

2.4.2.3 Critères à respecter dans le choix de la représentation de la distribution des aérosols

La charge atmosphérique globale en aérosols est un équilibre entre les sources d'aérosols - c'est à dire les émissions en surface ou la production chimique - et les puits – c'est à dire l'ensemble des processus qui éliminent les aérosols de l'atmosphère. Les trois puits pour les aérosols - la sédimentation, le dépôt sec et le lessivage par les nuages - sont plus ou moins efficaces selon la densité et la taille des particules. Trois types d'aérosols ont été étudiés ici : le sulfate, le carbone-suie et les poussières désertiques. Dans MOCAGE, les densité du sulfate et du carbone-suie sont supposées égales à 1000 kg.m^{-3} et celle des poussières désertiques à 2650 kg.m^{-3} .

Le découpage en classes de la distribution de chaque aérosol doit être optimisé pour représenter au mieux les gammes de taille d'aérosols pour lesquelles les concentrations atmosphériques sont importantes. De plus, ce découpage doit être précis dans les gammes de taille où les différents puits sont les plus efficaces. Une étude détaillée de l'efficacité des puits en fonction de la taille des aérosols a été menée par Martet (2008). Dans le cadre des simulations qui ont été réalisées dans cette étude, des schémas d'aérosols simples ont été utilisés, dans le but de minimiser le coût de calcul, et de permettre la réalisation de simulations globales pluriannuelles.

2.4.2.4 Définition du schéma d'aérosols utilisé pour des simulations longues

Le projet AEROCOM propose des diamètres de particules liés à chaque source d'émissions. Ainsi, le sulfate et le carbone-suie sont contenus dans des particules de diamètres différents selon qu'ils proviennent de la combustion de biomasse ou d'hydrocarbures. De même, les particules atmosphériques issues d'activités industrielles, de centrales de fabrication d'électricité, de transport par bateau ou de transport routier n'ont pas les mêmes diamètres (Dentener et al., 2006). Il en est de même pour les poussières désertiques qui ont des diamètres différents en fonction du moment et du lieu où elles sont émises (Dentener et al., 2006). Prendre en compte l'ensemble de ces caractéristiques géométriques des aérosols nécessite de considérer un grand nombre de traceurs dans les simulations, ce qui alourdit considérablement les simulations, tant au niveau du stockage des fichiers de sortie qu'au niveau du temps de calcul. Dans le cadre de cette thèse, les diamètres utilisés pour chaque type d'aérosol ne sont pas fonction des sources. Ce sont des diamètres standards préconisés dans le cadre du projet AEROCOM. Des analyses plus poussées avec des découpage plus précis de la distribution d'aérosols sont présentés dans la thèse de M. Martet (2008). En ce qui concerne le sulfate produit chimiquement, il est distribué dans les classes d'aérosols, en suivant la distribution standard préconisée dans le cadre du projet AEROCOM. Les caractéristiques des modes log-normaux (le diamètre, l'écart-type, et la fraction du nombre de particule appartenant à ce mode) prescrits dans le cadre du projet AEROCOM sont décrits dans la première colonne du tableau 2.2. Le découpage en classe associé à chaque aérosol dans MOCAGE constitue la deuxième colonne du tableau 2.2.

Aérosol	Caractéristiques de la distribution (diamètre(μm) – écart-type – fraction en nombre)	Découpage en classes (m)
Poussières minérales	0.22 - 1.59 - 0.38 0.63 - 2.0 - 0.62	5 classes (1.00E-8 à 6.31E-8 / 6.31E-8 à 3.98E-7 / 3.98E-7 à 2.51E-6 / 2.51E-6 à 1.58E-5 / 1.58E-5 à 1.00E-4)
Carbone-suies	0.015 - 1.8 - 0.92 0.040 - 1.8 - 0.08	4 classes (1E-9 à 1E-8 / 1E-8 à 1E-7 / 1E-7 à 1E-6 / 1E-6 à 1E-5)
Sulfates	0.015 - 1.8 - 0.98331 0.04 - 1.8 - 0.01650 0.5 2 0.00019	4 classes (1E-9 à 1E-8 / 1E-8 à 1E-7 / 1E-7 à 1E-6 / 1E-6 à 1E-5)

Table 2.2 : Préconisation AEROCOM pour les diamètres, écart-types et fraction en masse des émissions de poussières minérales, carbone-suies et sulfates (première colonne); Découpage en classe utilisé dans les simulation MOCAGE (deuxième colonne).

2.4.3 Représentation des puits d'aérosols dans MOCAGE

La section 2.2.4 aborde la manière dont sont représentés les processus de dépôt pour les espèces gazeuses dans MOCAGE. Ces processus ne peuvent physiquement pas être décrits de la même manière pour les particules solides. Ils sont représentés dans MOCAGE par des paramétrisations spécifiques aux aérosols. Trois puits principaux éliminent les aérosols de l'atmosphère : la sédimentation, le dépôt sec et le dépôt humide. La manière dont ils sont représentés dans le modèle est exposé dans la suite de ce chapitre.

2.4.3.1 Sédimentation des aérosols

Les aérosols sont entraînés vers le sol sous l'effet de la gravité. La paramétrisation utilisée dans MOCAGE pour représenter la sédimentation a été définie selon la loi de Stokes :

$$v_s = \frac{\rho_p D_p^2 g}{18\mu_{air}} \quad (2.24)$$

où

- ρ_p est la masse volumique de la particule
- D_p son diamètre
- μ_{air} la viscosité de l'air
- g est l'accélération de la pesanteur

Cependant, la loi de Stokes qui est basée sur les équations de la mécanique du fluide continu n'est pas applicable quand le diamètre de la particule est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen dans ce fluide. Cela devient la cas quand la densité de l'air s'appauvrit en altitude ou quand le diamètre des particules est trop grand. Un facteur de correction C_c est donc introduit (Seinfeld et Pandis, 2006). Il est fonction du diamètre de la particule et du libre parcours moyen λ du milieu :

$$C_c = 1 + \frac{2\lambda}{D_p} \left[1.257 + 0.4e^{(-0.55D_p/\lambda)} \right] \quad (2.25)$$

avec $\lambda = \frac{2\mu_{air}}{p \times \sqrt{8M_{air}/(\pi RT)}}$

où

- p est la pression
- M_{air} est la masse moléculaire de l'air,
- R est la constante des gaz parfaits,
- T est la température

La vitesse de sédimentation prenant en compte la raréfaction de l'air a donc pour expression :

$$v_s = \frac{\rho_p D_p^2 g C_c}{18\mu_{air}} \quad (2.26)$$

Cette sédimentation peut être considérée comme un phénomène uni-dimensionnel le long de l'axe vertical. Dans MOCAGE, on traite donc cette question colonne par colonne : une partie des particules contenues dans une maille est transférée à la maille située au-dessous, fonction de la vitesse de sédimentation (la paramétrisation limite la sédimentation à un flux d'une maille à sa voisine du dessous, empêchant le saut de plusieurs maille à la fois).

2.4.3.2 Le dépôt sec

La paramétrisation de Nho-Kim et al., (2004) a été utilisée pour calculer la vitesse de dépôt sec des particules à la surface. Cette vitesse dépend à la fois des caractéristiques de la particule (taille et densité), de la nature du sol et des conditions météorologiques près de la surface. La vitesse de dépôt sec peut être décomposée en deux processus :

- la turbulence atmosphérique, représentée par la résistance aérodynamique r_a ,
- la diffusion brownienne et l'impaction inertielle liées à la résistance quasi-laminaire r_b

La vitesse de dépôt s'écrit alors : $v_d = \frac{1}{r_a + r_b}$ (2.27)

La résistance aérodynamique est représentée par : $r_a = \frac{1}{C_D \times u}$ avec :

- u la vitesse du vent à la hauteur de référence
- C_D le coefficient d'échange de quantité de mouvement.

Ce coefficient d'échange est fonction de la stabilité atmosphérique et de la rugosité de surface (Louis, 1979). La longueur de rugosité est calculée de la même manière que dans le MCG ARPEGE. Chaque maille est décomposée en plusieurs classes prédéfinies (16 classes dont 13 pour la végétation, une pour l'océan, une pour la mer couverte de glace et une pour le désert) comme décrit dans (Mahfouf et al., 1995) et (Giard et Bazile, 2000). La longueur de rugosité varie mensuellement, en fonction de la phase de végétation.

En ce qui concerne la résistance quasi-laminaire, elle est définie par : $r_b = \frac{1}{u^* (E_{br} + E_{im} + E_{in})}$

avec :

- u^* la vitesse de frottement
- E_{br} l'efficacité de la diffusion brownienne,
- E_{im} l'efficacité de l'impaction inertielle,
- E_{in} l'efficacité de l'interception

Le coefficient E_{br} est défini par : $E_{br} = Sc^{-\gamma}$

γ dépend de la nature de la surface : $\gamma = \frac{1}{2}$ pour la mer et la glace, $\gamma = \frac{1}{3}$ pour la végétation. Sc représente le nombre de Schmidt, c'est à dire le rapport entre la viscosité cinématique de l'air et le coefficient de diffusion : $Sc = \frac{\nu}{D}$ avec $D = \frac{kTC_c}{3\pi\mu D_p}$

On rappelle que :

- k est la constante de Boltzmann,
- T est la température,
- C_c est le coefficient de correction pour les effets non-continus,
- μ est la viscosité de l'air,
- D_p le diamètre de la particule.

L'impaction inertielle dépend du type de surface, une différence est faite entre l'océan et les zones enneigées d'une part :

$$E_{im} = 10^{\frac{-3}{St}}$$

la végétation d'autre part :

$$E_{im} = \left(\frac{St}{St + \alpha} \right)^\beta \text{ où le nombre de Stokes } St \text{ est donné par : } St = \frac{v_d \times u^{*2}}{g\nu}$$

où ν est la viscosité cinématique de l'air. D'après Seinfeld et Pandis (1998), les valeurs des constantes sont : $\alpha=0.8$ et $\beta=2$.

L'efficacité de l'interception est calculée à partir de l'approximation proposée par Slinn, (1982) :

$$E_{in} = \frac{C_v}{C_D} \left[F \left\{ \frac{a}{a + \bar{a}} \right\} + (1 - F) \left\{ \frac{a}{a + \bar{A}} \right\} \right] \text{ où :}$$

- $C_v/C_D=0.3$,
- a est le rayon de la particule,
- \bar{a} est un paramètre caractéristique de la taille de la végétation (10 μm dans nos simulations)
- F est la fraction d'interception par les collecteurs (1%),
- \bar{A} le rayon caractéristique des grands collecteurs (1 mm pour les forêts et 0.5 mm pour les autres types de végétation).

La vitesse de dépôt sec dépend fortement de la taille des particules et de la nature du sol. La figure 2.4 représente la variation de la vitesse de dépôt sec en fonction de la taille des particules de manière globale ainsi que la distinction entre terre et océan (Nho-Kim et al, 2004). On remarque que cette vitesse est plus importante sur terre que sur mer et qu'elle est minimale pour les particules de l'ordre du micromètre. Elle varie entre 0.01 cm.s^{-1} et quelques dizaines de cm.s^{-1} .

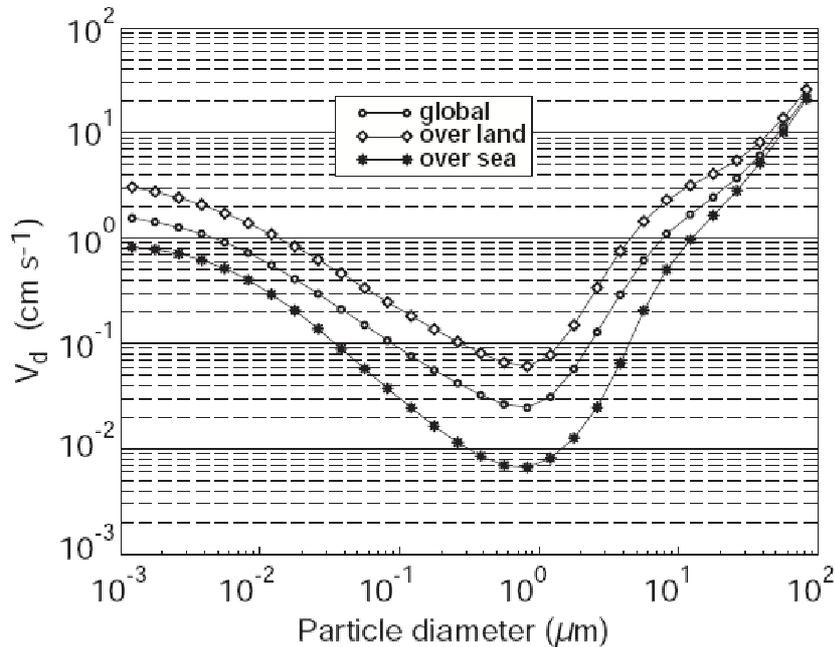


Figure 2.4 : Moyenne annuelle des vitesses de dépôt sec en fonction de la taille des particules ainsi que de la nature du sol pour une particule de densité égale à 1000 kg.m^{-3} . D'après Nho-Kim et al (2004).

2.4.3.3 Le dépôt humide ou « lessivage »

Le processus de réévaporation des gouttes de pluie libérant un composé chimique sous les nuages n'étant pas pris en compte dans MOCAGE pour les aérosols, les termes de « lessivage » et de « dépôt humide » définis dans la partie 2.2.4 définissent le même processus dans les simulations MOCAGE. En ce qui concerne les aérosols, ces deux termes sont utilisés dans la suite de cette thèse pour désigner le même processus.

Le mécanisme de dépôt des particules par les précipitations est lié d'une part à leur capacité à servir de noyau de condensation. Une partie des aérosols peut être d'autre part incorporée dans la phase liquide par impaction sur les gouttelettes. Ces deux phénomènes se déroulent dans le nuage. Sous le nuage, la pluie induit un lessivage lors de sa chute entre le nuage et le sol. La paramétrisation utilisée dans MOCAGE traite ces différents types de lessivage pour les précipitations stratiformes et convectives. Dans la version actuelle, seule la phase liquide des précipitations est considérée, l'effet de la phase solide étant négligé.

Les quantités d'aérosols lessivées sont calculées en fonction d'un taux de lessivage λ et du rapport de mélange de l'espèce concernée Q . Ainsi, l'évolution du rapport de mélange entre les instants t et $t+\delta t$ est définie par :

$$Q(t + \delta t) = Q(t) \times \exp(-\lambda \delta t) \quad (2.28)$$

Différentes paramétrisations permettent de calculer le taux de lessivage λ en fonction du processus entrant en jeu, il est différent si on se trouve dans le nuage ou sous le nuage.

- *Le lessivage sous les nuages*

Le taux de lessivage sous les nuages est calculé en fonction de l'efficacité de collision entre les gouttes et les particules. Lors de sa chute, une goutte de pluie heurte les aérosols et les collecte. Le volume de collision est défini par :

$$V_{col} = \frac{\pi(D_g + D_p)^2}{4} \times [U_t(D_g) - u_t(D_p)] \quad (2.29)$$

- D_g est le diamètre de la goutte,
- D_p est le diamètre de la particule,
- $U_t(D_g)$ la vitesse de chute de la goutte,
- $u_t(D_p)$ la vitesse de chute de la particule.

Or, on peut considérer que le rayon des gouttes est très grand par rapport à celui des particules et que la vitesse de chute d'une goutte est supérieure à celle des aérosols. L'expression du volume de collision devient alors :

$$V_{col} = \frac{\pi D_g^2 U_t(D_g)}{4} \quad (2.30)$$

Le taux de lessivage est lié à ce volume de collision et aussi à l'efficacité de collision entre gouttes et aérosols, définie comme la fraction des particules effectivement recueillies parmi celles présentes dans le volume de collision. D'après Chaumerliac (1984) et Seinfeld et Pandis (1998), cette efficacité de collision dépend de plusieurs paramètres :

$$E = E(\text{Re}, \text{Sc}, \phi, St) \quad (2.31)$$

Le nombre de Schmidt (Sc) et le nombre de Stokes (St) ont été défini précédemment dans la description de la paramétrisation du dépôt sec. ϕ est le paramètre d'impaction, c'est à dire le rapport entre le diamètre de la particule et celui de la goutte de pluie :

$$\phi = D_p / D_g \quad (2.32)$$

Le nombre de Reynolds (Re) est le rapport des forces inertielles et des forces de viscosité, il a pour expression :

$$Re = \frac{D_g}{2\nu} \quad (2.33)$$

D'après des résultats expérimentaux, l'efficacité de collision E est donnée par :

$$E = \frac{4}{Re \times Sc} \left[1 + 0.4 Re^{1/2} Sc^{1/3} \right] + 3\phi + \left(\frac{St - S^*}{St - S^* + 2/3} \right)^{3/2} \quad (2.34)$$

Où S^* est le nombre de Stokes critique défini par :

$$S^* = \frac{1.2 + \frac{1}{12} \ln(1 + Re)}{1 + \ln(1 + Re)} \quad (2.35)$$

Le taux de lessivage sous le nuage est donc caractérisé par la relation :

$$\lambda_{be} = V_{col} \times E \quad (2.36)$$

Cette paramétrisation est valable sous le nuage, c'est à dire si le flux de précipitations est non nul dans la maille du modèle considérée et qu'il n'y a pas de formation de précipitations dans cette même maille.

- ***Le lessivage dans les nuages***

Le schéma de Langner et Rodhe (1991) a été utilisé pour calculer le taux de lessivage dans le nuage. Il est fonction du taux de formation des précipitations dans la maille du modèle considéré (noté R en $\text{kg/m}^3/\text{s}$), de la teneur en eau liquide du nuage précipitant (noté L en kg/m^3) et de l'efficacité du transfert des aérosols dans le milieu précipitant (noté ε , paramètre sans dimension) :

$$\lambda_{in} = \frac{\varepsilon \times R}{L} \quad (2.37)$$

Le calcul de ε se fait selon Kasper-Giebl et al. (2000). Ces auteurs ont mesuré ε en fonction de L et montrent une forte dépendance entre ces deux paramètres. La valeur de ε augmente avec L jusqu'à atteindre une valeur seuil lorsque le contenu en eau liquide L est supérieur à 0.55 g/m^3 . Or le contenu en eau liquide est généralement inférieur à cette valeur. Une interpolation linéaire des résultats empiriques a donc été choisie :

$$\varepsilon = 1.2 \times L \quad (2.38)$$

Où L est exprimé en g.m^3 .

Cette paramétrisation est utilisée dans le nuage, c'est à dire dans les mailles du modèle où il y a formation de précipitations.

2.5 Description de la configuration de MOCAGE utilisée dans nos simulations

Les algorithmes du modèle MOCAGE représentant des processus physico-chimiques dans l'atmosphère ont été décrits dans les premières sections de ce chapitre. Comme nous avons pu le voir, le modèle MOCAGE évolue au cours du temps, en fonction des objectifs de ses utilisateurs. Cette section 2.5 décrit en particulier la résolution que nous avons choisie pour nos simulations. Elle présente ensuite les forçages météorologiques et les inventaires d'émissions que nous avons utilisés au cours de ces travaux de thèse. Une description de l'efficacité des différents puits et sources d'aérosols dans la configuration que nous avons utilisée est exposée à la fin de ce deuxième chapitre.

2.5.1 Résolution horizontale

La résolution horizontale est différente selon les versions du modèle et selon le domaine considéré. Dans les cas de simulations globales pour les aérosols, une résolution de $2^\circ \times 2^\circ$ a été utilisée dans un premier temps. Cette grille est appelée « GLOB22 ». A noter que ses longitudes varient de -180° à $+180^\circ$ et ses latitudes de -90° à $+90^\circ$.

Dans un deuxième temps, et en vue d'un couplage du modèle MOCAGE avec le modèle ARPEGE-Climat, la résolution de MOCAGE a été modifiée. La résolution horizontale d'ARPEGE-Climat est une grille spectrale de troncature T63. Elle correspond à une grille gaussienne de 128 longitudes et 64 latitudes, soit environ 2.8° de résolution, couramment dénommée grille « T42 ». MOCAGE a donc été porté sur cette grille « T42 » en vue de son couplage avec ARPEGE-Climat. A noter que les latitudes de cette grille sont rangées de $+90^\circ$ à -90° et les longitudes de 0 à 360° .

MOCAGE permet aussi de disposer de domaines imbriqués à plus haute résolution, centrés sur l'Europe (résolution de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$) et la France (résolution de $0.1^\circ \times 0.1^\circ$). Ces domaines n'ont pas été utilisés au cours de ce travail de thèse.

2.5.2 Résolution verticale

Deux résolutions verticales sont disponibles dans le modèle MOCAGE : la première comporte 47 niveaux, répartis entre la surface et 35 km (i.e. 5hPa environ), et la deuxième 60 niveaux, répartis entre la surface et 70 km (i.e. 0.07 hPa environ). Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons utilisé la résolution comportant 47 niveaux. La coordonnée verticale utilise le système de coordonnées hybrides σ -p qui épouse la topographie près de la surface et correspond à des niveaux de pression constante dans la haute atmosphère (Simmons et Burridge, 1980). A chacun des 48 interniveaux L, la pression $P(L)$ s'écrit :

$$P(L) = A(L) + B(L) \times P_s \quad (2.39)$$

Où P_s est la pression de surface. Les coefficients A et B, illustrés dans la figure 2.5, sont constants dans l'espace et le temps. Les 47 niveaux du modèle sont par définition au centre de masse de ces niveaux. Notons que les niveaux verticaux sont numérotés de 1 à 47, le niveau 47 se trouvant à la surface dans MOCAGE.

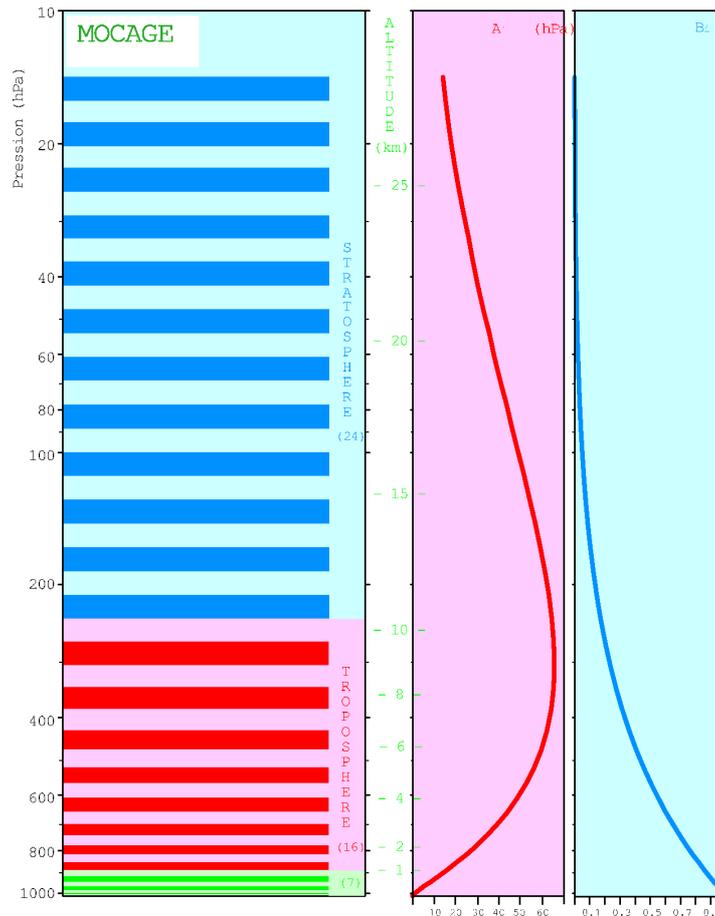


Figure 2.5 Les niveaux verticaux de MOCAGE : à gauche le découpage de l'atmosphère en 47 couches, à droite les coefficients A_L et B_L permettant de calculer la pression aux interniveaux L en fonction de la pression de surface. La dernière couche n'est pas entièrement représentée.

2.5.3 Les forçages météorologiques

MOCAGE est un CTM qui est piloté en entrée par cinq variables dynamiques et thermodynamiques : les vitesses de vent horizontales (le vent zonal et le vent méridien), la température, l'humidité spécifique, et la pressions de surface. Ces variables peuvent être fournies par un MCG. Selon la résolution spatiale et temporelle du modèle, les champs des différentes variables doivent être interpolés.

Dans le cadre de ce travail de thèse, toutes les simulations ont été réalisées en mode forcé. Les simulations de l'aérosol avec MOCAGE sont, pour des raisons historiques, réalisées avec les champs météorologiques provenant des analyses opérationnelles du modèle de prévision ARPEGE (Météo-France). Cependant, dans le cadre de cette thèse, d'autres champs météorologiques ont aussi été utilisés. Une partie des simulations a été réalisée à partir des analyses opérationnelles du modèle IFS du Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme (CEPMMT, ou ECMWF en anglais). D'autres simulations ont été forcées avec les champs météorologiques simulés par le MCG ARPEGE-Climat. Notons que dans ce cadre, une configuration de couplage entre le MOCAGE et ARPEGE-Climat a été mise en place. Cependant, des adaptations sont encore nécessaires pour que cette configuration soit utilisable. Cet aspect est décrit dans la conclusion de cette thèse.

Que ce soit en mode forcé ou couplé, les champs météorologiques fournis par le MCG doivent avoir la même résolution horizontale que la configuration de MOCAGE (GLOB22 ou T42). Les analyses du CEPMMT ainsi que les champs simulés par ARPEGE-Climat sont décrits sur une grille T42. MOCAGE a été adapté pour réaliser des simulations avec une grille T42, ce qui nous a évité d'avoir eu à effectuer des interpolations horizontales des champs météorologiques.

Verticalement, le modèle MOCAGE interpole sur ses 47 niveaux les champs météorologiques, qui sont définis sur différentes résolutions verticales selon les modèles : le modèle de prévision ARPEGE ainsi que le MCG ARPEGE-CLIMAT ont 31 niveaux (dans les configurations telles que nous les avons utilisés), alors que les forçages du modèle IFS du CEPMMT sont définis sur 60 niveaux.

Quel que soit les forçages météorologiques utilisés, le champ dynamique pris en compte par MOCAGE doit être conservatif, pour qu'il n'y ait pas de pertes de matière dans la simulation du transport des différents composés atmosphériques. En appliquant l'équation de continuité dans MOCAGE, on déduit la vitesse verticale à partir des vitesses horizontales fournies par le MCG ; la vorticité potentielle est calculée grâce à l'application des équations de Navier-Stokes en utilisant les cinq variables thermodynamiques fournies par le MCG.

2.5.4 Temps de calcul des simulations réalisées avec MOCAGE

Une simulation de l'aérosol de un mois - réalisée avec la configuration de MOCAGE décrite dans ce chapitre - consomme un temps de calcul égal à environ 16500 secondes de temps CPU en moyenne (i.e. 4h30), sur un processeur sx8 de la marque NEC. Ce temps concerne une simulation du carbone-suie, du sulfate et des poussières désertiques réalisée avec une grille T42.

Comme cela a été énoncé dans la section précédente, une première configuration de couplage a été mise en place entre le CTM MOCAGE et le MGC ARPEGE-Climat. Sa mise au point n'est pas entièrement terminée : Actuellement, elle permet de lancer MOCAGE et ARPEGE-Climat en même temps, les deux modèles réalisant 6 heures de simulation chacun leur tour. Ce type de couplage est couramment appelé « couplage par restart ». A l'heure actuelle, les données simulées par ARPEGE-Climat dans cette configuration sont fournies à MOCAGE. Par contre, les champs d'aérosols simulés par MOCAGE ne sont pas utilisés dans les simulations ARPEGE. Une part de travail informatique est encore nécessaire pour finaliser cette outil. Celui-ci a cependant été utilisé pour réaliser des simulations dans lesquelles MOCAGE est forcé par les champs météorologiques simulés par ARPEGE-Climat. Dans cette configuration, les 6 heures simulées par les deux modèles « coûtent » 30 secondes et 150 secondes pour ARPEGE-Climat et MOCAGE respectivement. Au total, 6 heures de temps CPU sont donc nécessaire pour réaliser une simulation de un mois avec l'ensemble de ce couplage.

2.5.5 Emissions des aérosols et des gaz

L'injection des composants émis en surface est répartie sur plusieurs niveaux. Cela permet de tenir compte du fait que les émissions, qui ont lieu en réalité de manière continue, ne sont prises en compte dans le modèle que toutes les 30 minutes. Cette émission est effectuée de telle sorte qu'au niveau L l'incrément de rapport de mélange $\delta Q(L)$ du constituant s'écrive en fonction de l'incrément au niveau inférieur L+1 :

$$\delta Q(L) = \beta \delta Q(L+1) \quad \text{avec } 0 < \beta < 1 \quad (2.40)$$

Il a été choisi de répartir les émissions sur les cinq couches inférieures du modèle. Cela est raisonnable physiquement puisque l'épaisseur moyenne des cinq premiers niveaux près de la surface est de 600 m, ce qui permet d'être la plupart du temps dans la couche mélangée. Cette hypothèse a été validée par Josse (2004). Le coefficient β est pris égal à 0.5.

2.5.5.1 Emissions des aérosols primaires

Les émissions de carbone-suie qui ont été utilisées dans cette étude proviennent de cadastres d'émissions. En premier lieu, deux jeux de données différents ont été utilisés : les cadastres d'émissions du projet « Global Emissions Inventory Activities » (GEIA), représentatifs de l'année 1985, et ceux du projet « Aerosol Comparisons between Observations and Models » (AEROCOM), représentatifs de l'année 2000. Dans le cadre de ce projet, un cadastre d'émissions représentatif de l'année 1750 a aussi été mis à disposition.

En ce qui concerne les poussières désertiques, une représentation de l'arrachement des particules au sol modélise les quantités de poussières émises dans les déserts d'Afrique, du Moyen-Orient et d'Asie centrale (Martet, 2008). Cette paramétrisation fait intervenir la rugosité des sols, leur humidité, ainsi que les conditions météorologiques. Le projet AEROCOM met aussi à disposition des cadastres d'émissions de poussières désertiques. Ces émissions ont une résolution journalière dans l'inventaire AEROCOM. Cependant, des moyennes mensuelles de ces émissions ont été utilisées dans les simulations réalisées avec MOCAGE, les variations journalières étant étroitement liées aux conditions météorologiques de l'année qui concerne la simulation.

Le tableau 2.3 présente les flux globaux d'émissions d'aérosols proposés par AEROCOM. Il décrit aussi les flux de composés soufrés gazeux que nous avons pris en compte dans nos simulations. 2.5% du SO_2 est directement émis sous forme de sulfate (recommandation AEROCOM). Watts (2000) recommande de prendre en compte une source additionnelle de H_2S égale à 4.26 % des émissions de SO_2 . Cependant, dans le cadre du projet AEROCOM, aucune source de H_2S n'est proposée. Afin de rester cohérent avec la quantité globale d'élément Soufre (S) émise dans l'atmosphère préconisée par AEROCOM, ce pourcentage a été retiré des émissions de SO_2 dans nos simulations. Compte-tenu du rapport des masses molaires du sulfate (SO_4^{2-}) et du soufre qui vaut 3, on rappelle que un kg de sulfate correspond à 0.333 kg d'élément soufre (S). Notons que la base de données AEROCOM contient aussi des cadastres d'émissions pour les aérosols carbonés organiques qui ne sont pas détaillés ici, car ces aérosols n'ont pas été pris en compte dans nos simulations. Les figures 2.6 et 2.7 décrivent les moyennes annuelles d'émission d'aérosol et des composés soufrés.

Espèces (aérosol ou gaz)	Poussières désertiques (Tg/an)	Carbone- suies (Tg/an)	Sulfates (Tg[S]/an)	SO2 (Tg[S]/an)	H2S (Tg[S]/an)	DMS (Tg[S]/an)
	1678	7.7	1.33	67	2.5	18.3

Table 2.3.a : Emissions globales d'aérosols et de gaz précurseurs d'aérosols utilisé dans les simulations MOCAGE (adapté de l'inventaire AEROCOM, représentatif de l'année 2000).

Nb : 1Tg[Sulfates] correspond à 0.333 Tg[S] de SO2 émis dans l'atmosphère et oxydé.

	Contributions	Totaux
Transport routiers	1.0	
Transports hors route	0.8	
Transport maritime	3.9	
Centrales de production d'énergie	24.2	
Usages domestiques (chauffage, incinération des déchets)	4.8	
Industrie	19.6	
Emissions anthropiques totales		54.3
Feux de biomasse (feu de forêts)		2.1
Volcans (Explosions volcaniques)	2.0	
Volcans (Emissions continues)	12.6	
Emissions volcaniques totales		14.6
Emissions totales de SO2		71.0

Table 2.3.b : Répartition des sources de SO2(Tg[S].an⁻¹) par secteur d'activité selon les recommandations AEROCOM.

Combustion de biomasse (bois, charbon de bois et déchets agricoles)	Combustibles fossiles (pétrole, charbon, gaz naturel, énergie, transports, chauffage, industrie)	Feux de biomasse (feu de forêts)	Emissions totales de Carbone-suies (BC)
1.6	3.0	3.1	7.7

Table 2.3.c : Répartition des sources de Carbone-suie (Tg.an⁻¹) par secteur d'activité selon les recommandations AEROCOM.

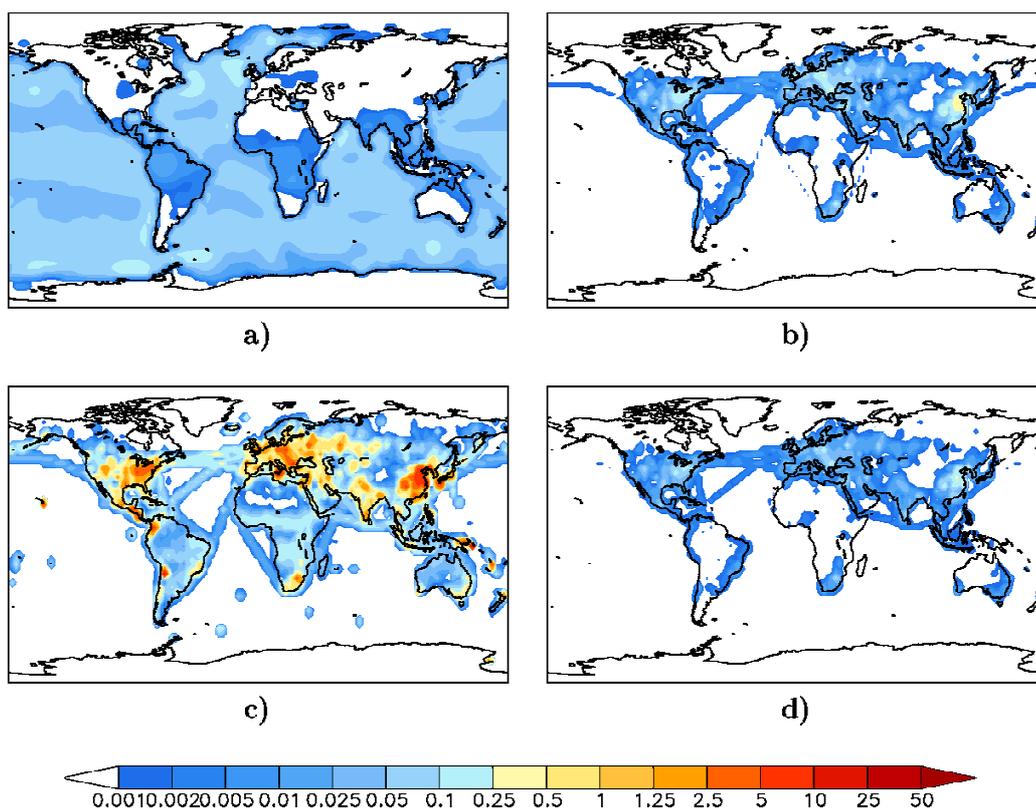


Figure 2.6 : Emissions de composés soufrés ($\text{g[S]}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$) selon l'inventaire AEROCOM, représentatif de l'année 2000. Emissions de DMS (a), de H₂S (b), de SO₂ (c) et de sulfate (d).

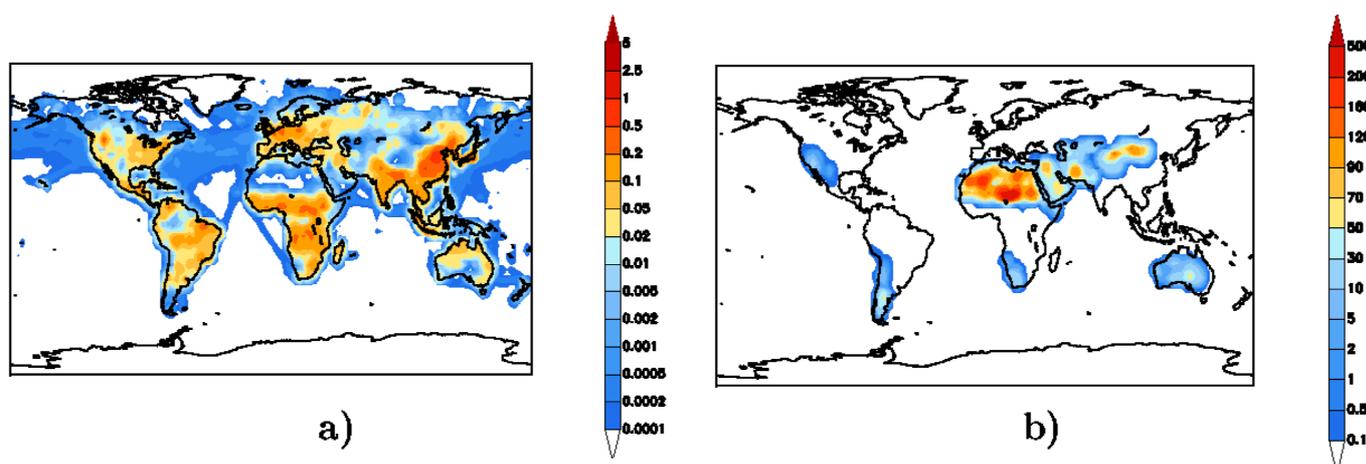


Figure 2.7 : Emissions de carbone-suie (a) et de poussières désertiques (b) représentatives de l'année 2000 selon l'inventaire AEROCOM (Flux en $\text{g}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$).

2.5.5.2 Emissions des gaz précurseurs d'aérosols

Les émissions des espèces gazeuses SO₂ et H₂S, essentiellement anthropiques, proviennent aussi des cadastres d'émissions des projets GEIA pour l'année 1985 et AEROCOM pour l'année 2000 (cf Fig. 2.6). Pour des simulations plus longues, de quelques dizaines d'années, il conviendrait d'utiliser des émissions variables au cours du temps.

Les émissions de DMS, essentiellement d'origine océanique, sont issues de l'inventaire de Kettle (Kettle et al., 1999), repris et complété dans le projet AEROCOM (<http://nansen.ipsl.jussieu.fr/AEROCOM/aerocomhome.html>). Elles ont été construites à partir de la paramétrisation des vitesses de transfert mer-air de Nightingale (2000) appliquée à des climatologies simulées à partir des observations de Kettle and Andreae (2000). Les émissions biogéniques continentales sont beaucoup plus faibles que les émissions océaniques. Elles sont basées sur Pham et al (1995). Seule la contribution au dessus des océans a été conservée dans les émissions AEROCOM. Les émissions de DMS sont journalières dans l'inventaire AEROCOM. Cependant, des moyennes mensuelles de ces émissions ont été utilisées dans les simulations réalisées avec MOCAGE, les variations journalières étant étroitement liées aux conditions météorologiques de l'année qui concerne la simulation.

2.5.5.3 Émissions virtuelles d'aérosols secondaires

La base de données AEROCOM contient des inventaires d'aérosols secondaires organiques. Ces émissions sont « virtuelles » puisque dans la réalité, ces aérosols sont issus de réactions chimiques et ne sont pas directement émis dans l'atmosphère en tant que particules solides. Il serait intéressant de réaliser ultérieurement des simulations de ces aérosols avec MOCAGE.

2.5.6 Efficacité des différents puits sur chaque type d'aérosol

Pour comprendre les principaux processus qui pilotent l'évolution des aérosols dans les simulations réalisées avec MOCAGE, une première simulation de 15 mois a été réalisée, à partir des émissions AEROCOM et des forçages météorologiques issus des analyses opérationnelles du modèle ARPEGE de Météo France. Cette simulation démarre en Octobre 1999 à partir de concentrations en aérosols nulles. Les trois premiers mois sont considérés comme étant une période de mise à l'équilibre. L'efficacité des puits en fonction de chaque aérosol – dépendante de la manière dont sont représentés les aérosols dans MOCAGE - est discutée dans les paragraphes suivants.

Une manière d'évaluer l'efficacité des différents flux éliminant les aérosols de l'atmosphère est d'évaluer son temps de résidence, défini comme suit :

$$\tau = \frac{M}{D + W + S} \quad (2.41)$$

Où M représente la masse totale d'aérosol, D la masse éliminée par dépôt sec, W la masse lessivée et S la masse sédimentée. Ce temps caractéristique doit être défini dans un état d'équilibre du modèle. Pour une même charge d'aérosol, plus le temps de résidence est court, plus les puits de cet aérosol sont efficaces.

2.5.6.1 Cas des poussières désertiques

La figure 2.8 met en évidence le flux d'émissions mensuelles que nous avons pris en compte dans nos simulations. La charge globale moyenne de poussières désertiques au cours de cette simulation est de 15.43 Tg. Pour cet aérosol, on simule un temps de résidence de 3.85 jours. Ce temps de résidence est déterminé par l'efficacité des puits de cet aérosol, dont l'évolution est décrite dans la figure 2.8. Les poussières désertiques sont des particules relativement denses, de taille importante par rapport aux autres types d'aérosols atmosphériques. Pour ces raisons, le dépôt sec est le puit majoritaire pour cette espèce, suivi par le lessivage, puis par la sédimentation. La somme du dépôt sec et de la sédimentation est deux fois plus élevée que le flux de dépôt humide, une caractéristique qui est aussi relevée dans les modèles ayant participé à l'exercice AEROCOM (Textor et al., 2007).

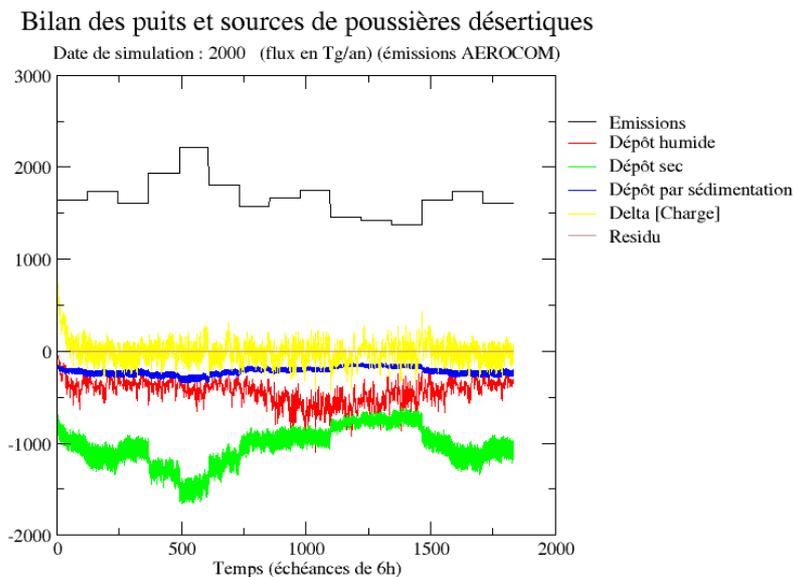


Figure 2.8 : Equilibre des puits et sources de poussières désertiques (Flux globaux en $Tg.an^{-1}$)

2.5.6.2 Cas du carbone-suie

La charge globale de carbone-suie relevée dans cette première simulation est égale à 0.228 Tg. Le temps de résidence de cet aérosol est plus grand que celui simulé pour les poussières désertiques, avec une valeur de 10.8 jours. Les processus de dépôt sont donc moins actifs pour le carbone-suie que pour les poussières désertiques. Le carbone-suie est éliminé à 70 % par le lessivage, et à 30 % par le dépôt sec dans les simulations réalisées avec MOCAGE. Dans les modèles AEROCOM, le dépôt humide est en moyenne 3 à 4 fois plus efficace que le dépôt sec. Cela est dû au fait que la plupart des modèles qui simulent les évolutions du carbone-suie le représente sous deux formes distinctes : une forme hydrophobe et une forme hydrophile, très facilement absorbée par les gouttelettes d'eau nuageuse. Dans MOCAGE, la forme hydrophile du carbone-suie n'est pas prise en compte, ce qui tend à sous-estimer fortement la quantité totale de carbone-suie lessivée. Par ailleurs, les aérosols de carbone-suie étant très petits, la sédimentation est négligeable devant les deux autres puits.

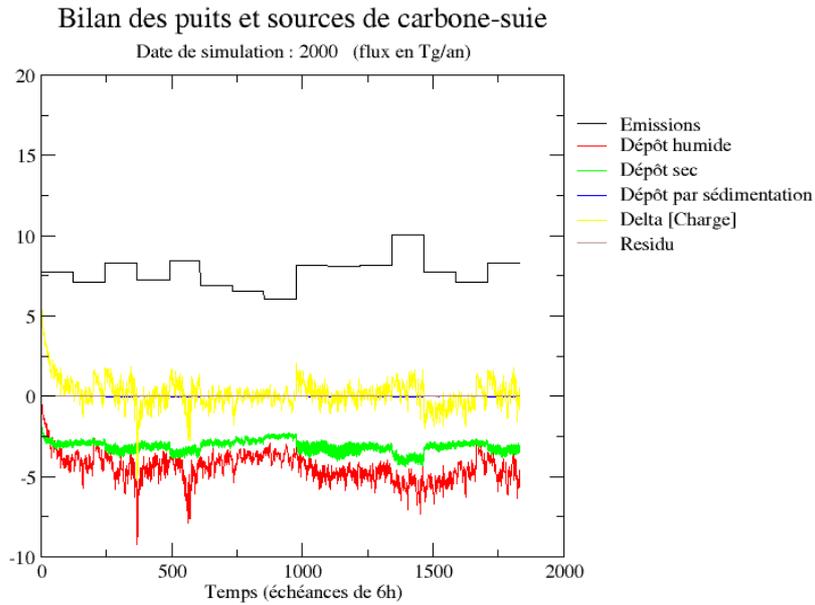


Figure 2.9 : Equilibre des puits et sources de carbone-suie (Flux globaux en $Tg.an^{-1}$)

2.5.6.3 Cas du sulfate

Les émissions directes de sulfate sont très faibles, alors que la principale source est la production par chimie aqueuse, suivie de la chimie gazeuse (cf. Fig. 2.10). La charge globale de sulfate simulée ici vaut 2.26 Tg[S], son temps de résidence est encore plus fort que celui du carbone-suie, avec une valeur de 16.9 jours. Les processus de dépôt sont donc moins efficaces dans cette simulation que pour le carbone-suie. Le temps de résidence du sulfate est de l'ordre de 4 à 5 jours (Seinfeld et Pandis, 2006), il semble donc surestimé dans notre simulation. Cet aspect est analysé dans les prochains chapitres. Le principal puit pour les sulfates est le dépôt humide. De même que dans la moyenne des modèles AEROCOM, il est 7 à 8 fois plus efficace que le dépôt sec. De plus, la sédimentation de ces particules très petites est négligeable.

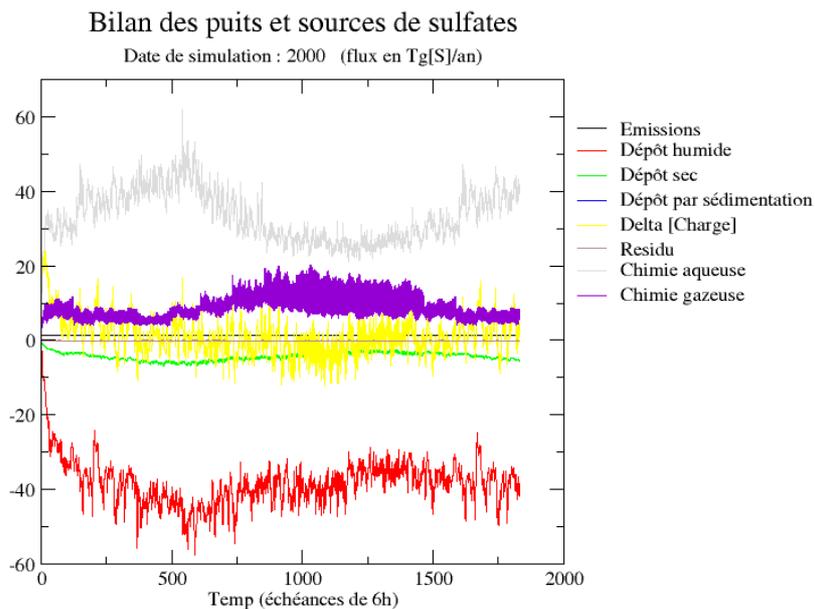


Figure 2.10 : Equilibre des puits et sources de sulfates (Flux globaux en $Tg.an^{-1}$)

2.5.6.4 Conclusion sur la modélisation des principaux puits des aérosols

L'évaluation des flux de dépôt dans les simulations réalisées à l'aide de MOCAGE permet de déterminer les paramètres-clés spécifiques aux aérosols dans la modélisation de ces différents puits. La taille des poussières désertiques doit être représentée précisément dans les modèles car elle a une forte influence sur l'efficacité de la sédimentation et du dépôt sec, les principaux puits de ces aérosols. Le découpage de la distribution des aérosols en classes de tailles différentes utilisé dans MOCAGE est particulièrement adapté à une représentation précise de ces processus. La taille des particules de carbone-suie est une variable moins cruciale dans la modélisation des aérosols de carbone-suie, dont le principal puits est le lessivage, piloté essentiellement par les propriétés de solubilité des aérosol. Cependant, elle devra tout de même être décrite suffisamment précisément pour une bonne estimation des flux de dépôt sec. En ce qui concerne le sulfate, la sédimentation est négligeable. De plus, le dépôt sec étant très faible devant le dépôt humide pour cet aérosol, c'est surtout la qualité de la paramétrisation du lessivage qui va conditionner une bonne représentation des puits de l'aérosol sulfaté dans un modèle. Boucher et al. (2002) estiment que 95 % du dépôt humide est réalisé par le lessivage dans les nuages, et seulement 5 % sous les nuages. Le lessivage sous les nuages dépend de la taille des particules, ce qui n'est pas le cas du lessivage dans les nuages, surtout fonction de la composition chimique des aérosols. Dans les modèles, une description précise de la distribution en taille des aérosols sulfatés est donc inutile, alors que la prise en compte de son caractère soluble dans la paramétrisation du lessivage est essentielle.

Les principaux puits et sources d'aérosols ont été mis en évidence à partir d'une première simulation. Le troisième chapitre se propose d'évaluer régionalement les distributions d'aérosols simulées par MOCAGE. Les concentrations atmosphériques en aérosol simulées en Europe, en Antarctique et en Arctique sont analysées tour à tour. Au delà de l'évaluation de la concentration en aérosols dans chacune de ces régions, ces études sont utilisées pour permettre d'affiner la représentation de l'aérosol dans le modèle MOCAGE.

Synthèse du chapitre 2

Ce deuxième chapitre présente le CTM MOCAGE, qui a été mis au point en 2000 pour simuler le comportement des composés atmosphériques gazeux. Pas à pas, la représentation des aérosols a été intégrée dans le modèle, avec les simulations du carbone-suie, des poussières minérales puis des sels marins. Au cours de ce travail de thèse, une attention particulière a été portée à la simulation du sulfate. Cette espèce atmosphérique présente sous forme aérosol est produite par des réactions chimiques dans l'atmosphère contrairement aux autres aérosols qui sont émis directement dans l'atmosphère et qui sont supposés inertes chimiquement. Un des objectifs de ce travail de thèse a consisté à mettre au point un outil simulant la concentration atmosphérique en aérosols à l'échelle globale. A partir de cet outil, on pourra évaluer la charge globale en carbone-suie, en sulfate et en poussières minérales. Il est envisagé par ailleurs d'utiliser cet outil pour prendre en compte l'évolution de la concentration de l'atmosphère en aérosols dans des simulations climatiques. Dans cette optique, une version robuste et « allégée » de MOCAGE a été mise en place. Elle est dotée d'un schéma chimique limité à la représentation du cycle du soufre, et décrit les distributions d'aérosols de la manière la plus simplifiée possible.

Les simulations réalisées avec cet outil sont évaluées d'abord régionalement dans le troisième chapitre, puis globalement dans le quatrième chapitre. L'ensemble de ces évaluations a permis, comme nous allons le voir dans la suite de ce manuscrit, d'optimiser le modèle que nous utilisons. En ce qui concerne les simulations climatiques, une ébauche d'un système couplée entre un CTM et un MCG a été mise en place. Cependant, si MOCAGE a été modifié pour fonctionner avec les champs météorologiques simulés par ARPEGE-Climat, un travail est encore nécessaire pour que ce MCG prenne en compte les champs d'aérosols simulés par MOCAGE. Cet aspect reste une perspective de ce travail de thèse.

Chapitre 3 : Modélisation et observation de l'aérosol atmosphérique dans différentes régions du globe

Une version de MOCAGE a été mise au point pour simuler la concentration atmosphérique en aérosol à l'échelle globale. Cette version optimisée a permis d'effectuer une expérience de modélisation globale de 6 ans, sur la période 2000-2005. Cette simulation a été réalisée sur une grille « T42 », avec les forçages météorologiques issus des analyses du modèle IFS du CEPMMT et l'inventaire d'émissions AEROCOM. Au cours de ce troisième chapitre, cette simulation est analysée en différentes régions du globe : une analyse du cycle du soufre est réalisée en Europe – région extrêmement touchée par la pollution – et en Antarctique – région où le sulfate est essentiellement issu de sources naturelles -. Dans une troisième étude, la concentration en aérosol est évaluée dans l'atmosphère Arctique, région peu anthropisée, mais largement touchée par la pollution atmosphérique. C'est principalement le sulfate atmosphérique qui est étudié dans ces trois études, Martet (2008) ayant déjà analysé des simulations du carbone-suie et des poussières désertiques. Les principaux processus qui pilotent la concentration atmosphérique en sulfate sont mis en évidence, et l'habilité du modèle à les simuler correctement est évaluée. La fin de ce chapitre est constitué par une discussion sur la manière dont est modélisé le lessivage, principal puits du sulfate dans l'atmosphère.

3.1 Le cycle du soufre dans une atmosphère polluée : cas de l'Europe

Dans le cadre de ce travail de thèse, une analyse du cycle du soufre en Europe a été réalisée à partir de la simulation décrite dans le paragraphe précédent. Par rapport à la version de MOCAGE décrite dans le chapitre 2, une modification du coefficient de lessivage pour le sulfate a été introduite, et les résultats qui en découlent sont discutés dans cette étude ainsi que dans la suite du chapitre 3. Ce travail a fait l'objet d'une publication dans la revue « Atmospheric Chemistry and Physics ». Son contenu est résumé dans les deux paragraphes suivants :

Cette étude est découpée en deux parties principales. La première est une analyse des puits et des sources de sulfate sur l'Europe. La charge de sulfate montre un cycle annuel marqué, résultat des variations de la production chimique par voies gazeuse et aqueuse. Par ailleurs, la colonne de sulfate intégrée sur la verticale présente aussi des variations inter-annuelles marquées : Localement, elle peut varier du simple au double d'une année à l'autre, à cause des variations des conditions météorologiques, contrôlant la production chimique, le transport et le dépôt humide de cet aérosol. La deuxième partie de l'étude est une confrontation entre les concentrations de sulfate modélisées et observées en surface. Les flux de lessivage ainsi que les précipitations du modèle sont aussi comparées aux observations. Le réseau d'observations utilisé est le réseau EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme, Hjellbrekke, 2004).

Cette analyse montre que le modèle utilisé représente convenablement les champs de sulfate en Europe, mais a une tendance générale à surestimer les concentrations en surface, en particulier dans le Nord de l'Europe. Cette surestimation est liée à une sous-estimation des flux de lessivage. Les imprécisions dans les champs de précipitation du modèle expliquent en partie la sous-estimation des flux de lessivage, mais la manière dont ce processus est représenté dans le modèle est aussi largement en cause.

Equilibrium of sinks and sources of sulphate over Europe: Comparison between a six-year simulation and EMEP observations

M. Ménégos (1), D. Salas y Melia (1), M. Legrand (2), H. Teysseire (1), M. Michou (1), V-H. Peuch (1), M. Martet (3), B. Josse (1), I. Dombrowski-Etchevers (4)

[1] {Météo-France, CNRM-GAME, Toulouse, France}

[2] {LGGE, Grenoble, France}

[3] {Météo-France, DP/SERV/ENV, Toulouse, France}

[4] {Météo-France, CEN, Grenoble, France}

Correspondence to: M. Menegoz (menegozmartin@yahoo.fr)

Abstract

Sulphate distributions were simulated with a global chemistry transport model. A chemical scheme describing the sulphur cycle and the parameterisations of the main sinks for sulphate aerosols were included in the model. A six-year simulation was conducted from the years 2000 to 2005, driven by the ECMWF operational analyses. Emissions come from an inventory representative of the year 2000. This paper focuses on the analysis of the sulphate sinks and sources over Europe for the entire period of simulation. The Sulphate burden shows a marked annual cycle, which is the result of the annual variations of the aqueous and gaseous chemistry. Sulphate columns can vary regionally by 100% between different years, due to meteorological conditions, driving chemistry, transport and wet deposition of sulphate aerosols. Sulphate ground concentrations, scavenging fluxes and precipitation modelled were compared with observations. The model represents quite well sulphate fields over Europe, but has a general tendency to overestimate sulphate ground concentrations, in particular over Northern Europe. We assume that it is linked to the representation of the scavenging fluxes, which are underestimated. We suggest that uncertainties in modelled precipitation explain only partially the underestimation of the scavenging fluxes in the model.

3.1.1 Introduction

Atmospheric aerosols have significant effects on human health (e.g., World Health Organization, 2002) and represent a significant forcing of the Earth's climate (e.g., Haywood and Boucher, 2000). However, their effect on the radiative balance of the earth is rather uncertain, because their burden, particle size distribution and properties are not well known (IPCC, 2007). The first step when studying the impact of aerosols on climate - and how it may change due to human activities - is to describe the distribution of natural and anthropogenic aerosols over the globe.

Some aerosols are emitted by natural sources, like dust and sea-salt, and other are emitted by human activities, like Black-Carbon (BC). Some aerosols have both natural and anthropogenic sources, like organic aerosols and sulphates (IPCC, 2007). These two aerosols can be directly emitted into the atmosphere, or produced by chemical reactions, from precursor gases. To represent and understand complex behaviour of aerosols, Chemical Transport Models (CTM) are often used. In particular, many numerical simulations has been performed to describe sulphate distributions, both at global scale (e.g., Kasibhatla et al., 1997, Koch et al., 1999, Barrie et al., 2001, Berglen et al., 2004) and regional scale (Hass et al., 2003). Sulphate mainly originates from the oxidation of anthropogenic and volcanic sulphur dioxide (SO₂), but also from the oxidation of dimethylsulfide (DMS), produced by marine phytoplankton. Sulphate aerosols have a short lifetime, about 5 days (Lelieveld et al., 1998), and their distributions can change very quickly, due to their strong dependence to meteorological conditions. Regionally, the year to year variability of the monthly mean aerosol burden can reach 100% because of different weather conditions (Marmer et al, 2007). At the global scale, the results of the aerosol simulations made by existing models differ widely. This is mainly due to the difference in the representation of sources and sinks in each model (Textor et al, 2006). Indeed, models show different annual chemical production of sulphate, depending on the representation of sulphur compounds and oxidants chemistry. The main sink for sulphate is wet deposition (Seinfeld and Pandis, 2006). Its representation is very different from one model to another (Textor et al,

2006), inducing large differences in scavenging fluxes and therefore in sulphate burden modelled.

For this study, we have performed a six-year global simulation, from 2000 to 2005 for dust, BC and sulphate. This paper focuses on the variability of the sulphate distribution over Europe, a place where sulphate comes mainly from SO₂ oxidation and where lot of observations are available. In a first part, we introduce the CTM that we have used and the main parameterisations linked to the atmospheric aerosols. Then, the variability of the sulphate concentration over Europe is evaluated and its link with the main sinks and sources is studied. Finally, modelled sulphate concentrations and surface scavenging fluxes are compared with observations. These comparisons are used to discuss the capacity of the model used to represent sulphate sinks and sources.

3.1.2 Experimental setup

For this study, we have used the MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique de Grande Echelle) (Teyssedre et al., 2007) CTM of Météo-France. MOCAGE is used for a range of applications, from regional studies of air quality to global analyses of the evolution of both the stratosphere and the troposphere. MOCAGE can perform simulations with nested domains, the parent global grid providing fully-consistent boundary conditions to the inner grids. Here, we present a version which was adapted to represent trace gases and aerosols at the global scale.

3.1.2.1 General features of the MOCAGE CTM

In our simulation, MOCAGE is used with a T42 Gaussian grid (about 2.8°×2.8° horizontal resolution) and with 47 layers from the surface to 5 hPa. 7 levels are within the planetary boundary layer (PBL), 20 in the free troposphere and 20 in the stratosphere. The vertical coordinate is hybrid (σ, P). The first layer is 40 m thick, while the resolution above 300 hPa is constant with altitude, around 800 m. In our simulation, the air temperature, humidity, pressure and wind components used to drive MOCAGE consist in the 6-hourly analyses of the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) IFS model. A semi-lagrangian scheme is used for the advection of tracers and chemical compounds. It is based upon the work of Williamson and Rasch (1989) and it is not supposed to conserve mass as soon as the grid is irregular. A simple correction scheme is therefore applied in order to ensure total mass conservation during transport. Further details on the transport in MOCAGE are presented in Josse et al. (2004), which has validated MOCAGE transport comparing modelled and observed radon field. Time steps are 1h for advection and 15 min for subgrid-scale processes. Turbulent diffusion follows Louis (1979), while the convection scheme (mass-flux type) is that of Bechtold et al. (2001). The representation of dry-deposition, based on the work of Wesely (1989) is presented in Michou and Peuch (2002). In-cloud and below-cloud scavenging representation for gases is presented in Teyssèdre et al (2007). MOCAGE can simulate the evolution of three types of aerosols, represented by different bins size : 5 bins for dust between 0.01 μm and 100 μm and 4 bins for both BC and sulphates between 0.001 μm and 10 μm . Representation of the different aerosol sources and sinks is described in the following paragraphs.

3.1.2.2 Emissions

BC and dust are not involved in chemical reactions in our model and are directly emitted in the atmosphere. Sulphate aerosols are both directly emitted in the atmosphere and produced by the oxidation of SO_2 , DMS and hydrogen sulphide (H_2S). For our six-year simulation, we have used the “AEROSol Comparisons between Observations and Models” (AEROCOM) global inventory representative of the year 2000 (Dentener et al., 2006). Emissions of SO_2 , H_2S and SO_4^{2-} are constant over the year, except for biomass burning emissions, which have monthly variations. Daily variations of DMS and dust are present in the AEROCOM inventory. However, we have used monthly averages for these fields because we assumed that daily variations of these emissions are very different from one year to the other, and it would not make sense to do our six-year simulation with the daily variation of the year 2000. We assumed that 2.5 % of the anthropogenic elementary sulphur is directly emitted as SO_4^{2-} ; the rest being SO_2 . To avoid too strong vertical gradients within the PBL, emissions are distributed in the five lowest levels of the model, over an altitude of 600 m on average.

3.1.2.3 Sulphur chemistry

Several chemical scheme are available running MOCAGE. For global simulations of atmospheric oxidants, a full chemical scheme describing the evolution of 82 gaseous species throughout 242 chemical reactions is used. It is a combination of the tropospheric scheme RELACS (Crassier et al., 2000) and of the stratospheric scheme REPROBUS (Lefèvre et al., 1994). In our study, we used a simple chemical scheme, that considers the sulphur cycle only, based on Pham et al. (1995). The sulphur cycle is described with nine chemical reactions that involve eleven species (see Fig. 3.1). The oxidants (OH , H_2O_2 , O_3 and NO_3) are provided by a one-year MOCAGE simulation with the full chemical scheme. The oxidation reactions described, both in the gaseous and aqueous phases, lead to the formation of sulphate (SO_4^{2-}), that condensate quasi-instantaneously into aerosol particles.

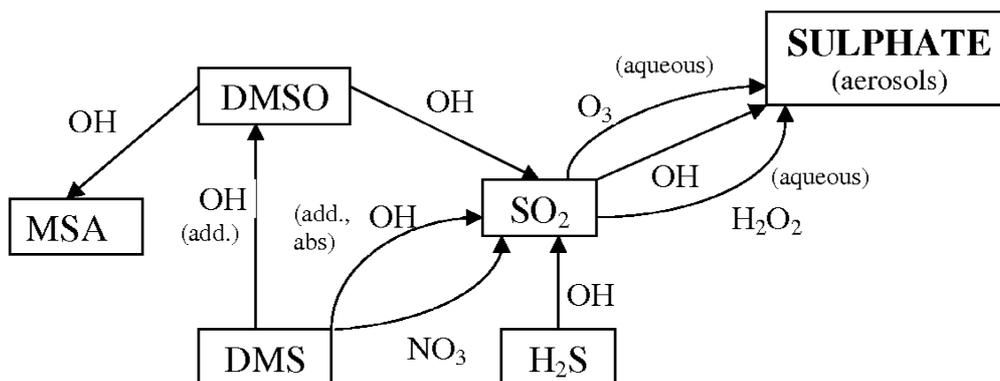


Figure 3.1: The sulphate chemistry used within MOCAGE. All reactions are in the gaseous phase except for the SO_2 oxidation by O_3 and H_2O_2 which occur in the aqueous phase.

3.1.2.4 Physics of aerosols in the model

Aerosols are removed from the atmosphere by three main sinks : dry deposition, due to the contact of the atmospheric flow with the earth surface, sedimentation, implied by gravitational forces, and wet deposition, due to the presence of water droplet in the atmosphere (Seinfeld and Pandis, 2006). In the following, we describe the parameterisations of these processes that we used.

Parameterisation of the dry-deposition is based on Seinfeld and Pandis (2006), and its adaptation in MOCAGE is presented in Nho-Kim et al. (2004).

The velocity sedimentation, based on Stokes law, is adapted for the atmosphere in Seinfeld and Pandis (2006) :

$$v_s = \frac{\rho_p D_p^2 g Cc}{18\mu_{air}} \quad (1)$$

where ρ_p is the particle density, D_p its diameter, μ_{air} the air viscosity and Cc a coefficient which takes into account air rarefaction with altitude.

MOCAGE describes both below-cloud and in-cloud scavenging. A collision efficiency between aerosols and droplets is computed to determine below-cloud scavenging. It depends on the Reynolds and Schmidt numbers and on the ratio of aerosol and droplet diameters, as presented in Seinfeld and Pandis (2006). In-cloud scavenging is the adsorption of particles by cloud droplets. Its efficiency depends on the aerosol composition. For each grid cell, a scavenging rate λ is computing (Langner and Rodhe, 1991) :

$$\lambda = \frac{\varepsilon \times R}{L} \quad (2)$$

R is the precipitation formation rate and L is the cloud Liquid Water Content (LWC). ε is a coefficient empirically proportional to L :

$$\varepsilon = \alpha \times L \quad (3)$$

We use observations presented in Kasper-Giebl et al. (2000) to calibrate ε both for BC and sulphate aerosols (see red lines in Fig. 3.2). In our simulations, we used :

$$\varepsilon_{BC} = 1.2L \text{ for } LWC \leq 0.6 ; \quad \varepsilon_{BC} = 0.6 \text{ for } LWC > 0.6 \quad (4)$$

$$\varepsilon_{sulphate} = 3L \text{ for } LWC \leq 0.3 ; \quad \varepsilon_{sulphate} = 0.9 \text{ for } LWC > 0.3 \quad (5)$$

We have to keep in mind that in-cloud scavenging is a crucial process in aerosol simulations. It represents 95 % of the total scavenging (Boucher et al., 2002). Consequently, the aerosol distributions modelled are strongly dependent on the representation of this sink.

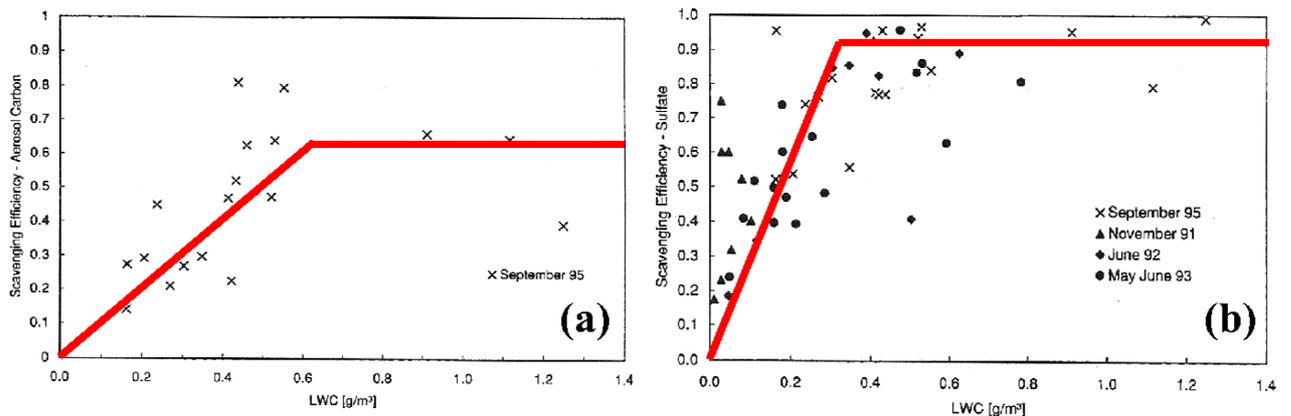


Figure 3.2 : Scavenging efficiencies of Black-Carbon and sulphate in supercooled Clouds at Mt. Sonnblick (Adapted from Kasper-Giebl et al., 2000)

3.1.3 Seasonal and inter annual variability of the sulphate burden over Europe

We computed a six-year simulation at the global scale, but for the purpose of this study, we consider a domain centred over Europe, between 30°W to 40°E in longitude and 30°N to 85°N in latitude.

3.1.3.1 Variations of the sulphate burden

Fig. 3.3 shows the sulphate burden over Europe for the 6 years of the simulation. Our simulation was initialised with all aerosol concentrations set to zero. A three-month spin-up is required for the sulphate burden to reach an equilibrium value. Lifetimes of tropospheric aerosols vary from several days to several weeks (Delmas et al, 2005), so we can assume that after this three-month spin-up, the aerosol distributions of the model should be realistic. Since we used the same emissions of sulphate precursors for each year of the simulation, the variations of the sulphate burden are only due to the variations of meteorological fields. We can see an important annual cycle. For each year of the simulation, the sulphate burden reaches a maximum around May, twice stronger than a minimum value which occurs around September. The maximum is around 9 mg[S].m^{-2} (± 0.5 depending on the year), and the minimum value is around 4 mg[S].m^{-2} (± 0.5 depending on the year).

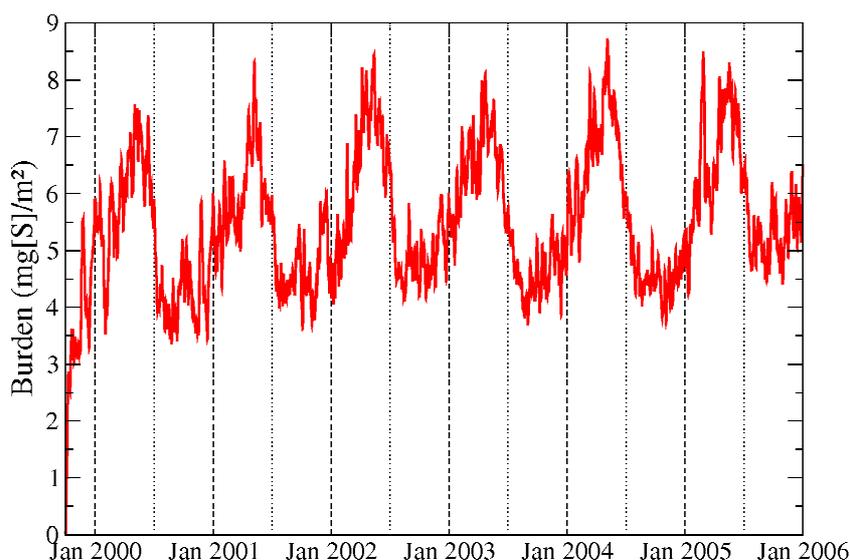


Figure 3.3 : Evolution of the sulphate burden between October 1999 and January 2006 over our European domain (see text).

A simulation made by the regional model REMOTE over Europe for the years 2002 and 2003 presented in (Marmer et al, 2007) shows an annual cycle between 2 mg[S].m^{-2} and 0.8 mg[S].m^{-2} . These values are about 4 times lower than ours. Moreover, in this REMOTE simulation, the annual cycle is shifted, with a maximum in July and a minimum in January. In their paper, Marmer et al. (2007) find an anti-correlation between precipitation and sulphate burden. As we can see in Fig. 3.4a, precipitation over our European domain shows a maximum in January and a minimum in July. The maximum of sulphate burden occurs about three month after the maximum of precipitation. It is difficult to correlate precipitation with sulphate because if high precipitation implies large scavenging rates on one hand, it corresponds to

significant aqueous chemistry production of sulphate because of the high LWC of the atmosphere on the other hand.

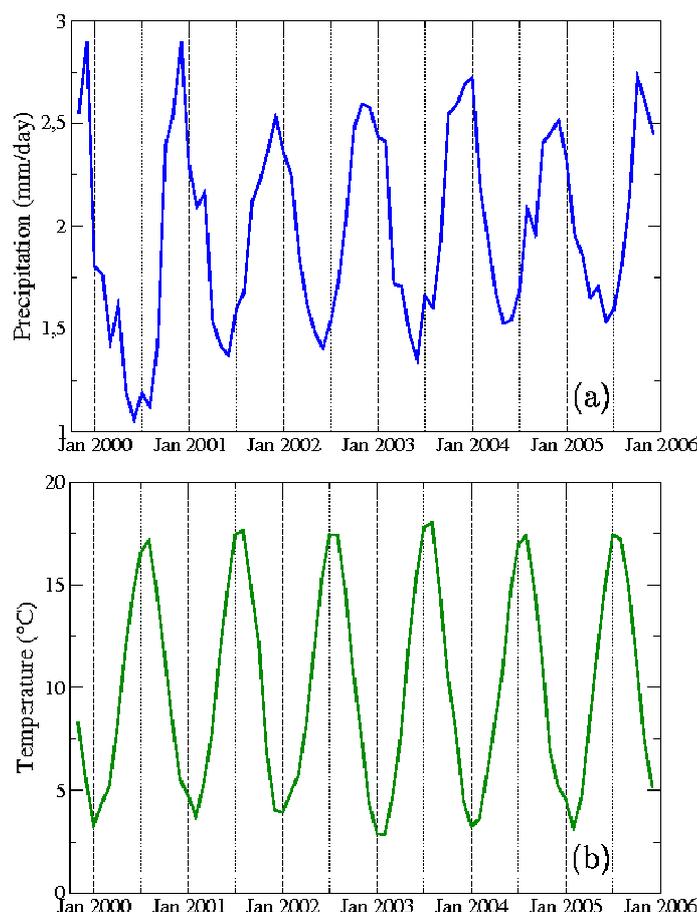


Figure 3.4 : Evolution of precipitation ((a), mm/day) and temperature ((b), °C) averaged over our European domain (see text), from 2000 to 2005.

3.1.3.2 Evaluation of the sulphate sinks and sources

Fig. 3.5.a shows the sulphur budget over the domain considered on this study (between 30°W to 40°E in longitude and 30°N to 85°N in latitude). Main source of sulphur is coming from anthropogenic SO₂ emissions. DMS, H₂S and sulphate direct emissions are of the same order of magnitude, approximately 20 times lower than SO₂ emissions. Main sink for SO₂ is dry deposition (229.13 mg[S].m⁻²) followed by aqueous chemistry (200.56 mg[S].m⁻²), then by wet deposition (68.75 mg[S].m⁻²), gaseous chemistry (61.95 mg[S].m⁻²) and transport toward the exterior of the domain (41,62 mg[S].m⁻²). Aqueous phase SO₂ oxidation is the main source for sulphate (200.56 mg[S].m⁻²), followed by gaseous oxidation (61.95 mg[S].m⁻²), and direct emissions (12.41 mg[S].m⁻²). Main sulphate sinks are wet deposition (127.22 mg[S].m⁻²), followed by the transport toward the exterior (96.62 mg[S].m⁻²) and dry deposition (5089 mg[S].m⁻²).

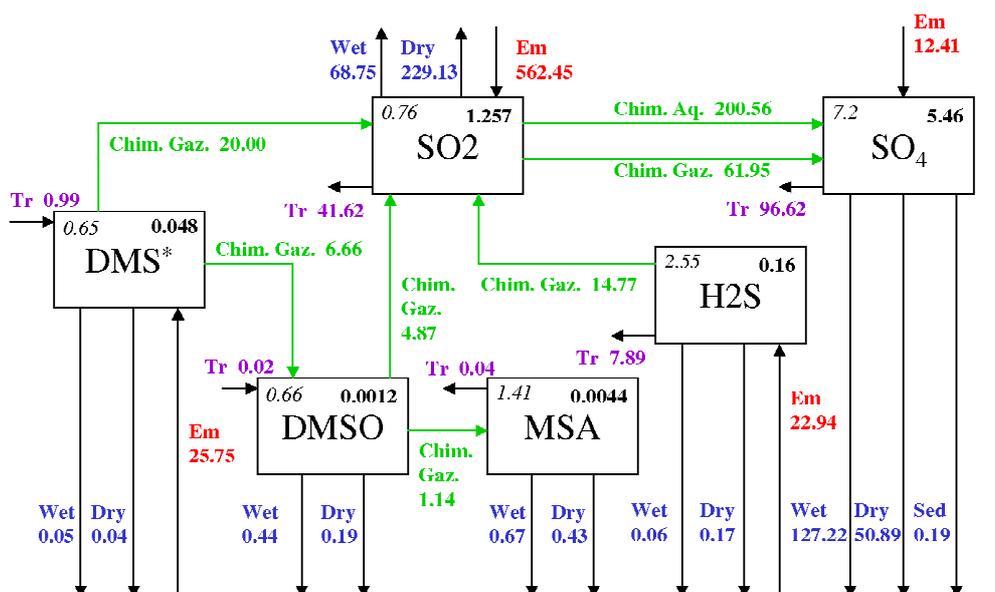


Figure 3.5.a : Sulphur annual budget over Europe simulated by MOCAGE. Domain from 30°W to 40°E in longitude and 30°N to 85°N in latitude. On the compound name square, burden (mg[S].m⁻²) are on the right and lifetime (days) are on the left (italics). Fluxes are in mg[S].m⁻².year⁻¹. Gas. Chem.: Gaseous Chemistry ; Aq. Chem: Aqueous chemistry ; Wet: Wet deposition ; Dry: Dry deposition ; Tr: Transport toward the exterior ; Em: Emissions.

Fig. 3.5.b shows the times series of sinks and sources of sulphate over Europe : the aqueous and gaseous chemistries present a significant annual cycle. In winter, the production by the aqueous chemistry is the main source of sulphate, whereas the production by the gaseous chemistry is negligible. In contrast, the production of the gaseous and aqueous chemistries are similar in summer. Production by aqueous chemistry is clearly correlated with precipitation (see Fig. 3.4a and Fig. 3.5.b) : when precipitation is intense, the atmospheric LWC is high, sulphur compounds are diluted and the aqueous chemistry is efficient. The production by the gaseous chemistry, which presents maxima in summer and minima in winter, is clearly correlated with temperature (see Fig. 3.4b and Fig. 3.5.b).

The main sink for sulphate is wet deposition, due to its high solubility. Wet deposition is proportional to sulphate concentration, but also depends on cloud LWC, which is correlated with precipitation. It does not have a clear annual cycle, but is generally higher in winter, a period with stronger precipitation than in summer. Dry deposition is three times smaller than wet deposition and sedimentation is negligible for sulphate aerosols. A significant amount of sulphate is advected out of the European domain (see the curve “Export” in Fig. 3.5.b). The direct emissions are very small compared to the chemical production. The sulphate burden variations load, that appears in black in Fig. 3.5.b, oscillate around zero.

A maxima in sulphate burden appears at the end of winter due to the combination of a maxima in the total chemical production (aqueous and gaseous) and low scavenging values. Minima in sulphate burden appears at the beginning of autumn due to the combination of a minima in the total chemical production and high scavenging fluxes relatively to sulphate burden.

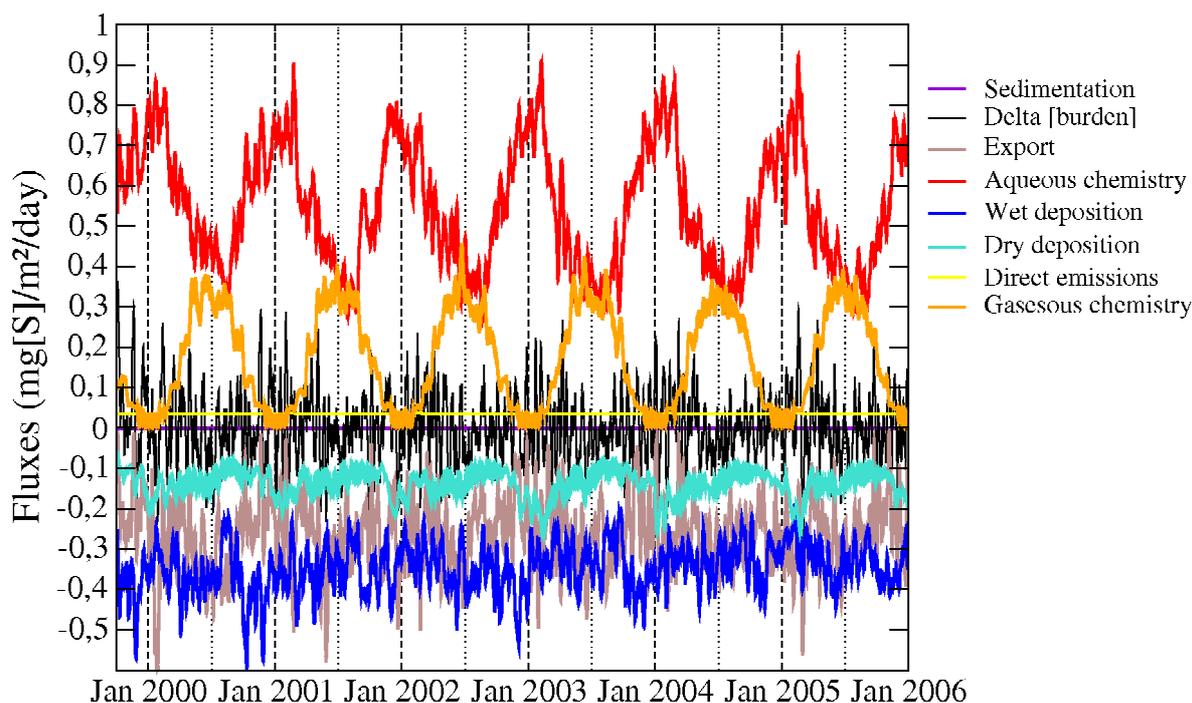


Figure 3.5.b : Sources and sinks of sulphate ($\text{mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$) averaged over our European domain, from 2000 to 2005 (weekly moving averages applied to 6 hourly model outputs).

Kasibhatla et al. (1997) have yet estimated burden, sources and sinks over a European domain. Table 1. compares the burden and the different sulphate fluxes simulated for the two studies. If our study shows an equivalent sulphate burden between the winter and the summer, those of Kasibhatla et al. shows a sulphate burden two times higher in summer than in winter. We have to keep in mind that the domain taken into account in our study is larger and contains more oceanic surfaces than those chosen by Kasibhatla et al (1997). As a consequence, the anthropogenic SO_2 emissions, the total chemical production and the sulphate flux advected out of the European domain are lower considering our domain instead those of Kasibhatla et al (1997). Dry and wet deposition are also smaller in our study, and it explains that sulphate burden in our simulation is higher than those of Kasibhatla et al (1997). All sulphate fluxes averaged over summer and winter are quite similar in our simulation, whereas total chemical production and wet deposition vary from about 25 % between winter and summer in Kasibhatla et al (1997). In their study, the gaseous production presents an annual cycle comparable as our, which a maximum in summer and a minimum in winter (not shown). It is not the case for the aqueous chemistry, which shows few variations between summer and winter in their study in comparison with our simulation (not shown). In our simulation, the combination of the annual cycles of the aqueous and gaseous chemical production leads to a total chemical production relatively constant over the year.

	Burden		Total chemical production		Wet deposition		Dry deposition		Export	
	summer	winter	summer	winter	summer	winter	summer	winter	summer	winter
Kasibhatla et al.	4.7	2.9	2.7	2.2	1.6	1.1	0.3	0.3	0.7	0.8
This study (MOCAGE)	5.26	5.32	0.7	0.76	0.34	0.36	0.13	0.17	0.30	0.27

Table 3.1. Burden ($\text{mg}[S].\text{m}^{-2}$), sources and sinks of sulphate ($\text{mg}[S].\text{m}^{-2}.\text{day}^{-1}$) over Europe simulated by Kasibhatla et al. (1997) model and MOCAGE. Domain of Kasibhatla et al. covers $40^{\circ}\text{N}-60^{\circ}\text{N}$, $10^{\circ}\text{W}-40^{\circ}\text{E}$, this study domain covers $30^{\circ}\text{N}-85^{\circ}\text{N}$, $30^{\circ}\text{W}-40^{\circ}\text{E}$.

There are two areas in Europe where the AEROCOM emissions of sulphur compounds are important (not shown) : in the East of the continent, emissions are mainly anthropogenic. In the South, there are also anthropogenic emissions around the Mediterranean sea, but according to the AEROCOM inventory, emissions from the Etna volcano are also regionally very strong.

Fig. 3.6 shows maps of the column and the main sinks and sources for sulphate over Europe. In January, the column of sulphate presents high values in North-Eastern Europe (Fig 3.6a). In this region and during this month, the atmosphere is humid enough to favour high levels of aqueous production of sulphate (Fig. 3.6b), but not enough to imply high scavenging rates. As a consequence, removal by wet deposition (fig. 3.6d) is limited over North-Eastern Europe in January. In July, the total column of sulphate presents high values in Southern Europe (Fig. 3.6a). The atmosphere is then dry there, so sulphate production comes essentially from the gaseous chemistry (Fig. 3.6c), and scavenging fluxes are small (Fig. 3.6d). In contrast, more humid conditions in Eastern Europe, close to anthropogenic emissions, result in larger scavenging fluxes (Fig. 3.6d).

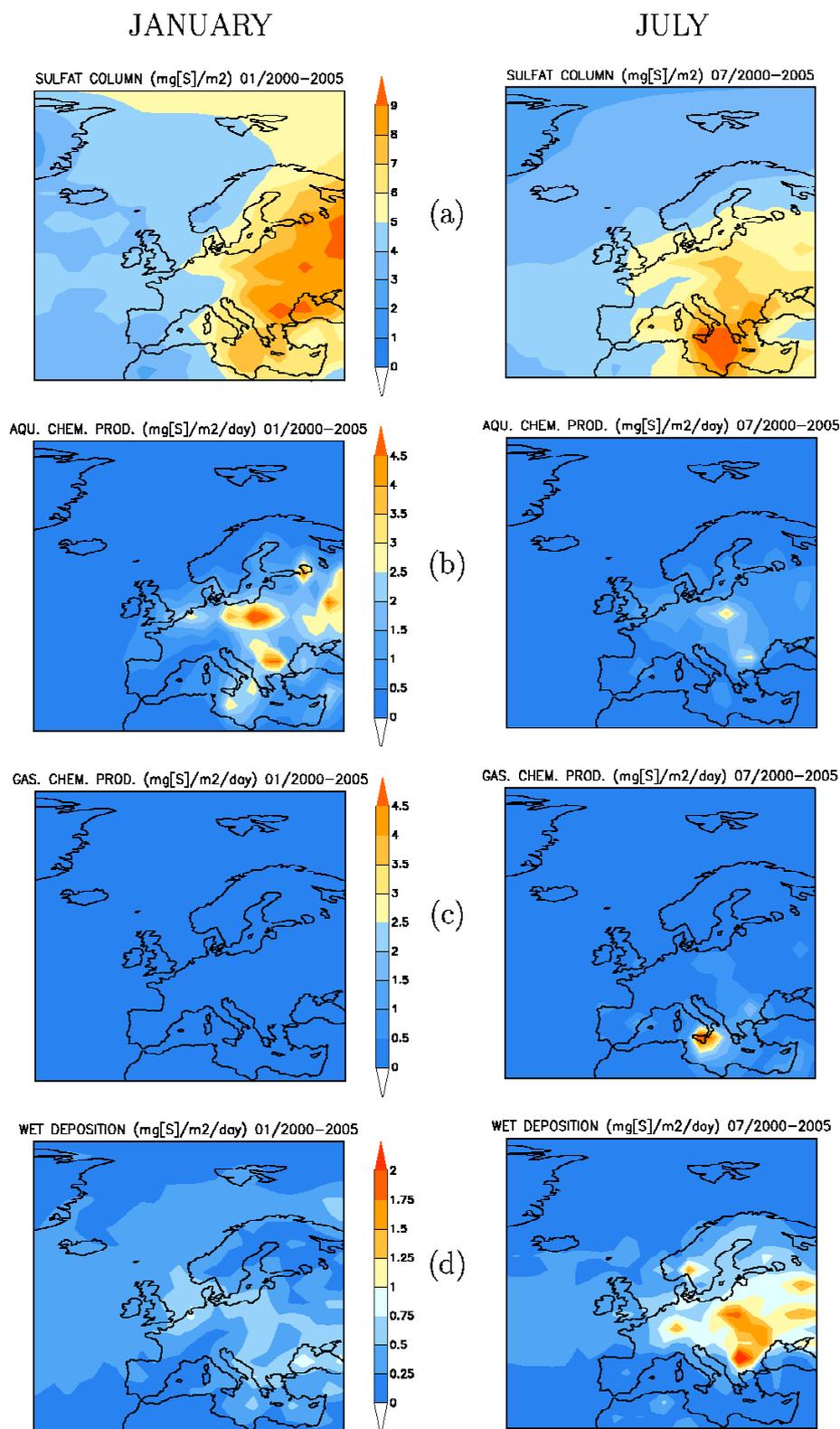


Figure 3.6 : From top to bottom : (a) Column of sulphate, (b) production by aqueous chemistry, (c) production by gaseous chemistry, (d) scavenging fluxes. Field averaged over the 2000-2005 period for January (left) and July (right). The sulphate column is in units of $\text{mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}$; other quantities are in units of $\text{mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}.\text{day}^{-1}$.

3.1.3.3 Evolution of the sulphate distribution over the six-year simulation

As we used constant emissions over our six-year simulation, the modelled interannual variability of the sulphate distributions is caused by the variability of the meteorological fields. Fig. 3.7 and 3.8 show the variability of sulphate in January over the period 2000-2005, respectively in terms of column and zonal mean. As explained previously, sulphate concentrations are high on the East of the domain that we considered in January, due to a strong aqueous chemistry production. Fig. 3.7 shows that the sulphate column can vary locally up to 100 % in January from one year to the next.

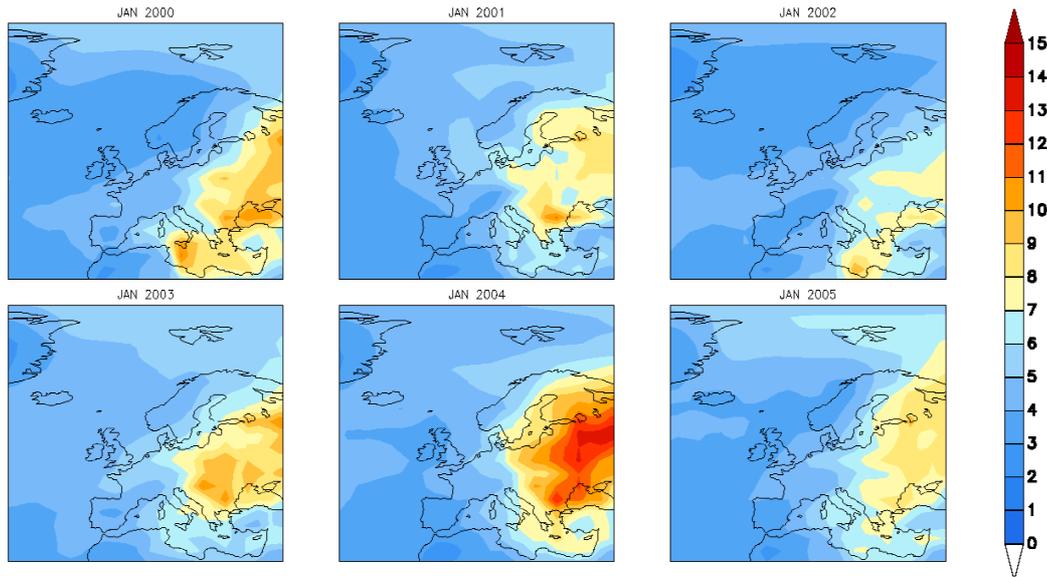


Figure 3.7 : Mean sulphate column ($\text{mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}$) over Europe in January from 2000 to 2005

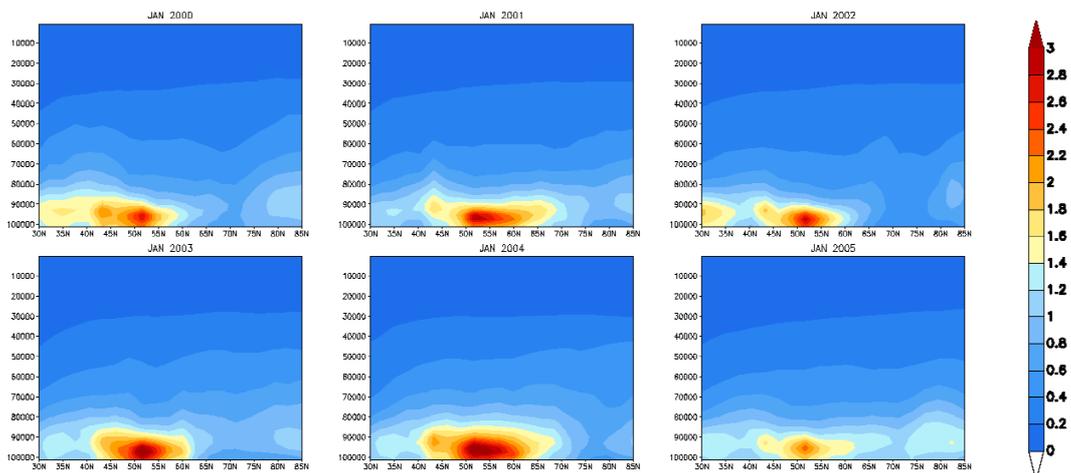


Figure 3.8 : Sulphate zonal mean ($\mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$) over Europe, January of years 2000 to 2005. (levels are in Pa).

To throw some light on, time series sulphate sinks and sources during the 2001-2002 and 2003-2004 winters are shown in Fig. 3.9. Differences between January 2002 and January 2004 in sulphate distributions are mainly the consequence of two factors : In December 2001 - January 2002, large amount of sulphate are transported outside of the domain (see variable “Export” in Fig. 3.9), in contrast with the same period in 2004, when most of the sulphate produced is accumulated over polluted areas. Moreover, the aqueous chemistry production of sulphate is stronger in January 2004 than in January 2002, in particular during the second half of the month. Fig. 3.9 shows also that the wet deposition is stronger in 2004 than in 2002 during the first two weeks of January, but not enough to allow the sulphate burden to reach the 2002 values.

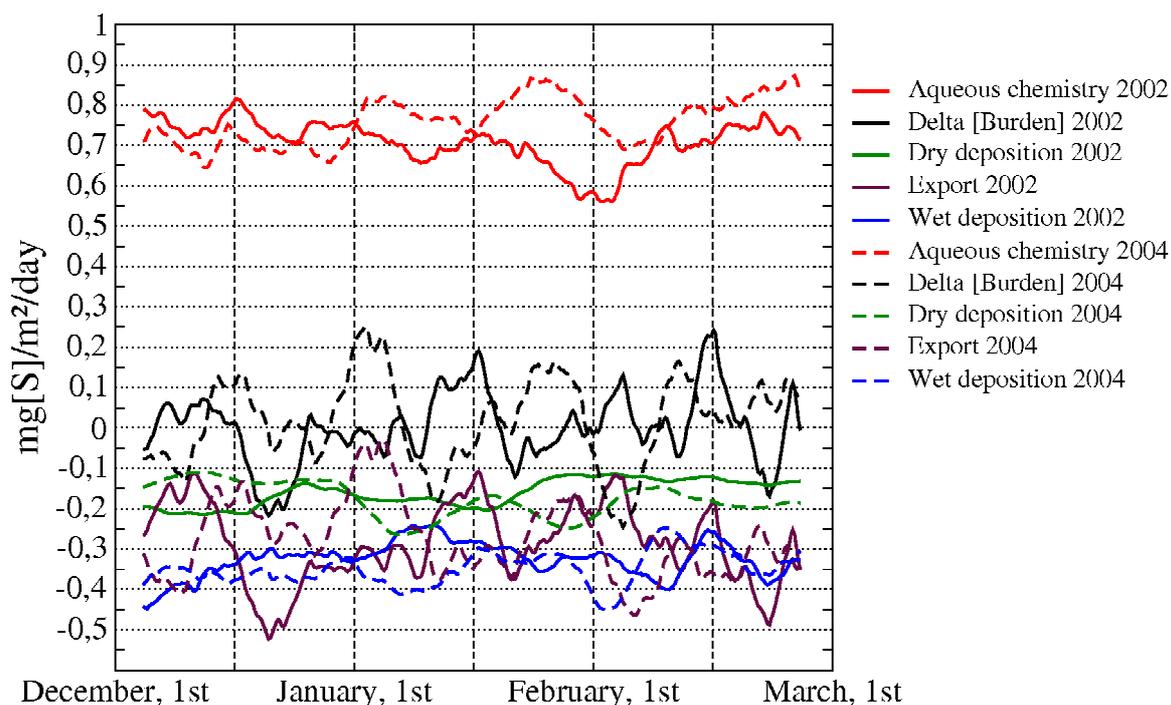


Figure 3.9 : Mains sulphate sinks and sources for 2001-2002 and 2003-2004 winter (weekly moving averages applied to 6 hourly model outputs). Fluxes are in $\text{mg[S]}/\text{m}^2/\text{day}$.

Fig. 3.10 shows the monthly mean meteorological fields of January 2002 and 2004. January 2002 has high pressures over Southern Europe and low pressures over Northern Europe (Fig. 3.10a). In contrast, January 2004 shows high pressures in the South-Western part of the domain only. The larger transport of aerosol out of the domain in 2002 compared to 2004 is linked to strong westerly winds above Eastern Europe (Fig. 3.10 b), a zone with high levels of sulphate. On the contrary, field of temperature of the two years are quite similar during January (Fig. 3.10 c) and we can assume that they do not explain the differences in the sulphate chemistry production. Fig. 3.10 d shows that precipitation is slightly higher in Eastern Europe in January 2004 than in January 2002 ; Atmospheric LWC approximately follows the same behaviour as precipitation. This implies a stronger sulphate aqueous chemistry production in Eastern Europe in January 2004 (Fig. 3.11 a), where SO_2 emissions are high. Wet deposition is also larger in January 2004 than in January 2002, but only in parts of Eastern Europe (Fig. 3.11 b). This comparison confirms that the meteorological fields can locally affect sulphate concentration strongly, depending on the relative positions of the atmospheric pressure patterns and the location of the SO_2 emissions.

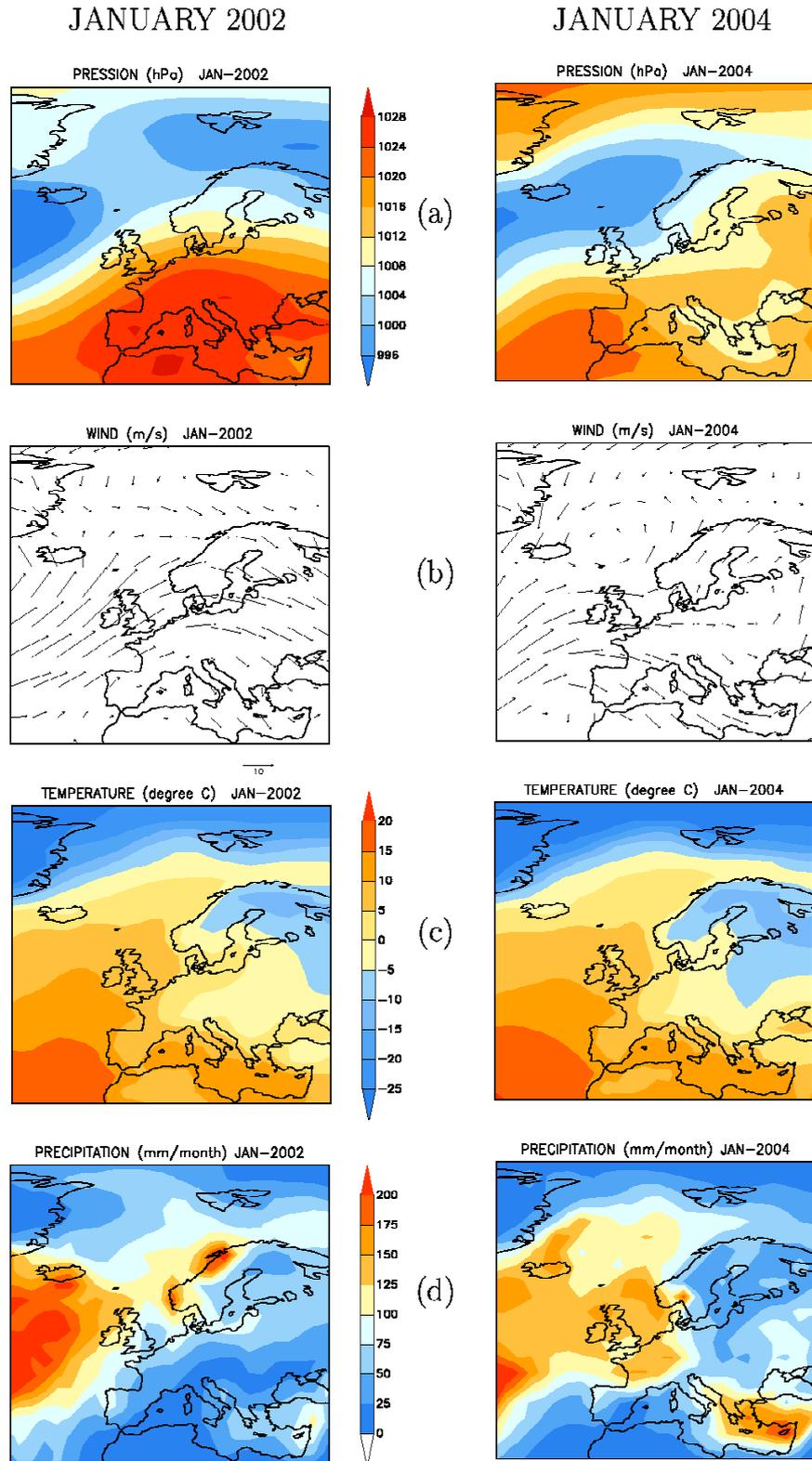


Figure 3.10 : Meteorological fields for January 2002 (left) and January 2004 (right). From top to bottom : (a) Pressure (hPa), (b) wind ($m.s^{-1}$), (c) temperature ($^{\circ}C$) and (d) precipitation ($mm.month^{-1}$) fields.

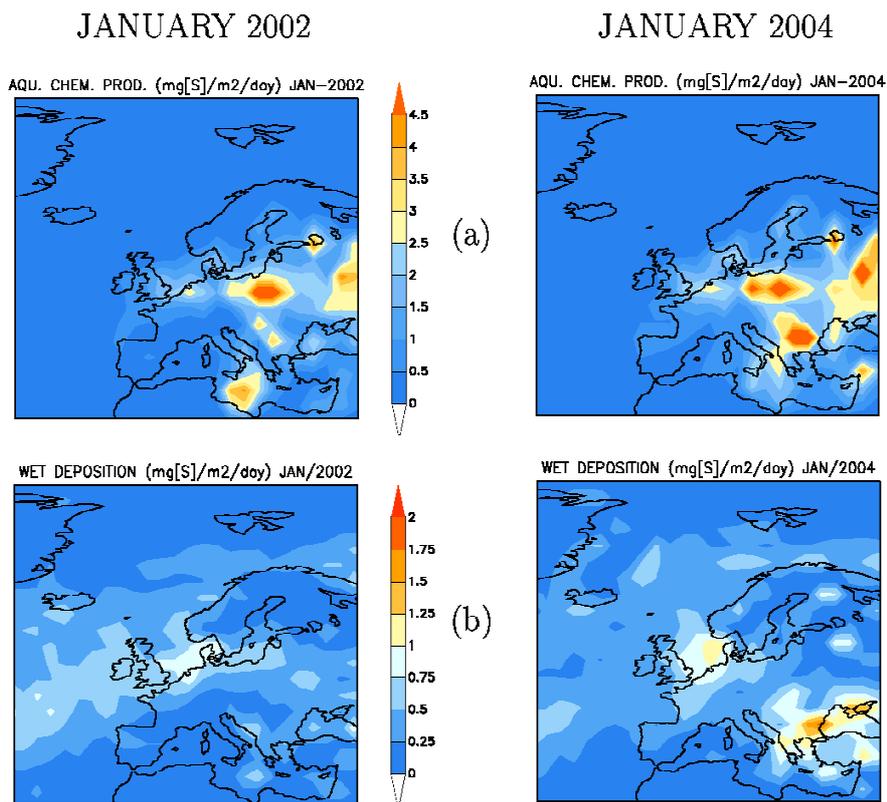


Figure 3.11 : Distribution of the aqueous chemistry production (top) and the wet deposition (bottom). January 2002 (left) and January 2004 (right). Fluxes are in $\text{mg}[\text{S}].\text{m}^2.\text{day}^{-1}$.

Fig. 3.8 shows that the vertical distribution of sulphate does not vary a lot in Europe from one year to the next, unlike their latitudinal. As explained previously, at a given latitude, the zonal mean of sulphate concentration over Europe can vary 100 %, depending on the meteorological forcing. Moreover, we can see in both Fig. 3.7 and 3.8 that there is a significant transport of sulphate toward high latitudes in January. Transport of atmospheric air masses from European polluted areas towards the North pole has been highlighted (Stohl, 2006). In our simulation, the sulphate transport towards the Arctic shows significant variations depending on the year considered (Fig. 3.8).

3.1.4 Comparison between EMEP observations and MOCAGE outputs

European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) (Hjellbrekke, 2004) observations are used here to validate sulphate concentrations, scavenging fluxes and precipitation simulated by MOCAGE. We have to note that it is not straightforward to compare point measurements with gridded model output. The model, which has a coarse horizontal resolution of about 2.8° , represents an average of sulphate concentration in each grid cell. In our study, these grid values are compared with the mean of all EMEP observations available inside the grid cell.

Fig. 3.12 represents the sulphate ground concentrations modelled by MOCAGE and observed at the EMEP stations in January and July, averaged over 2000-2005. Generally, the model overestimates sulphate concentrations both in winter and summer: in high sulphate concentrations areas, observed values reach $2 \mu\text{g}.\text{m}^{-3}$ whereas they go up to $3 \mu\text{g}.\text{m}^{-3}$ in the

model. The spatial agreement is quite good in winter, a period with high concentrations of sulphate over Central and Eastern Europe and low sulphate concentrations in all Western Europe. In summer, the agreement between the model and observations is quite good over Northern Europe, but discrepancies appear in Southern Europe: high sulphate concentrations are simulated near the Etna volcano, due to large emissions in the AEROCOM inventory. It should be noted that, in our model, volcanic emissions are injected in the first five levels only. Injecting them higher would certainly avoid such accumulations near the surface. Nevertheless, there are too few observations in the EMEP network in this region to really assess the Etna contribution. In the South-West of Europe, the model represents sulphate concentrations on the coast quite correctly, but underestimates concentrations over Spain. This underestimation could be due to an underestimation of emissions in this region or to a bad representation of the southward aerosol transport.

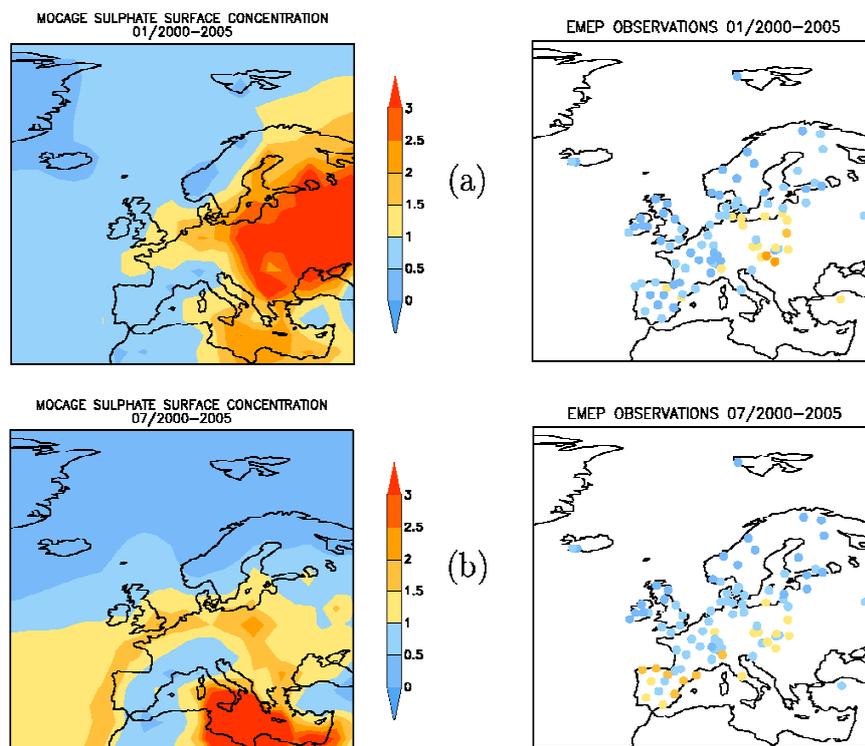


Figure 3.12 : Sulphate ground concentration modelled by MOCAGE (left) and observed (right), in January (top) and July (bottom). Values ($\mu\text{g}[S].\text{m}^{-3}$) are averaged over 2000-2005.

Fig. 3.13 shows a comparison between modelled and observed sulphate concentrations for each season, averaged over 2000-2005, and distinguishing between Northern-Central and Southern Europe. As already noted over Europe, modelled surface concentrations overestimate EMEP observations. This overestimation is more marked in autumn and winter. Moreover, agreement between model and observations is better in southern Europe.

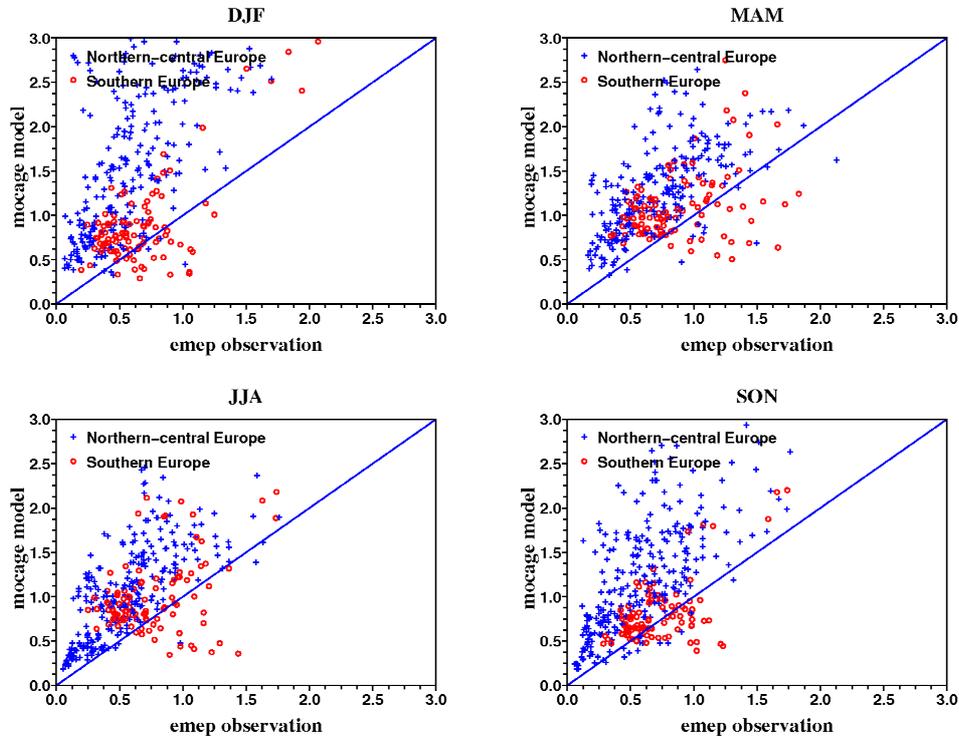


Figure 3.13 : Seasonal ground concentrations of sulphate ($\mu\text{g}[S].\text{m}^{-3}$): MOCAGE outputs versus EMEP observations. Three month averages over 2000-2005.

Fig. 3.14 presents similar seasonal comparisons as in Fig. 3.10, but for scavenging fluxes. We constructed observed scavenging fluxes by multiplying precipitation fluxes with sulphate concentration in precipitating water. The modelled fluxes diagnosed by the model correspond to the amount of sulphate absorbed by cloud droplet as presented in part 2.2. Modelled scavenging fluxes generally underestimate observations for all seasons in Southern Europe. In Northern Europe, scavenging fluxes are too low in winter and spring, but are rather correct during the summer and the autumn. Representation of scavenging fluxes is strongly linked with the quality of the representation of cloud LWC and precipitation in models (Textor et al., 2007).

Fig. 3.15 shows that high precipitation values are generally underestimated by the model. Agreement between the model and observations is quite good for all seasons, except for winter. For this season, Fig. 3.15 reveals a large scatter: In Southern Europe, precipitation is often overestimated, and in Northern Europe, if model represents quite correctly low precipitations, it underestimates high precipitation. In addition, the scatter is larger in plots for Southern Europe than for Northern Europe.

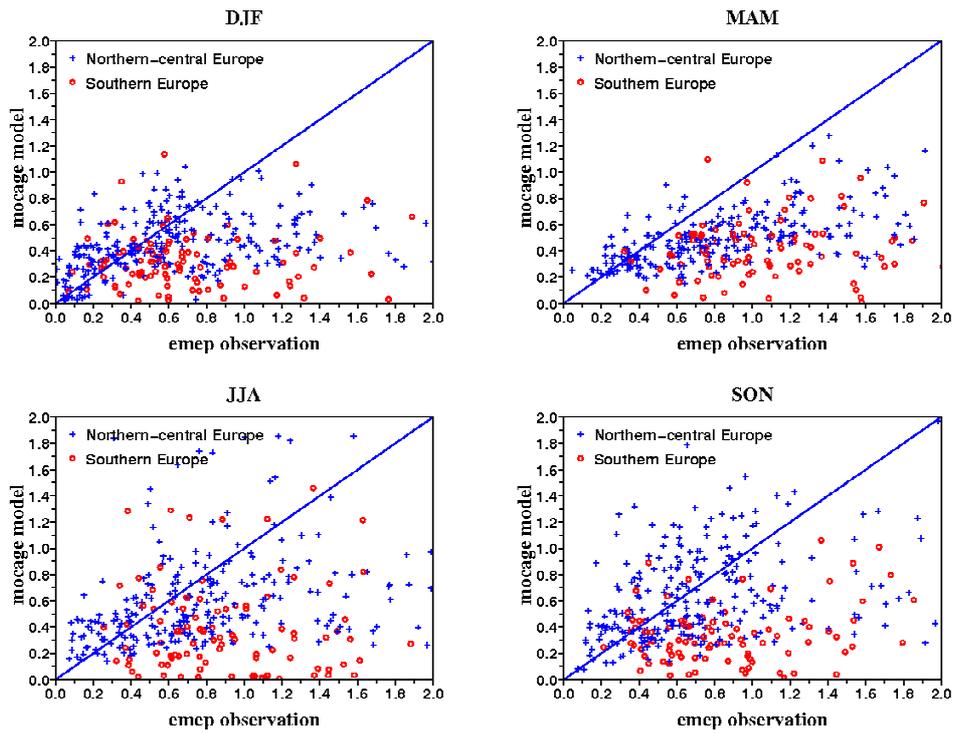


Figure 3.14 : Seasonal scavenging fluxes of sulphate ($\text{mg}[S].\text{m}^{-2}.\text{day}^{-1}$): MOCAGE outputs versus EMEP observations. Three month averages over 2000-2005.

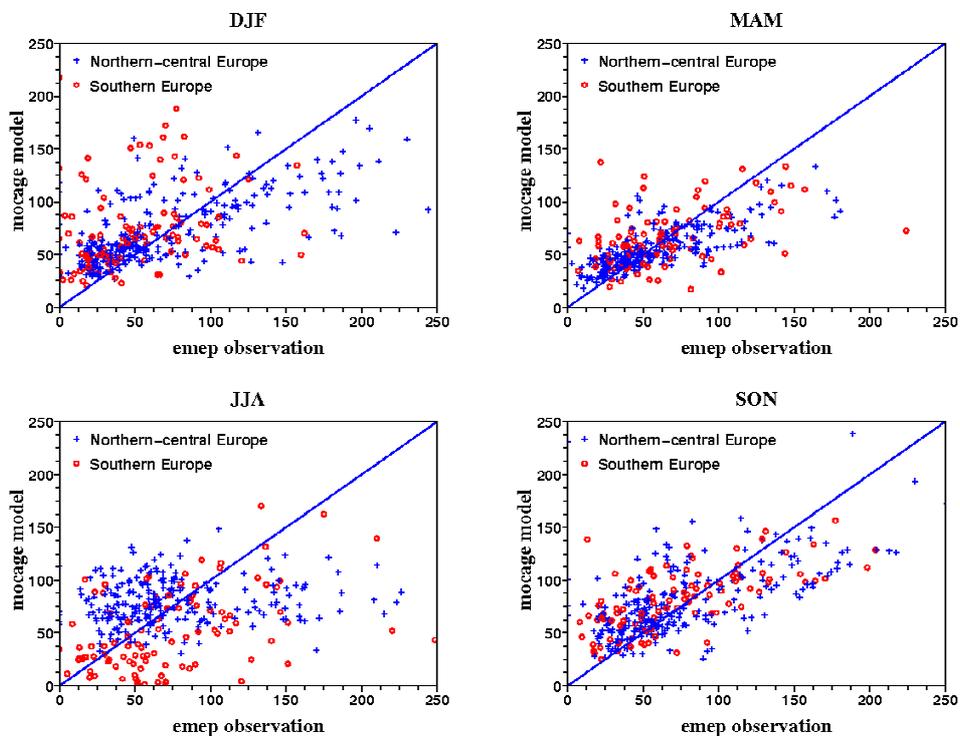


Figure 3.15 : Seasonal precipitation ($\text{mm}.\text{day}^{-1}$): MOCAGE outputs versus EMEP observations. Three month averages over 2000-2005.

In Northern Europe, we can assume that the model overestimates sulphate ground concentrations because it underestimates scavenging fluxes. In Southern Europe, modelled sulphate ground concentration are in better agreement with observations. We can hypothesize that in this region, underestimation of the scavenging fluxes is compensated by an overestimation of emissions. The underestimation of scavenging fluxes in Northern Europe is probably partly linked with the underestimation of precipitations in that area, in particular for high precipitations and high scavenging fluxes situations. But in Southern Europe, scavenging fluxes are underestimated whereas this is not the case for precipitation. This suggests that the scavenging representation is not only dependent on the model capacity to represent precipitation.

3.1.5 Conclusions

MOCAGE CTM has been used to model aerosol distributions at the global scale. Specific developments have been included in the model to describe sulphate aerosols, in particular a simple chemical scheme describing both the aqueous and gaseous chemistries, using oxidants fields generated by a full chemistry MOCAGE run. The representation of sulphate wet deposition is based on an empirical law, adjusted on measurements made by Kasper-Gibel et al. (2000). A six-year global simulation has been performed using the AEROCOM emissions inventory and the ECMWF operational analyses. Burden, sources and sinks of sulphate in Europe over the period 2000-2005 has been analysed on this study.

For each year of the simulation, the sulphate burden has a significant annual cycle, with a maximum in May and a minimum in September. Such an annual cycle is caused by the annual cycles of the aqueous and the gaseous chemistry production, combined with spatiotemporal variations of wet deposition: The aqueous chemistry, clearly correlated with precipitation, has a maximum in January and a minimum in July. The gaseous chemistry is correlated with temperatures and shows a maximum in July and a minimum in January. The aqueous chemistry produces three times more sulphate than the gaseous chemistry on average over all our simulation. The aqueous chemistry is very active in winter over Eastern Europe, a region where there are significant anthropogenic emissions. The gaseous chemistry is active in summer over Southern Europe, with dry and warm conditions. Wet deposition, the main sulphate sink, has no clear annual cycle, but is stronger in winter than in summer. In winter, wet deposition has medium values over large parts of the domain considered. In summer, it has low values on most of the domain, except on Eastern Europe, where it has very high values.

Sulphate burden modelled by MOCAGE over Europe were four time higher in average than it is presented on Marmer et al. (2007). More investigations are needed to explain such a difference. From one year to the next, we found sulphate column variations up to 100%. This appears to be linked to the meteorological conditions which drive transport, chemistry and wet deposition. Position of high and lows pressure patterns relative to SO₂ emission regions strongly modify the sulphate column. Wind fields strongly affect the sulphate column, evacuating efficiently sulphate aerosols from polluted areas as we showed in the comparison between January 2002 and 2004. The aqueous chemistry is very productive as soon as the atmosphere is humid enough. But with large humidity, the wet deposition moderates significantly the production of the aqueous chemistry.

Sulphate concentrations at the lowest level of the model, averaged over the six years of the simulation for January and July, have been compared to EMEP ground observations. In spite of a general tendency to overestimate sulphate concentrations, the model reproduces them rather accurately in Northern Europe for both months. Over Southern Europe, sulphate concentration

are well reproduced in January, but larger discrepancies appear in July. It is unclear whether this comes from an emissions bias or a bad representation of the gaseous chemistry of the model. Considering all seasons, sulphate surface concentrations are often overestimated by the model in Northern Europe, whereas they are more realistic in Southern Europe. This is partially due to an underestimation of the scavenging fluxes. The underestimation of precipitation in the model can not explain fully this underestimation of the scavenging fluxes. Further sensitivity tests, including testing other scavenging fluxes representations should be performed to evaluate further the factors that drive scavenging of sulphate aerosols.

Acknowledgements

We thank Anne-G. Hjellbrekke for providing EMEP observations data, Dirk Olivie who gave us computing tools, Aurelien Ribes and Mathieu Joly who helped us to use the SCILAB and GRADS freeware.

3.2 L'aérosol atmosphérique aux hautes latitudes

Dans cette section, la concentration atmosphérique en aérosol simulée par MOCAGE est analysée dans les régions Antarctique et Arctique. En Antarctique, le cycle du soufre n'est *a priori* pas affecté par les activités humaines. Dans cette région, la concentration en poussières désertiques est très faible, celle en carbone-suie quasiment nulle. En Arctique, l'activité anthropique est très faible. En revanche, on relève dans cette région un apport important de polluants transportés depuis les régions situées plus au sud. Le manque d'observations aux hautes latitudes est un frein à l'estimation de la charge en aérosol et de leur impact sur le climat dans ces régions. La modélisation reste un des seuls moyens pour apprécier les quantités d'aérosols présents dans l'atmosphère à ces latitudes. En outre, analyser une simulation de l'aérosol atmosphérique dans ces régions particulières constitue une validation complémentaire du modèle utilisé, notamment en ce qui concerne le cycle du soufre qui n'est pas modifié par les émissions anthropiques de composés soufrés. Dans ces régions, la seule source de soufre produisant du sulfate est constituée par les émissions océaniques de DMS.

L'étude concernant le cycle du soufre en Europe présentée dans le paragraphe précédent a été réalisée grâce à une simulation globale sur la période 2000-2005. Cette même simulation a été utilisée ici pour étudier le cycle du soufre aux hautes latitudes Nord et Sud. On rappelle que cette simulation a été réalisée en utilisant l'inventaire d'émissions proposé par le projet AEROCOM. Les champs d'oxydants utilisés proviennent d'une simulation réalisée avec un schéma chimique complet intégré dans MOCAGE. De la même manière que les émissions, ces champs d'oxydants sont représentatifs de l'année 2000 et ne varient pas d'une année sur l'autre. Les forçages météorologiques proviennent des analyses opérationnelles du CEPMMT pour toute la période de simulation. Cette simulation est présentée plus en détail dans le paragraphe 3.1.

3.2.1 Antarctique

Les hautes latitudes Sud constituent une région du globe peu exposée aux émissions anthropiques de soufre pour plusieurs raisons : 90 % des émissions anthropiques de SO₂ se font dans l'hémisphère Nord et elles sont négligeables au sud de 45°S (Benkovitz et al., 1996). Les aérosols soufrés n'ayant une durée de vie dans l'atmosphère que de quelques jours, ils sont lessivés avant de pouvoir être transportés jusqu'en Antarctique. L'atmosphère de l'Antarctique, très stable de part la présence de la calotte polaire, empêche les dépressions de pénétrer au dessus de la calotte. Cumulé à la présence d'un courant atmosphérique circumpolaire, cet aspect limite fortement le transport d'aérosols vers le continent Antarctique.

3.2.1.1 Bilan annuel des puits et sources de soufre

La figure 3.16 présente, pour un domaine allant de 60°S à 90°S, le bilan des puits et des sources des différents composés soufrés moyenné sur les 6 ans de simulation. Dans cette région du globe, les sources de soufre sont presque exclusivement naturelles, issues des émissions de DMS du phytoplancton océanique (21.23 mg[S].m⁻².an⁻¹). Les émissions de SO₂ sont très minoritaires (1.71 mg[S].m⁻².an⁻¹). Les échanges avec l'extérieur, en violet sur la figure 3.16, sont faibles, ce qui confirme que les hautes latitudes sud sont bien isolées du reste du globe en ce qui concerne le transport d'aérosols. Un flux de sulfate est tout de même relevé (4.16 mg[S].m⁻².an⁻¹), mais il est orienté vers l'extérieur du domaine, ce qui montre que la région Antarctique n'est non seulement pas touchée par le transport de sulfate d'origine anthropique, mais que le sulfate issu de l'oxydation du DMS au dessus des océans des hautes latitudes sud est en partie transporté plus au Nord.

Le DMS est oxydé en SO₂, lui-même oxydé rapidement en sulfate ; ces deux composés gazeux ont respectivement des temps de résidence dans l'atmosphère de 3.34 et 0.6 jours. Ces temps de résidence sont relativement courts devant celui du sulfate, égal à 23 jours dans nos simulations. Le temps de résidence du sulfate est beaucoup plus long en Antarctique qu'en Europe, où il est égal à 7.2 jours (cf. Figure 3.5.a) dans nos simulations. A l'échelle globale, le temps de résidence du sulfate est estimé à 6 jours en moyenne par les modèles ayant participé au projet AEROCOM (Textor et al., 2007). En revanche, le temps de vie du sulfate peut être plus long aux hautes latitudes. Harder et al. [2000] observent, en mesurant les concentration et les flux de soufre, une durée de vie du sulfate égale à 12 jours ± 8 jours au pôle Sud. La valeur calculée dans notre simulation, plus forte en Antarctique qu'en Europe, semble toutefois trop élevée.

Contrairement au domaine Europe, où 25 % de la production chimique de sulfate est assurée par des réactions en phase gazeuse et 75 % par des réactions en phase aqueuse, seulement 2 % du sulfate est produit en phase gazeuse (0.40 mg[S].m⁻².an⁻¹) et le reste est produit en phase aqueuse (19.27 mg[S].m⁻².an⁻¹). Cela est dû au fait que la principale source de soufre – le DMS – est émis au dessus des océans, région où l'atmosphère est assez humide pour favoriser les réactions en phase aqueuse. Le principal puits pour les sulfate reste le dépôt humide (12.7 mg[S].m⁻².an⁻¹), cinq fois plus actif que le dépôt sec (2.42 mg[S].m⁻².an⁻¹). En moyenne, la charge de sulfate modélisée au cour de cette simulation est de 1.22 mg[S].m⁻².

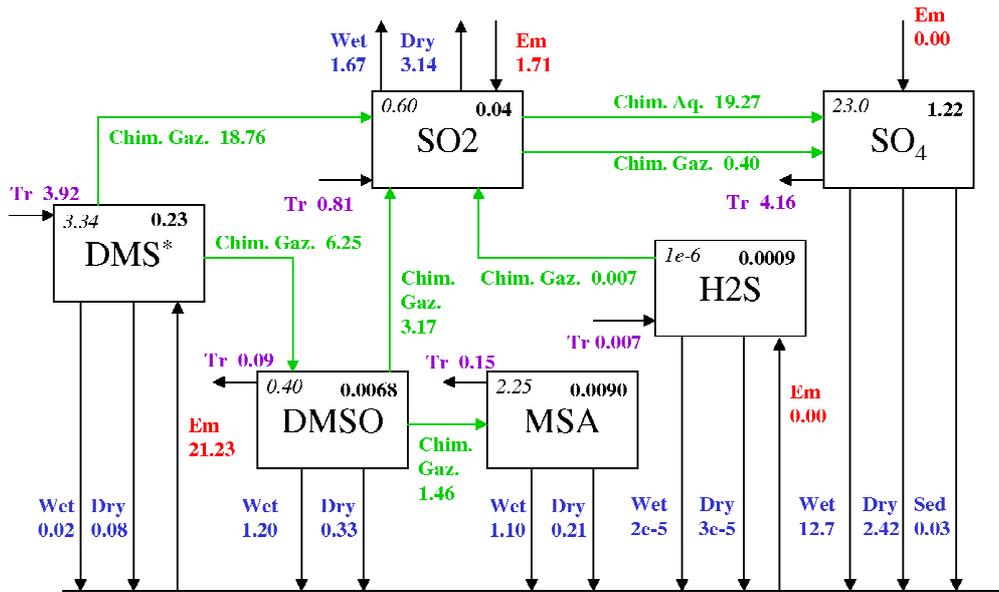


Figure 3.16: Bilan des puits et sources de sulfate simulés par MOCAGE sur l'Antarctique (60°S à 90°S). Les charges ($\text{mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}$) sont renseignées en gras dans le côté droit des cadres où figurent les noms de chaque composé. La durée de vie (en jours) est renseignée en italique dans le côté gauche des cadres. Les flux ($\text{mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{an}^{-1}$) sont indiqués dans le sens correspondant à chaque flèche. Chim. Aq. : Chimie Aqueuse, Chim. Gaz. : Chimie Gazeuse, Wet : dépôt humide, Dry : dépôt sec, Sed : sédimentation, Tr : Transport vers l'extérieur ou l'intérieur du domaine selon le sens de la flèche.

3.2.1.2 Cycle saisonnier du sulfate

La figure 3.17 présente l'évolution de la charge de sulfate aux hautes latitudes sud. La simulation étant initialisée avec des concentrations en soufre nulles, on considère que les trois premiers mois sont une période de mise à l'équilibre, qui n'est pas pris en compte dans l'analyse. La charge de sulfate aux hautes latitudes sud présente un cycle saisonnier marqué, passant en moyenne de $0.5 \text{ mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}$ en Juillet à $2.5 \text{ mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}$ en Février.

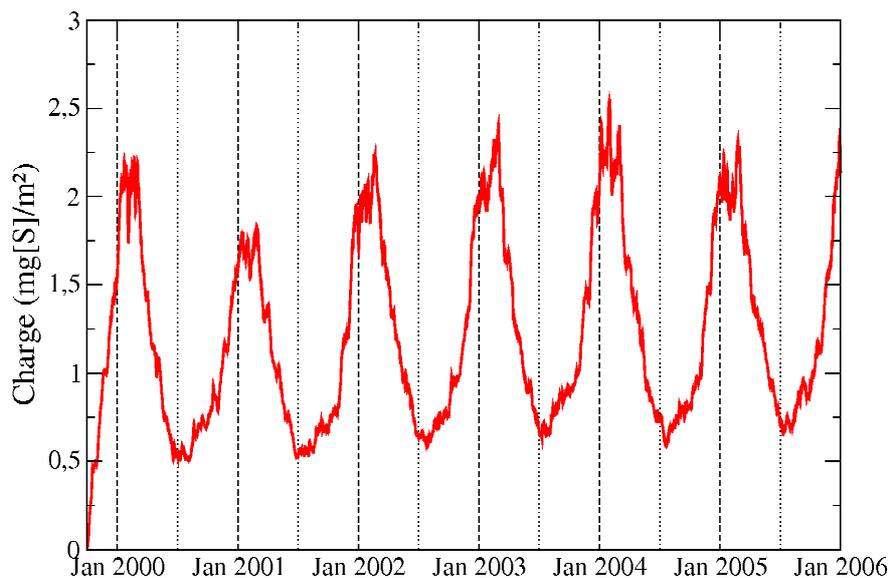


Figure 3.17 : Evolution de la charge de sulfate simulée par MOCAGE entre le 1^{er} octobre 1999 et le 1^{er} Janvier 2006 en Antarctique (Domaine couvrant les latitudes supérieures à 60°S).

Le cycle saisonnier simulé de sulfate est induit par les différents flux positifs et négatifs décrits dans la figure 3.18. Les émissions de DMS utilisées dans notre simulation ont un fort cycle saisonnier dans cette région passant d'une valeur quasiment nulle durant l'hiver austral à une valeur moyenne de $0.22 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ au sud de 60°S en février (courbe non présentée ici). Cela implique une forte saisonnalité de la production chimique de sulfate, passant d'une valeur hivernale inférieure à $0.02 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ à une valeur estivale supérieure à $0.15 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$. Le sulfate produit est évacué essentiellement par le lessivage et par transport vers l'extérieur du domaine considéré dans cette étude. Le dépôt humide peut atteindre des valeurs de $0.1 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ lors des périodes où la concentration en sulfate est élevée. Le transport de sulfate depuis la région Antarctique vers les régions plus au Nord atteint $0.8 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ durant l'été austral. Durant l'hiver austral, ce flux change de sens, mais il est alors très faible, ne dépassant pas $0.02 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ en moyenne hebdomadaire.

Le cycle annuel de la charge de sulfate en Antarctique peut varier d'une année sur l'autre : Ainsi, le maximum de charge moyenne de sulfate atteint 2.5 mg[S].m^{-2} en février 2004, alors qu'il n'atteint que 1.6 mg[S].m^{-2} en février 2001. Rappelons que la simulation analysée ici a été réalisée avec les mêmes émissions de DMS et les mêmes climatologies d'oxydants d'une année sur l'autre. La variabilité constatée est donc uniquement liée à la variabilité de la température, de la pression, de l'humidité et des courants atmosphériques. La différence de charge atmosphérique en sulfate entre février 2001 et février 2004 est essentiellement expliquée par la différence de production chimique en phase aqueuse (Fig. 3.18), qui atteint $0.13 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ la première année et $0.16 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$ la deuxième année.

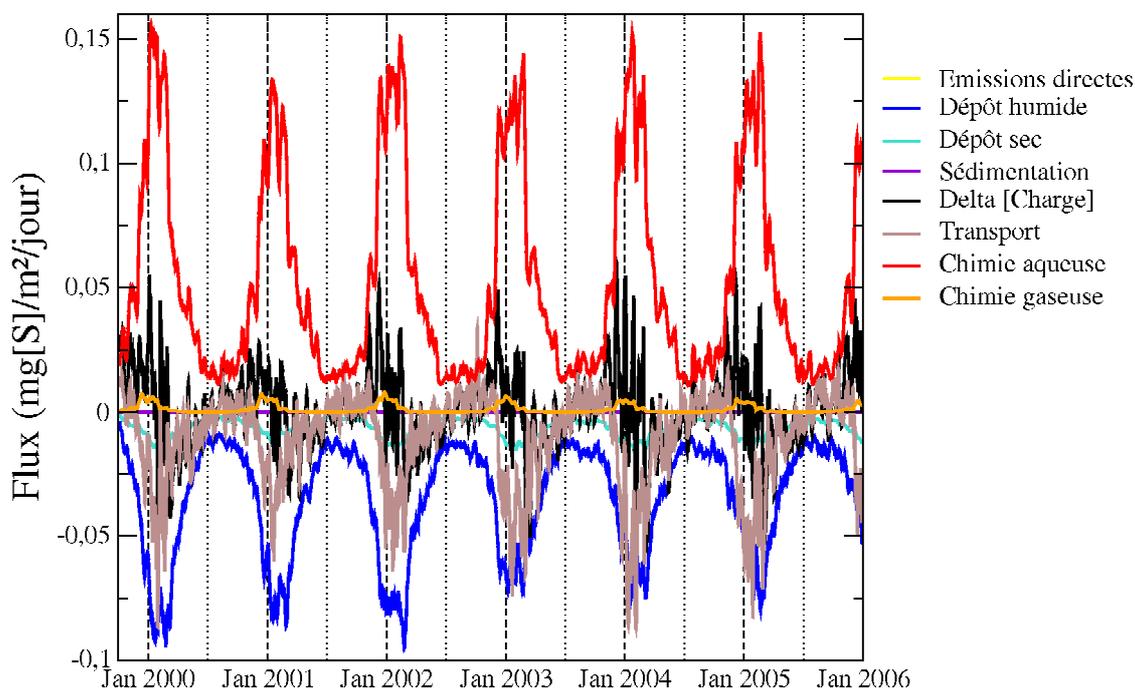


Figure 3.18 : Sources et puits de sulfate ($\text{mg[S].m}^{-2}.\text{day}^{-1}$) moyennés aux hautes latitudes Sud (entre 60°S et le pôle Sud) sur la période 2000 à 2005 (moyennes glissantes sur une semaine appliquées aux sortie de modèles à pas de temps égal à 6h00).

La figure 3.19 présente les moyennes saisonnières de sulfate calculées par MOCAGE au sud de 60°S de latitude. De fortes variations de colonne de sulfate sont simulées sur les océans ainsi que sur les côtes du continent Antarctique. En été austral, on relève des colonnes de sulfate allant jusqu'à 2.5 mg[S].m⁻², alors que ces valeurs descendent jusqu'à 0.25 mg[S].m⁻² en hiver. Sur une bande de 300 km de large le long des côtes Antarctiques, la colonne de sulfate est fortement influencée par les émissions de DMS. En revanche, en s'éloignant de 300 km à l'intérieur du continent Antarctique, la colonne de sulfate ne dépasse pas 1 mg[S].m⁻². La concentration de sulfate est quasiment nulle sur toute la hauteur de l'atmosphère durant l'hiver austral (JJA, Fig. 3.20). En été (DJF), près des côtes Antarctique et au-dessus des océans, elle présente des valeurs moyennes en surface de l'ordre de 0.4 à 0.6 µg[S].m⁻³. On relève à cette période de l'année une concentration de sulfate maximale aux alentours de 920 hPa (600 m), de l'ordre de 0.5 à 0.7 µg[S].m⁻³, puis la concentration diminue avec l'altitude, pour atteindre des valeurs de l'ordre de 0.3 µg[S].m⁻³ à 700 hPa (3 km) et des valeurs proches de zéro à la tropopause.

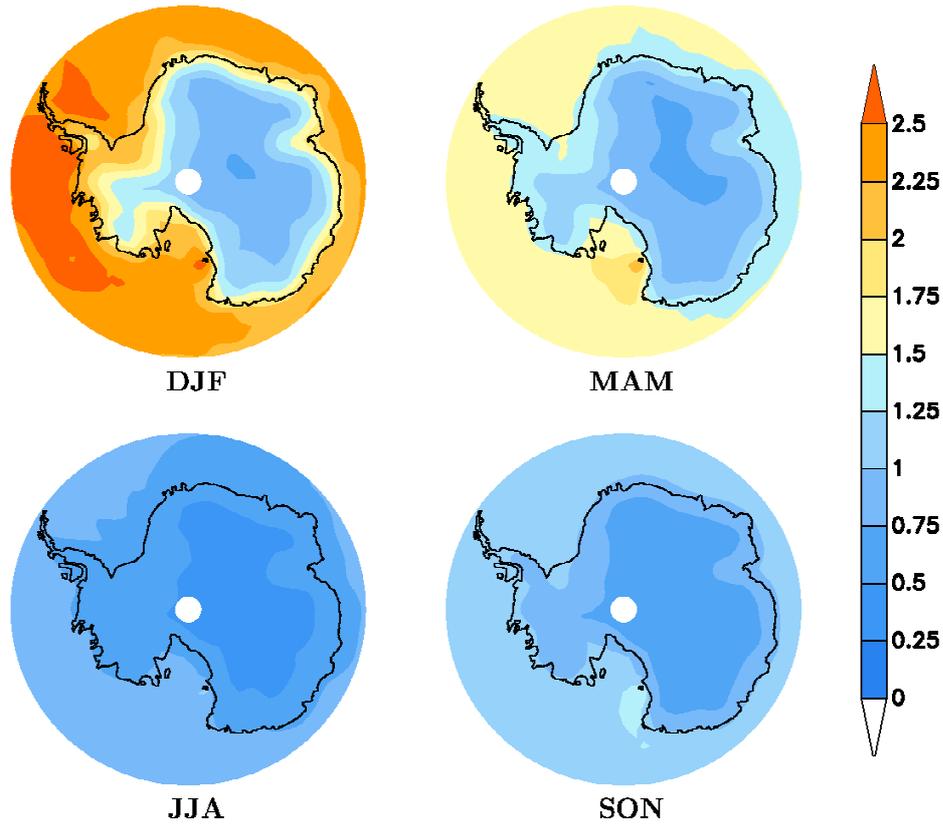


Figure 3.19 : Moyennes saisonnières des colonnes de sulfate ($\text{mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}$) entre 60°S et 90°S. Champs simulés par MOCAGE moyennés sur la période 2000-2005 pour Décembre-Janvier-Février (DJF), Mars-Avril-Mai (MAM), Juin-Juillet-Août (JJA) et Septembre-Octobre-Novembre (SON).

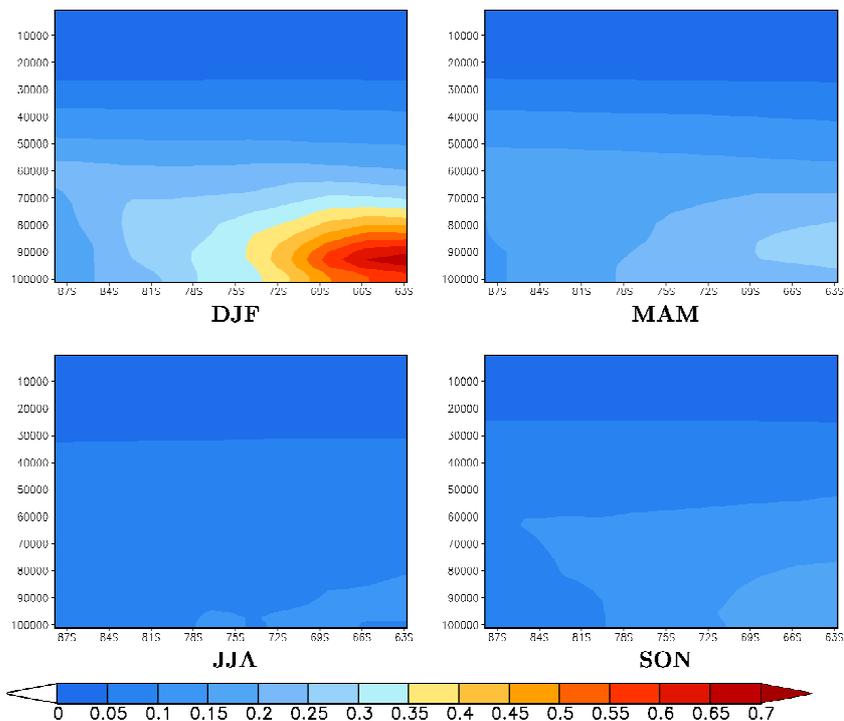


Figure 3.20 : Moyennes zonales saisonnières des concentrations de sulfate ($\mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$) entre 60°S et 90°S. Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulés par MOCAGE.

3.2.1.3 Comparaison avec les observations CESOA

Les concentrations des différents composés soufrés simulés par MOCAGE sur la période 2000-2005 sont confrontées aux observations du CESOA à la station Dumont d'Urville (DDU) dans la figure 3.21. Le cycle saisonnier observé du sulfate est bien reproduit par le modèle, mais les concentrations simulées sont deux à trois fois trop élevées. Cette surestimation peut s'expliquer soit par une défaillance dans la représentation des puits et des sources soit par une mauvaise représentation du transport. Les concentrations de sulfate en surface simulées par MOCAGE sont surestimées en Europe (partie 3.1.4) mais d'un facteur plus faible, rarement supérieur à 2. En Europe cette surestimation des concentrations semble due à une sous-estimation des flux de lessivage (partie 3.1.4). Les flux de dépôt sont vraisemblablement sous-estimés de la même manière aux hautes latitudes Sud. Cependant, la représentation simplifiée des processus chimiques en jeu est très probablement aussi en cause.

La concentration atmosphérique en DMS est forte durant l'été austral et faible en hiver, à cause des basses températures qui limitent les émissions biogéniques et de la glace de mer qui les inhibe entièrement sur de grandes surfaces océaniques (Preunkert, 2007). Le cycle saisonnier du DMS est très variable d'une année à l'autre dans les observations à DDU : Les maxima estivaux peuvent atteindre 300 pptv (février 2002, Fig. 3.21) ou seulement 80 pptv (février 2003). Kettle et Andreae (2000) suggèrent que les variations d'émissions de DMS en surface sont liées essentiellement aux variations des émissions océaniques, et peu aux conditions météorologiques, ce qui explique la forte variabilité interannuelle du cycle saisonnier de DMS observée à DDU. Les simulations présentées ici ont été réalisées avec des émissions identiques d'une année sur l'autre, ce qui implique une variabilité interannuelle plus faible que dans la réalité. Sur la période 2000-2005, le maximum estival de concentration en DMS simulé à DDU varie entre 500 et 300 pptv. Cette variation est induite uniquement par les différences des conditions météorologiques d'une année à l'autre. Les concentrations de DMS simulées sont régulièrement sur-estimées en été (février 2000, 2001 et 2003), mais elles sont parfois représentatives de la réalité (février 2005) et parfois sous-estimées (février 2002). Une analyse précise des émissions utilisées dans le modèle serait nécessaire pour comprendre les processus qui déterminent la concentration de l'atmosphère Arctique en DMS.

Un lien évident existe entre la concentration observée de DMS et celle de DMSO, tant au niveau du cycle saisonnier que des variations interannuelles. Ce lien est assez bien reproduit dans le modèle (Fig. 3.21), et l'aptitude du modèle à représenter le DMSO semble identique à celle qu'il a à reproduire les concentrations de DMS.

Contrairement aux concentrations de sulfate qui sont surestimées, les concentrations de MSA sont sous-estimées d'un facteur 4 à 5 par le modèle. Le cycle annuel de sulfate est clairement relié au cycle annuel de DMS, mais sa variabilité interannuelle n'apparaît pas clairement reliée à celle du DMS, que ce soit dans le modèle ou dans les observations.

D'autres confrontations avec des observations sont nécessaires, tant au niveau des concentrations que des flux de lessivage des différentes espèces, pour apprécier les processus dont la représentation doit être optimisée dans le modèle. Castebrunet (2007) présente des tests de sensibilité sur la chimie du soufre aux hautes latitudes sud. En modifiant le schéma chimique décrivant le cycle du soufre – très proche de celui qui est utilisé dans notre modèle –, elle relève un changement de la concentration de sulfate à la surface de l'Antarctique allant jusqu'à 50 % par endroits. Des modifications similaires dans notre représentation de la chimie du soufre ne suffiraient *a priori* pas à corriger les concentrations de sulfate, trop élevées d'un facteur 2 à 3. Dans le futur, il faudra surtout apporter des améliorations à la représentation du dépôt sec et du dépôt humide. Le lessivage des particules de sulfate est en effet sous-estimé en Europe, et il semble l'être encore plus en Antarctique. Dans une version future du code

MOCAGE, la paramétrisation du lessivage ne devra pas être limitée aux nuages et aux précipitations en phase aqueuse comme c'est le cas actuellement, puisque le sulfate est aussi lessivé par les précipitations solides dans la réalité.

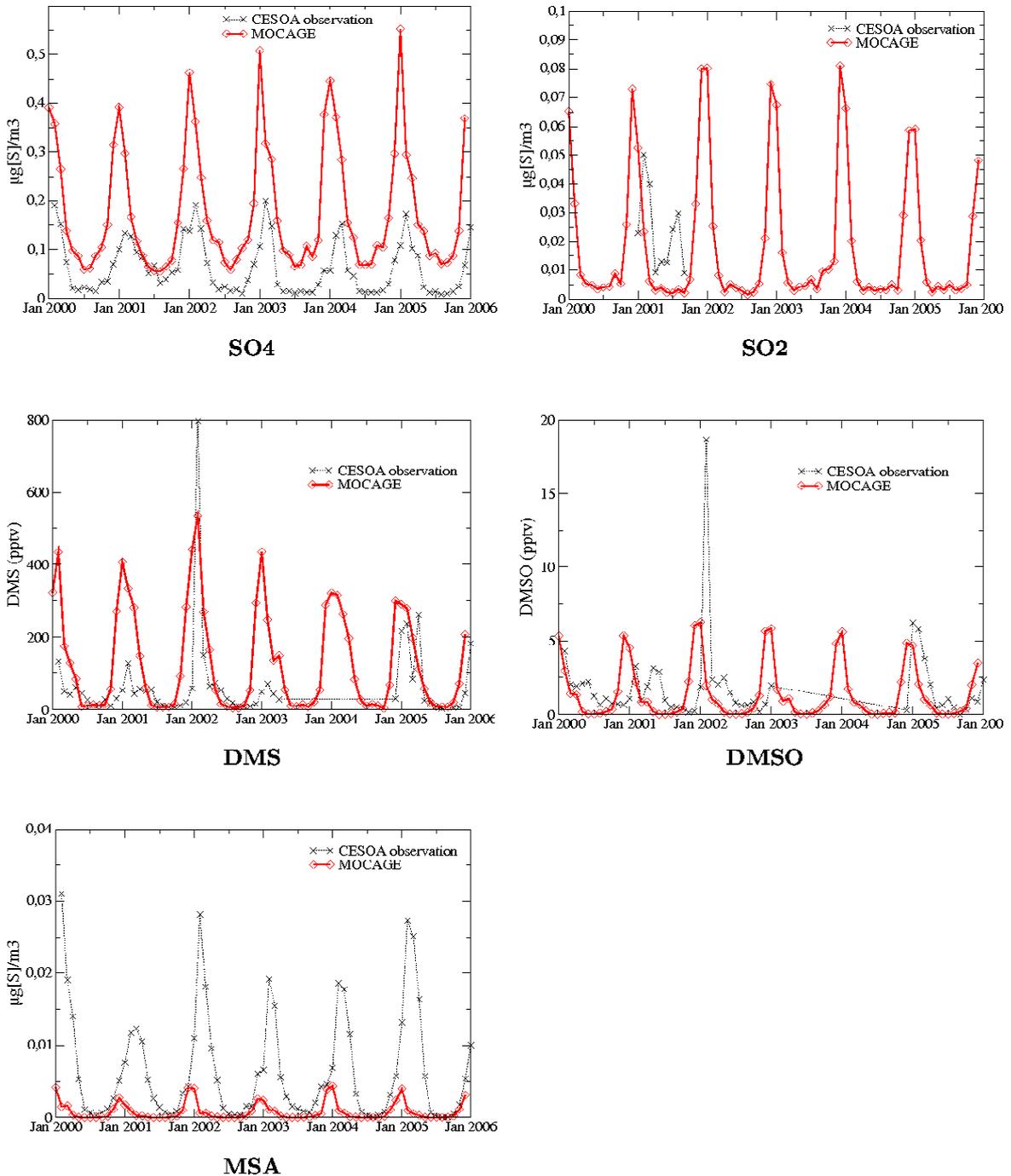


Figure 3.21 : Evolution des concentrations de sulfate ($\mu\text{g}[\text{SO}_4].\text{m}^{-3}$), de SO_2 ($\mu\text{g}[\text{SO}_2].\text{m}^{-3}$), de DMS (pptv), de DMSO (pptv) et de MSA ($\mu\text{g}[\text{MSA}].\text{m}^{-3}$) sur la période 2000-2005 à Dumont d'Urville ($66^{\circ}40'S$, $140^{\circ}E$). Moyennes mensuelles simulées par MOCAGE en rouge et observées en noir dans le cadre du projet CESOA.

3.2.2 Arctique

L'Arctique a longtemps été considérée comme une région non polluée. Cependant, dans les années 1950, des pilotes d'avion ont constaté la présence de polluants dans l'atmosphère arctique, réduisant fortement la visibilité (Greenaway, 1950). Depuis, différents travaux ont montré que la combinaison de fortes émissions de polluants dans l'hémisphère Nord et des conditions météorologiques particulières en Arctique, notamment à la fin de l'hiver et au début du printemps, impliquent la présence de fortes concentrations de polluants dans l'atmosphère (e.g. Shaw, 1995, Stohl, 2006). A partir de la simulation que nous avons réalisée sur la période 2000-2005, nous tentons ici d'estimer la concentration en aérosols de l'atmosphère Arctique. Après une analyse du cycle du soufre dans cette région, nous présentons une évaluation du transport de carbone-suie et de poussières minérales vers les hautes latitudes Nord.

3.2.2.1 Bilan annuel des puits et sources de soufre

La figure 3.22 présente un bilan du cycle du soufre aux latitudes supérieures à 60°N. Les émissions de DMS ($5.92 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) sont environ deux fois plus faibles que les émissions anthropiques de SO₂ ($11.50 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) dans cette région. Le SO₂ est issu à part à peu près égales d'émissions anthropiques ($11.50 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) et du transport depuis les régions plus au Sud ($9.05 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$). Le sulfate provient à 30 % de l'oxydation du SO₂ par voie aqueuse ($18.43 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) et à 70% du transport de polluants depuis l'Europe, l'Amérique du Nord et l'Asie ($37.97 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$). Sur un flux total de sulfate de $58 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$ entrant dans l'atmosphère Arctique, seul 10% est issu des émissions naturelles de DMS, alors que le reste provient de sources anthropiques. 20% du sulfate est évacué de l'atmosphère par dépôt sec ($11.7 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) et 80 % par dépôt humide. Le rapport entre dépôt sec et humide, $1/5^{\text{ième}}$ est équivalent à celui modélisé en Antarctique, alors qu'il était égal à un peu moins d'1/3 en Europe.

Shaw (1995) montre que c'est avant tout la faible efficacité des puits de dépôt sec et humide qui explique la présence d'une brume de pollution en Arctique : La faible humidité de l'atmosphère implique de faibles taux de lessivage. De plus, les fortes inversions thermiques associées à la forte stratification de l'atmosphère en hiver et au début du printemps limitent le dépôt sec. Dans nos simulations, le temps de résidence du sulfate est de 7 jours en Europe (partie 3.1.3), et il est plus long aux hautes latitudes avec 23 jours en Antarctique et 27 jours en Arctique. Comme dans l'étude de Shaw (1995), l'importance des temps de résidence dans notre simulation s'explique aussi par la faible efficacité des puits d'aérosols. On doit garder à l'esprit cependant que le temps de résidence du sulfate est certainement sur-estimé, le lessivage étant sous-estimé dans notre simulation (cf. partie 3.1.3).

Stohl (2006) analyse une simulation du transport de BC vers les régions Arctique. Il définit l'âge de l'air arctique comme la durée moyenne que les particules d'air ont passé dans la troposphère au nord de 75°N. Cette durée varie entre 6 et 10 jours en janvier et entre 13 et 17 jours en juillet, mais augmente de 50 % en calculant l'âge de l'air à partir de 70°N, atteignant des valeurs supérieures à 20 jours. Les fortes valeurs d'âge de l'air en Arctique expliquent l'accumulation de polluants dans ces régions, et sont synonymes de temps de résidence de ces polluants élevés, ce que nous retrouvons dans les simulations réalisées avec MOCAGE.

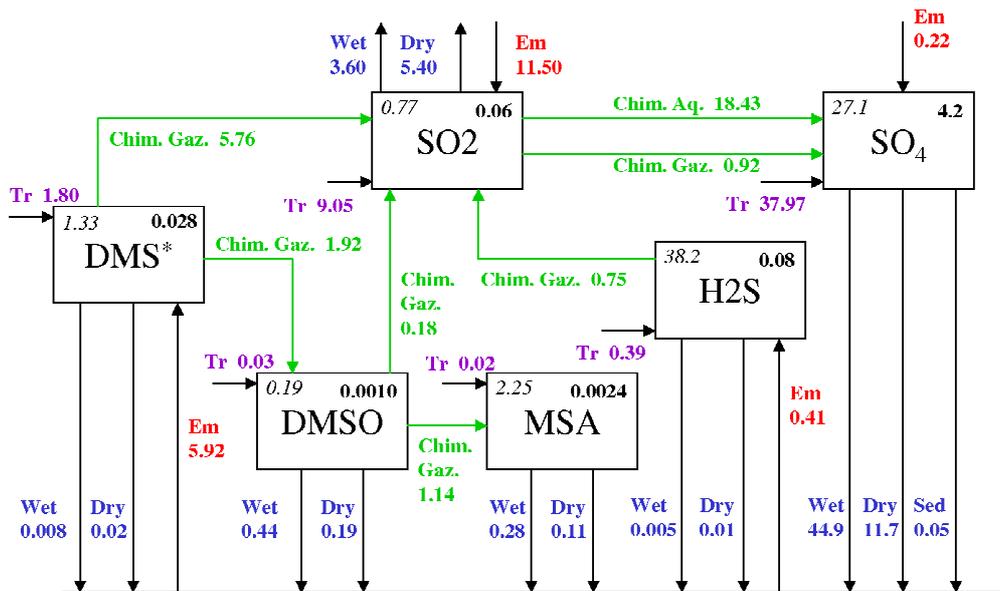


Figure 3.22 : Bilan des puits et sources de sulfate simulés par MOCAGE sur l'Arctique (60°N à 90°N). Les charges (mg[S].m⁻²) sont renseignées en gras dans le côté droit des cadres où figurent les noms de chaque composé. Le temps de résidence (en jours) est renseignée en italique dans le côté gauche des cadres. Les flux (mg[S].m⁻².an⁻¹) sont indiqués dans le sens correspondant à chaque flèche. Chim. Aq. : Chimie Aqueuse, Chim. Gaz. : Chimie Gazeuse, Wet : dépôt humide, Dry : dépôt sec, Sed : sédimentation, Tr : Transport vers l'extérieur ou l'intérieur du domaine selon le sens de la flèche.

3.2.2.2 Cycle saisonnier du sulfate

Le cycle saisonnier de la charge de sulfate est marqué en Arctique, celle-ci passant de valeurs estivales de l'ordre de 2 mg[S].m⁻² à des valeurs hivernales variant entre 5 et 7 mg[S].m⁻² selon les années (figure 3.23). La charge en sulfate est plus variable en Arctique qu'en Antarctique : d'une année sur l'autre, le maximum annuel varie jusqu'à 30%. De plus, ce maximum apparaît à des mois différents d'une année sur l'autre : il apparaît par exemple au mois de février en 2002, et au mois de juin en 2005. Cette variabilité s'explique par le fait que la source majoritaire de sulfate au dessus de 60 °N est le transport depuis les régions polluées situées plus au sud. Ce transport a des variations saisonnières importantes : il est bien plus conséquent durant les six mois de octobre à mai que durant le reste de l'année (figure 3.24). Il présente cependant une variabilité très marquée d'une semaine à l'autre, et peut prendre des valeurs hebdomadaires moyennes oscillant entre 0.3 mg[S].m⁻².jour⁻¹ et -0.05 mg[S].m⁻².jour⁻¹.

La deuxième source de sulfate en Arctique est l'oxydation de SO₂ par voie aqueuse. Elle a un cycle saisonnier moins marqué que celui du transport, atteignant un maximum de l'ordre de 0.1 mg[S].m⁻².jour⁻¹ à la fin de l'hiver ou au début du printemps et un minimum de 0.025 mg[S].m⁻².jour⁻¹ apparaissant en automne. Deux facteurs pilotent ce cycle : Les émissions de DMS en Arctique, quasiment nulles en décembre, augmentent progressivement jusqu'à une valeur maximale au mois de juin (figure non présentée ici). Ce DMS est lui-même rapidement oxydé en SO₂. Par ailleurs, le transport de SO₂ depuis les zones polluées vers les hautes latitudes Nord atteint, de la même manière que le sulfate, des valeurs maximales à la fin de l'hiver et au début du printemps. Ces deux facteurs induisent un cycle saisonnier marqué de la charge en SO₂ (figure non présentée ici), explication directe du cycle saisonnier de la réaction d'oxydation en phase aqueuse du SO₂.

Dans nos simulations, la chimie en phase gazeuse est très peu active dans les régions Arctique, puisqu'elle ne représente environ que 5% de la production chimique totale de sulfate. La figure 3.24 montre qu'elle n'est quasiment pas active de novembre à mai, période où les concentrations de SO₂ peuvent être tout de même importantes, mais où les températures trop basses limitent fortement ces réactions chimiques. En été, elle atteint des valeurs de l'ordre de 0.015 mg[S]m⁻².jour⁻¹.

Les flux de dépôt sec et humide sont proportionnels à la charge de sulfate dans le modèle que nous avons utilisé. Cependant, cette corrélation n'apparaît pas clairement dans les figures 3.23 et 3.24. Le dépôt sec semble lié au transport de sulfate depuis les régions plus au Sud. Il présente cependant un cycle saisonnier bien plus régulier que ce dernier, atteignant des maxima de 0.08 mg[S]m⁻².jour⁻¹ en janvier ou février et des minima de l'ordre de 0.01 mg[S]m⁻².jour⁻¹ au mois d'août. Le cycle saisonnier du dépôt sec, contrairement à celui de la charge en sulfate, est relativement similaire d'une année sur l'autre dans la simulation analysée. Le dépôt humide ne présente pas de cycle saisonnier marqué en Arctique. Sa moyenne hebdomadaire évolue entre 0.05 et 0.2 mg[S]m⁻².jour⁻¹ dans notre simulation. En Antarctique, le flux de lessivage varie fortement au cours de l'année, en suivant les variations de la charge en sulfate (figure 3.18). En Europe, ce lien est aussi évident, mais de manière moins marquée (figure 3.5.b), alors qu'il ne l'est pas en Arctique (figure 3.24). Les flux de lessivage sont dépendants de la charge en aérosol, mais aussi de l'humidité de l'atmosphère. L'Arctique est une région avec de très faibles précipitations (Stohl, 2006). Au cours des 6 ans de simulations, on relève une moyenne de 0.74 mm.jour⁻¹ pour les précipitations liquides et 0.55 mm[eq.eau].jour⁻¹ pour les précipitations solides. Les précipitations sont surtout localisées dans la partie sud du domaine que nous avons considérée dans notre étude (60°N à 90°N). Les précipitations liquides, seules précipitations prises en compte pour le lessivage du sulfate dans nos simulations, sont maximales en août, avec une valeur de 1.4 mm.jour⁻¹ en moyenne, alors qu'elles ne dépassent pas 0.6 mm.jour⁻¹ en moyenne en hiver et au printemps, période où la concentration atmosphérique en sulfate est forte. Le décalage des cycles annuels de la charge en sulfate et des précipitations liquides implique que le flux de lessivage n'ait pas de variations saisonnières importantes. De plus, la grande variabilité des conditions météorologiques et du transport des aérosols depuis les régions polluées augmente encore la variabilité du flux de lessivage en Arctique.

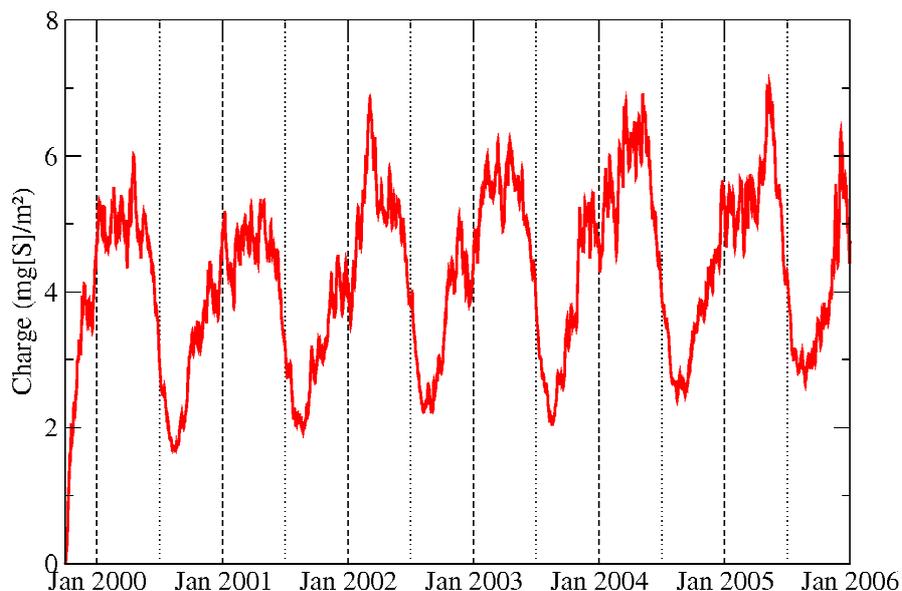


Figure 3.23 : Evolution de la charge de sulfate entre le 1^{er} octobre 1999 et le 1^{er} Janvier 2006 en Arctique (Domaine couvrant les latitudes Nord supérieures à 60°N).

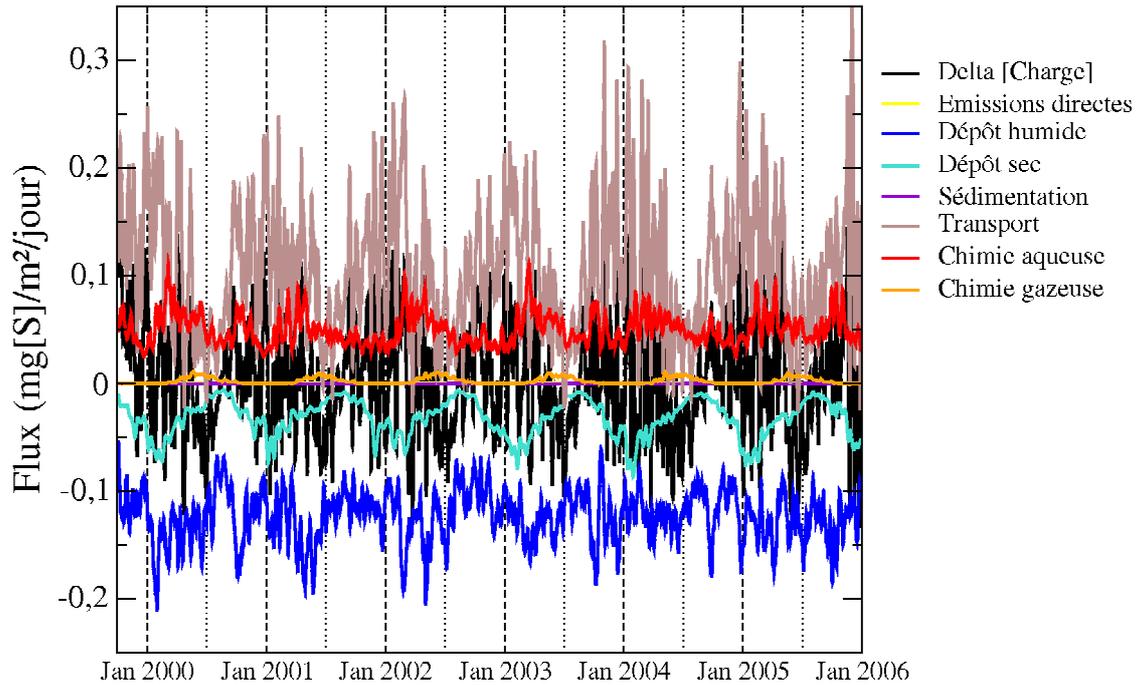


Figure 3.24 : Sources et puits de sulfate ($\text{mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{day}^{-1}$) moyennés aux hautes latitudes Nord (entre 60°N et le pôle Nord) sur la période 2000 à 2005 (moyennes glissantes sur une semaine appliquées aux sorties de modèles à pas de temps égal à 6h00).

La figure 3.25 montre les distributions saisonnières de colonne de sulfate simulées par MOCAGE. Sur l'océan Arctique, la colonne de sulfate reste supérieure à 3 mg[S]m^{-2} tout au long de l'année. Les régions où l'atmosphère est la plus concentrée en sulfate sont les régions situées au nord de l'Europe et de l'Asie, avec des colonnes de l'ordre de 3 à 4 mg[S]m^{-2} en été et en automne, et de 5 à 7 mg[S]m^{-2} en hiver et au printemps. Au Nord des océans Pacifique et Atlantique, ainsi qu'au Nord de l'Amérique, les charges en sulfate sont plus faibles, variant de 2 à 3 mg[S]m^{-2} en été et en automne et de 3.5 à 5 mg[S]m^{-2} en hiver et au printemps. Du fait de la présence de reliefs élevés et de vents forts empêchant l'accumulation d'aérosols, l'atmosphère groenlandaise contient moins de sulfate. On y relève en été et en automne des colonnes de 2 mg[S]m^{-2} à l'intérieur des terres et 2.5 mg[S]m^{-2} au dessus des côtes. En hiver, son atmosphère reste peu polluée, avec des colonnes de sulfates équivalentes à celles simulées en automne, alors qu'au printemps, elles peuvent atteindre 3 mg[S]m^{-2} au dessus de l'île, et 4 à 4.5 mg[S]m^{-2} sur les côtes.

Des surfaces de température potentielle constante forment des « dômes » au dessus de l'océan Arctique, avec des valeurs minimales dans la couche limite atmosphérique (Klonecki et al., 2003). La présence de ces « dômes » isole la basse troposphère du reste de l'atmosphère par une barrière appelée « front Arctique » par les météorologistes. Pour être transporté vers l'Arctique, l'air pollué doit avoir des températures potentielles aussi basses que celle rencontrées en arctique. C'est pour cette raison qu'une grande part de la pollution de l'hémisphère Nord ne peut pas pénétrer dans l'atmosphère arctique, et que les émissions dans le Nord de l'Eurasie sont les principales sources alimentant les brumes arctiques. Stohl (2006) analyse le transport du carbone-suie vers l'Arctique et décrit plusieurs chemins possibles pour le transport de polluants vers l'Arctique : des modes de transport dans les basses couches, concernant des masses d'air froid, pénétrant sous les « dômes », et d'autres modes, concernant les masses d'air dans les zones d'émissions qui montent en altitude avant d'être transportées vers les hautes latitudes nord par des altitudes plus élevées.

La figure 3.26 montre les moyennes zonales saisonnières de sulfate. Celles-ci semblent cohérentes avec la description des deux modes de transport de polluants vers l'Arctique réalisé par Stohl (2006). En DJF, le transport des sulfates vers l'Arctique se fait par les deux modes de transport, d'où un maximum de concentration dans le profil vertical de l'atmosphère arctique relativement bas, à 900 hPa environ (1km). Ce maximum atteint $0.9 \mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$. A cette saison, on relève des accumulations de sulfate plus fortes au dessus du pôle que dans la bande 70°N - 80°N . Au printemps (MAM), les températures augmentent dans les zones d'émissions, et c'est plutôt le deuxième mode de transport qui est privilégié, d'où un maximum de concentration dans le profil vertical plus haut en altitude, relevé à 800 hPa (1.8 km) dans notre simulation. A cette période, ainsi qu'en été (JJA) et jusqu'en automne (SON), on constate la présence d'une zone bien moins polluée en surface qu'en altitude. On relève par exemple à 80°N au printemps des concentrations en sulfate deux fois plus faibles en surface ($0.4 \mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$) qu'à 850 hPa (1.5 km d'altitude) ($0.8 \mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$).

Le processus de lessivage étant *a priori* sous-estimé de manière générale dans nos simulations (cf parties 3.2.1.3 et 3.1.4), on aurait pu s'attendre à ce que les concentrations de sulfate simulées soient surestimées. Cependant, plusieurs campagnes d'observation montrent que les concentrations de sulfate dans la basse troposphère atteignent facilement des valeurs de l'ordre de quelques $\mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$ pendant les périodes de « brume arctique ». Yamagata et al. (2009) observent durant la campagne de printemps ASTAR2004 à Ny-Alesund (Svalbard) des concentrations en sulfate de 0.7 à $2.3 \mu\text{g}[\text{S}].\text{m}^{-3}$. Lors d'une campagne d'observations en avion, Scheuer et al. (2003) mesurent dans l'Arctique nord américain des concentrations en sulfate du même ordre de grandeur au cours des six premiers mois de l'année 2000. Ils observent au début de l'hiver de fortes concentrations de sulfate dans les deux premiers kilomètres de l'atmosphère. A la fin de l'hiver, les concentrations augmentent aussi en altitude; au cours du printemps, les concentrations diminuent d'abord en surface, induisant un maximum de concentration entre 800 et 850 hPa (entre 2 et 5 km d'altitude), puis sur toute la hauteur. Ils expliquent cette diminution de concentration par l'augmentation des flux de lessivage, les précipitations étant de plus en plus fortes avec l'arrivée de l'été aux hautes latitudes Nord. Cette augmentation du flux de lessivage se retrouve dans nos simulations, mais de manière peu marquée (cf. figure 3.24). L'évolution du profil vertical de sulfate au cours des 6 premiers mois de l'année 2000 observée par Scheuer et al. (2003) se retrouve bien dans notre simulation (fig. 3.26).

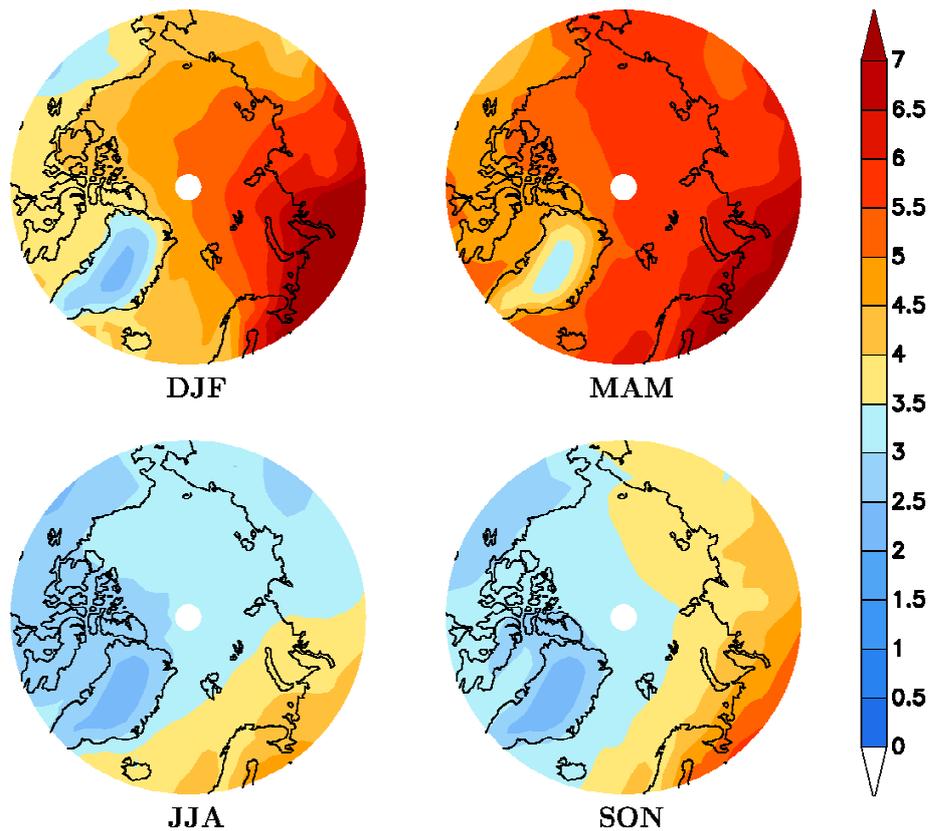


Figure 3.25 : Moyennes saisonnières des colonnes de sulfate (mg[S].m^{-2}) entre 60°N et 90°N . Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulés par MOCAGE.

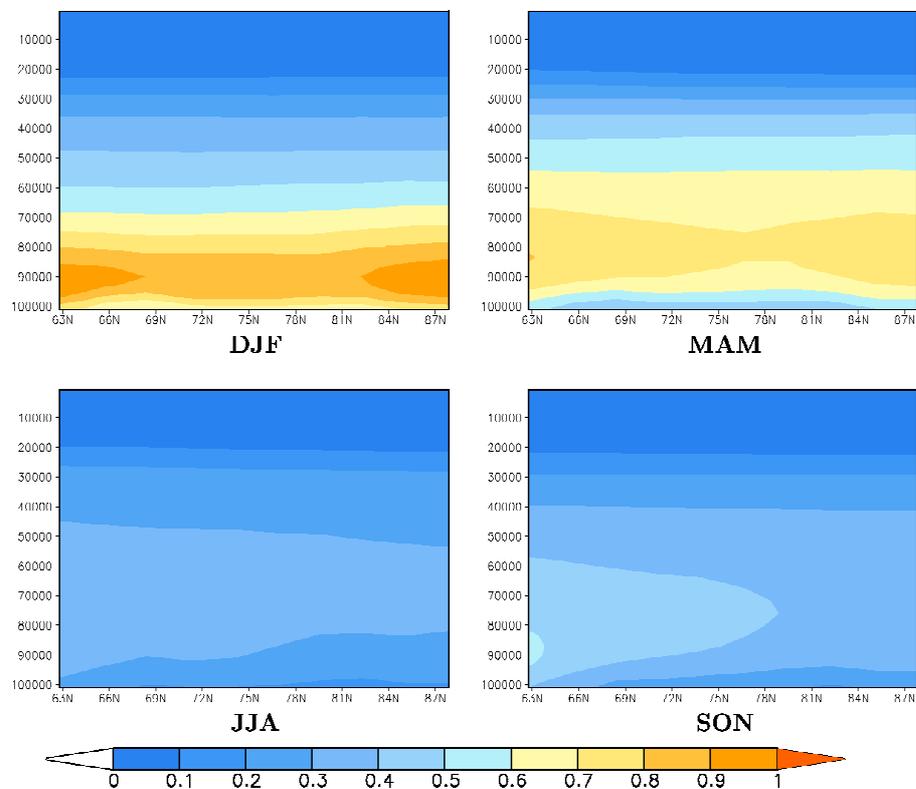


Figure 3.26 : Moyennes zonales saisonnières des concentrations de sulfate ($\mu\text{g[S].m}^{-3}$) entre 60°N et 90°N . Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulés par MOCAGE.

3.2.2.3 Transport des autres aérosols vers la région Arctique

Si on n'observe pas de carbone-suie et très peu de poussières désertiques en Antarctique, ces aérosols sont en revanche transportés en quantité non négligeable vers l'atmosphère Arctique. Le carbone-suie observé en Arctique provient en majeure partie des émissions des feux de forêts boréales, mais aussi, dans une moindre mesure, des émissions anthropiques (Stohl, 2006). On observe aussi en Arctique des poussières minérales provenant notamment des déserts d'Asie centrale et d'Afrique (Pacyna et Ottar, 1986).

Sur la période 2000-2005, la charge moyenne de carbone-suie simulée par MOCAGE en Arctique est de 0.34 mg.m^{-2} (figure 3.27). Sur le domaine considéré dans cette étude, la principale source de cet aérosol est le transport depuis les régions plus au sud ($2.37 \text{ mg.m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$) suivi en second par les émissions directes ($1.5 \text{ mg.m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$). En ce qui concerne les poussières désertiques, leur charge moyenne simulée par MOCAGE est de 16.2 mg.m^{-2} , et leur seule source en Arctique provient du transport depuis les déserts d'Afrique et d'Asie ($152 \text{ mg.m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$). Pour ces deux types d'aérosols, le dépôt humide est à peu près deux fois plus efficace que le dépôt sec en Arctique. A cause des faibles précipitations et de la forte stabilité de l'atmosphère, notamment en hiver et au printemps, le temps de résidence de ces aérosols est bien plus long en Arctique qu'ailleurs sur le reste du globe. S'il n'est que de quelques jours à l'échelle globale, en Arctique, il est égal à 32 jours pour le carbone-suie et 39 jours pour les poussières désertiques dans notre simulation.

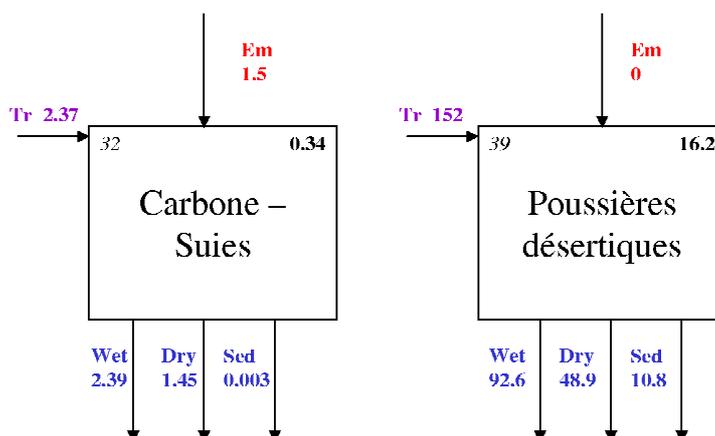


Figure 3.27: Bilan des puits et sources de carbone-suie et de poussières désertiques simulés par MOCAGE sur l'Arctique (60°N à 90°N). Les charges (mg.m^{-2}) sont renseignées en gras dans le côté droit des cadres où figurent les noms de chaque composé. La durée de vie (en jours) est renseignée en italique dans le côté gauche des cadres. Les flux ($\text{mg.m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) sont indiqués dans le sens correspondant à chaque flèche. Wet : dépôt humide, Dry : dépôt sec, Sed : sédimentation, Em : Emissions, Tr : Transport vers l'extérieur ou l'intérieur du domaine selon le sens de la flèche.

La charge en carbone-suie n'est jamais nulle au cours de l'année en Arctique. Elle est relativement faible en automne (SON) et en hiver (DJF), dépassant rarement 0.25 mg.m^{-2} et 0.35 mg.m^{-2} respectivement pour ces deux saisons au pôle Nord. Elle est maximale au printemps. A cette saison, de la même manière que pour le sulfate, les émissions anthropiques eurasiennes sont transportées vers le Nord, induisant des colonnes de carbone-suie de 0.4 mg.m^{-2} au pôle Nord, 0.5 mg.m^{-2} sur les bords de l'océan Arctique et 0.25 à 0.35 mg.m^{-2} au dessus de la calotte groenlandaise. En été, la charge en carbone-suie ne diminue pas beaucoup malgré l'augmentation des précipitations. On observe à cette période des émissions plus fortes

au nord de l’Eurasie et de l’Amérique, liées aux feux de forêts, induisant des concentrations de l’ordre de 0.3 à 0.4 mg.m^{-2} au dessus de l’océan Arctique, et de 0.25 à 0.35 mg.m^{-2} au dessus de la calotte groenlandaise.

Les figures 3.28 et 3.29 présentent les moyennes saisonnières de la concentration atmosphérique en carbone-suie simulée aux hautes latitudes Nord (entre 60°N et 90°N). En hiver (DJF), le carbone-suie est transporté vers l’Arctique par les deux modes de transport décrits précédemment (Stohl, 2006, cf. partie 3.2.2.2). Le profil vertical de concentration de BC présente alors un maximum vers 850 hPa (1.5 km) de l’ordre de 0.04 $\mu\text{g.m}^{-3}$ et des valeurs en surface de l’ordre de 0.02 $\mu\text{g.m}^{-3}$. Au printemps, c’est plutôt le deuxième mode de transport qui est privilégié : le BC issu des activités industrielles en Eurasie prend de l’altitude avant d’être transporté vers l’Arctique. A cette saison, les concentrations en BC sont élevées jusqu’à la tropopause où elles peuvent atteindre 0.02 $\mu\text{g.m}^{-3}$, alors qu’un maximum d’environ 0.045 $\mu\text{g.m}^{-3}$ est simulé aux environ de 700 hPa (3 km d’altitude). En été (JJA), les fortes émissions liées au feux de forêt induisent de fortes concentrations de BC jusqu’à 70°N. En revanche, à cause de la présence du front arctique, ces masses d’air chargées en BC ont du mal à être transportées plus au Nord. A cette saison, les concentrations en BC au pôle Nord sont quasiment nulles en surface, mais présentent tout de même un maximum de l’ordre de 0.03 $\mu\text{g.m}^{-3}$ à 600hPa (4 km).

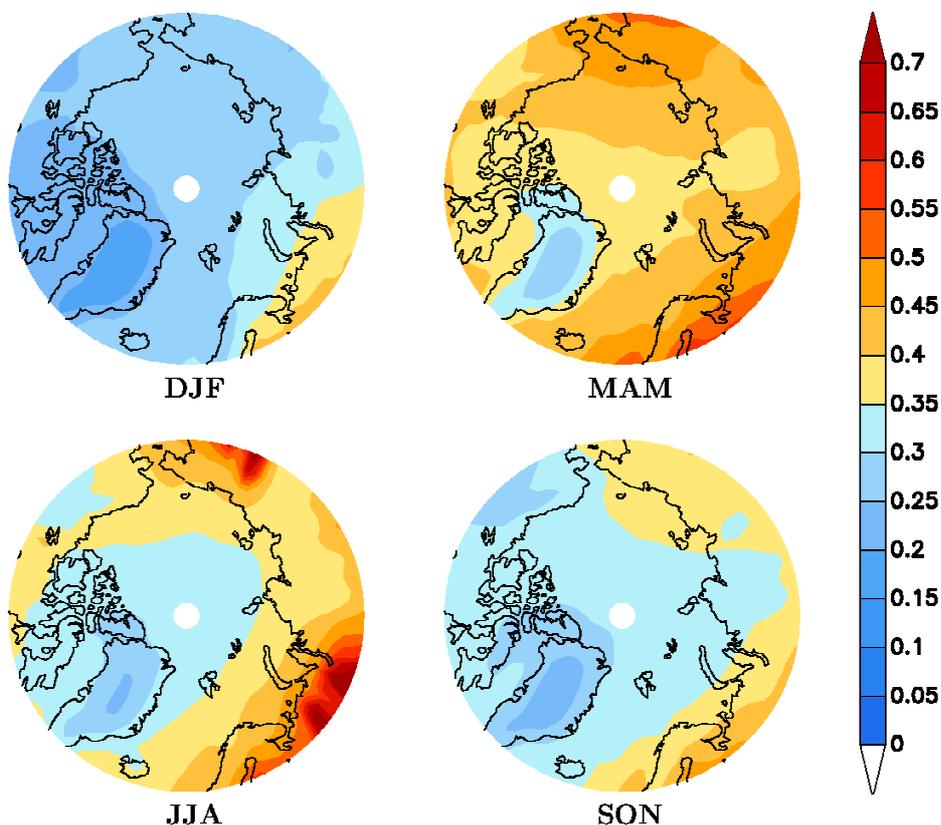


Figure 3.28 : Moyennes saisonnières des colonnes de carbone-suie (mg.m^{-2}) entre 60°N et 90°N. Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulées par MOCAGE.

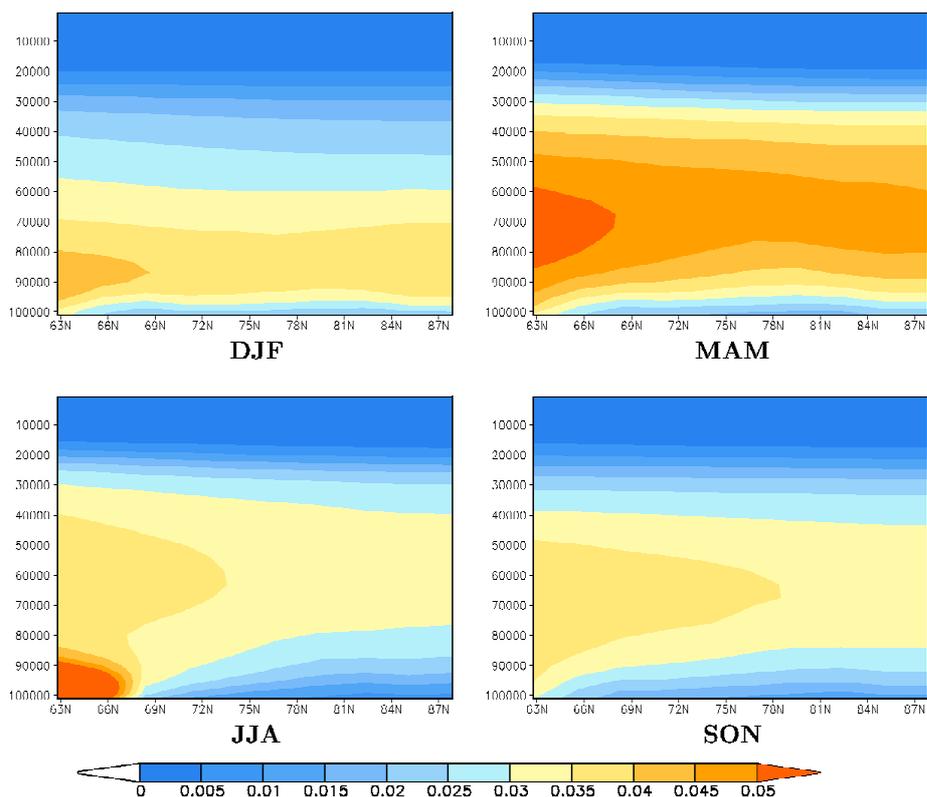


Figure 3.29: Moyennes zonales saisonnières des concentrations de carbone-suie ($\mu\text{g.m}^{-3}$) entre 60°N et 90°N . Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulés par MOCAGE.

Les figures 3.30 et 3.31 présentent les moyennes saisonnières de la concentration en poussières minérales simulée aux hautes latitudes Nord. La charge en poussières minérales de l'atmosphère arctique est minimale au cours de l'été, période durant laquelle elle varie entre 5 et 10 mg.m^{-2} , et elle prend des valeurs plus fortes entre la fin de l'automne et le milieu du printemps, jusqu'à 25 mg.m^{-2} au large des côtes européennes et jusqu'à 30 mg.m^{-2} au large des côtes asiatiques et américaines (figure 3.29). Les sources provenant des déserts asiatiques semblent alimenter plus fortement l'atmosphère arctique en poussières désertiques que celles des déserts d'Afrique et du Moyen Orient, entre autres parce qu'elles sont situées plus au nord. L'atmosphère groenlandaise est peu chargée en poussières en été et en automne, avec des concentrations variant entre 5 et 10 mg.m^{-2} durant ces saisons. En revanche, ces valeurs peuvent augmenter jusqu'à 20 mg.m^{-2} au printemps, sur quasiment l'ensemble de l'île.

Les moyennes zonales de la figure 3.30 suggèrent que c'est le deuxième mode de transport décrit auparavant (cf. partie 3.2.2.2) qui est majoritaire tout au long de l'année pour les poussières désertiques : après leurs émission au dessus des déserts de l'hémisphère Nord, ces aérosols montent en altitude et sont transportés vers l'atmosphère arctique en passant par les hautes couches de la troposphère, entre 700 et 250 hPa (entre 3 et 10 km). Au printemps (MAM) arctique, les concentrations en poussières sont ainsi faibles en surface (en moyenne $1 \mu\text{g.m}^{-3}$), maximales aux alentours de 550 hPa (5 km d'altitude) (jusqu'à $3 \mu\text{g.m}^{-3}$) et significatives jusqu'à la tropopause, avec des concentrations pouvant aller jusqu'à $1.5 \mu\text{g.m}^{-3}$ à 250 hPa (10 km d'altitude). En été (JJA), les concentrations de poussières sont quasiment nulles près de la surface en Arctique. Notons une accumulation simulée par le modèle au niveau du pôle Nord en hiver (DJF) avec un maximum de $2.5 \mu\text{g.m}^{-3}$ en moyenne à 800 hPa (2 km d'altitude) environ (fig. 3.31). Ce type d'accumulation est vraisemblablement lié au très faible taux de précipitations à cette latitude.

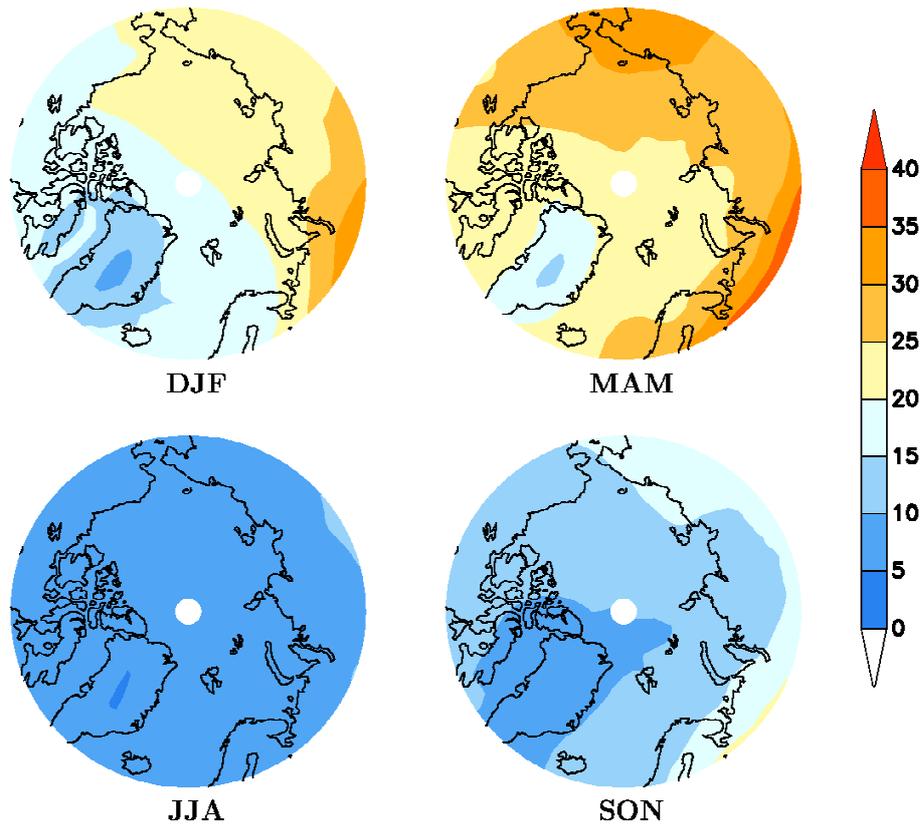


Figure 3.30 : Moyennes saisonnières des colonnes de poussières minérales (mg.m^{-2}) entre 60°N et 90°N . Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulés par MOCAGE.

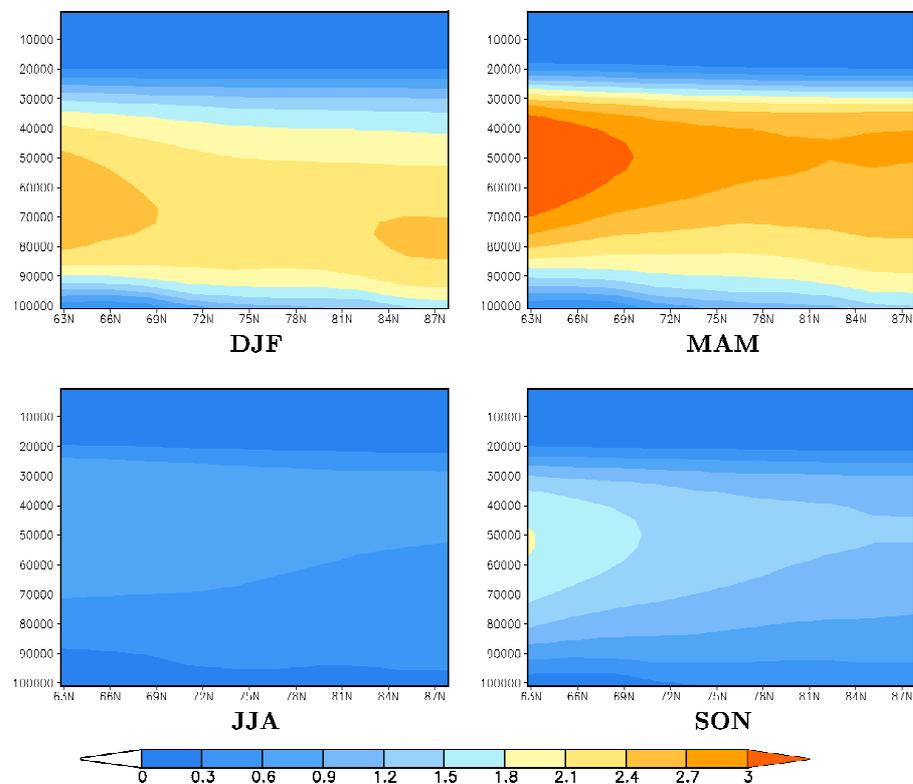


Figure 3.31 : Moyennes zonales saisonnières des concentrations de poussières minérales ($\mu\text{g.m}^{-3}$) entre 60°N et 90°N . Champs moyennés sur la période 2000-2005 simulés par MOCAGE.

3.3 Optimisation de la représentation du lessivage

3.3.1 Incertitudes sur la modélisation du sulfate atmosphérique

Les incertitudes sur la modélisation du cycle du soufre sont en partie liées à une simplification des processus chimiques en jeu dans les paramétrisations utilisées (Seinfeld et Pandis, 2006). De nombreuses réactions chimiques ne sont pas prises en compte dans le schéma chimique que nous avons utilisé. Cependant, dans les régions où les émissions anthropiques sont importantes, la chimie du soufre est relativement bien décrite par les modèles de chimie-transport. Cette assertion se vérifie moins aux hautes latitudes où certaines réactions impliquant des composés soufrés sont peu connues (Castebrunet, 2007). Une autre incertitude dans la simulation du cycle du soufre provient du caractère hygroscopique des aérosols sulfatés qui interagissent fortement avec l'eau nuageuse. Dans le modèle utilisé ici, le grossissement des particules de sulfates en milieu humide n'est pas pris en compte. Par contre, comme cela a été présenté dans le deuxième chapitre, une paramétrisation de l'adsorption du sulfate par les gouttelettes d'eau nuageuses a été intégrée au modèle. La représentation de ce processus, basée sur des lois empiriques, est discutée dans cette section.

L'étude réalisée dans la partie 3.1 montre que les concentrations de sulfate simulées en surface en Europe sont surestimées par rapport aux observations. Le tableau 3.2 décrit la charge et les principaux flux de sulfate simulés par MOCAGE à l'échelle globale pour l'année 2000, ainsi que les moyennes de ces mêmes variables simulées par l'ensemble des modèles qui ont participé à l'exercice AEROCOM.

	Charge (Tg[S])	Emission+ Production chimique (Tg[S].an ⁻¹)	Dépôt sec (Tg[S].an ⁻¹)	Dépôt humide (Tg[S].an ⁻¹)	Temps de résidence (jours)
MOCAGE	1.15	43.97	6.64	37.19	9.3
Moyenne et intervalle des modèles AEROCOM	0.7 [0.3-1.2]	54 [30-80]	6.8 [1-13]	47 [28-116]	4.5 [5.5 2.5]

Tableau 3.2 : Charge (Tg[S]), puits et sources (Tg[S].an⁻¹) de sulfate modélisé par MOCAGE (avec la configuration initiale du lessivage) et par les modèles ayant participé à l'exercice AEROCOM.

La charge globale simulée par MOCAGE (1.15 Tg[S]) est au-dessus de la moyenne des charges simulées par l'ensemble des modèles AEROCOM. Elle se trouve proche de la borne supérieure de l'intervalle des charges simulées par l'ensemble de ces modèles. La production chimique de sulfate simulée par MOCAGE (43.97 Tg[S].an⁻¹) est inférieure à la moyenne des modèles AEROCOM (54 Tg[S].an⁻¹), ce n'est donc pas ce terme qui explique la surestimation de la charge en sulfate modélisée par MOCAGE. Le dépôt sec est du même ordre de grandeur dans MOCAGE et dans les autres modèles AEROCOM. Le dépôt humide est en revanche plus faible dans les simulations MOCAGE (37.19 Tg[S].an⁻¹) que dans celles des modèles AEROCOM en moyenne (47 Tg[S].an⁻¹). Cette faible valeur du dépôt humide explique la surestimation du temps de séjour dans nos simulations (9.3 jours) par rapport à la valeur

relevée en moyenne dans les autres modèles (4.5 jours). Notons que la sous-estimation des flux de lessivage dans nos simulations a déjà été mise en évidence dans les analyses régionales réalisées dans ce troisième chapitre. On peut voir dans le tableau 3.2 que l'intervalle des flux de lessivage modélisé par les différents modèles AEROCOM est très important (28 à 116 $Tg[S].an^{-1}$ selon les modèles). Les spécialistes de la modélisation du sulfate savent à ce propos que le flux de lessivage peut facilement servir d'ajustement pour que la charge globale de sulfate simulée par un modèle atteigne une valeur raisonnable. Nous avons décidé de réaliser des tests de sensibilité pour tenter d'optimiser la représentation du flux de lessivage dans le modèle MOCAGE.

3.3.2 Description du test de sensibilité

La manière dont sont lessivés les aérosols dans le modèle, et en particulier les sulfates, est présentée dans la partie 3.1.2.4. L'efficacité du flux de lessivage dans les nuages dépend du taux de formation de précipitations et du contenu en eau liquide des nuages d'une part, et de l'efficacité de transfert des aérosols vers le milieu précipitant d'autre part. Les flux de lessivage dans un modèle dépendent donc en grande partie de la manière dont sont simulées les évolutions des nuages dans ce modèle, ou dans celui qui fournit les forçages météorologiques. La sensibilité des flux et charges d'aérosols aux forçages météorologiques est discutée dans le quatrième chapitre. On s'intéresse ici à la manière dont est modélisée l'efficacité de transfert (ϵ) des sulfates vers le milieu précipitant. Deux simulations ont été réalisées en modifiant ce paramètre ϵ (figure 3.32), qui dépend du contenu en eau liquide des nuages (LWC), comme l'ont observé Kasper-Giebl et al. (2000).

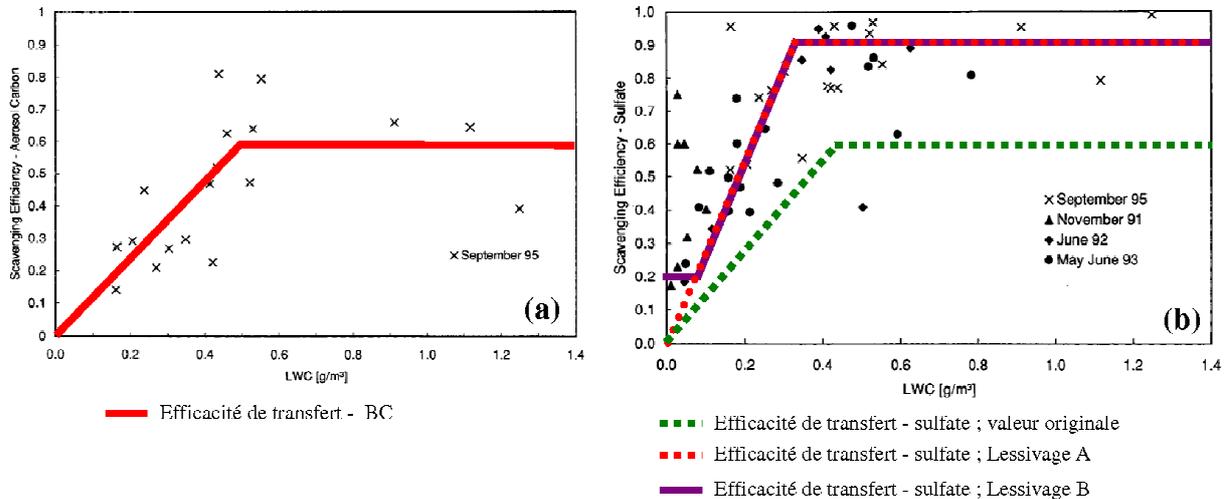


Figure 3.32 : Efficacité de lessivage du Carbone-suie(a) et du sulfate (b) dans des nuages en surfusion au Mont Sonnblick (adaptation de Kasper-Giebl et al., 2000). Les symboles noirs sont les observations réalisées par les auteurs de l'étude à différentes dates. Les droites de différentes couleurs correspondent aux valeurs de coefficients choisies pour différents tests de sensibilité dans des simulations avec MOCAGE.

Dans la version initiale du modèle, ϵ était représentée de manière identique pour tous les aérosols (figure 3.32 ; (a) droite rouge : efficacité pour BC ; (b) droite en pointillés verts : efficacité pour le sulfate). Un premier ajustement sur les observations réalisées par Kasper-Giebl et al. (2000) a été réalisé (courbe en pointillés rouges sur la figure 3.32.b). Cette correction a diminué de 30% la charge globale moyenne simulée pour le sulfate. C'est cette

configuration du lessivage qui a été utilisée pour réaliser la simulation analysée au cours de ce troisième chapitre. Cette configuration est dénommée « Lessivage A » dans la suite du texte.

Cependant, les analyses réalisées dans les parties 3.1 et 3.2 ont montré que malgré cet ajustement, la charge en sulfate reste surestimée, que ce soit dans des régions polluées (Europe) où dans des régions où le cycle du soufre n'est pas perturbé par les activités anthropiques (Antarctique). La figure 3.33 montre que la valeur moyenne de LWC ne dépasse pas 0.1 g.m^{-3} dans les premières centaines de mètres de l'atmosphère. Au dessus, entre 950 et 700 hPa (entre 500m et 2.5 km), elle varie entre 0.2 et 1 g.m^{-3} entre 60°S et 60°N , mais prend des valeurs plus faibles aux hautes latitudes. De manière générale, et en particulier en Europe et aux hautes latitudes où nous avons analysé le cycle du soufre, le LWC est souvent faible (i.e. inférieur à 0.2 g.m^{-3}). Par ailleurs, lors des observations réalisées par Kasper-Giebl et al. (2000), les valeurs mesurées de ϵ n'étaient jamais inférieures à 0.2, même pour de faibles valeurs de LWC. Un test de sensibilité dans lequel la valeur minimale de ce paramètre est fixée à 0.2 a donc été réalisé (cf. courbe violette, figure 3.32.b). La configuration de ce test est désignée par « Lessivage B » dans la suite du texte.

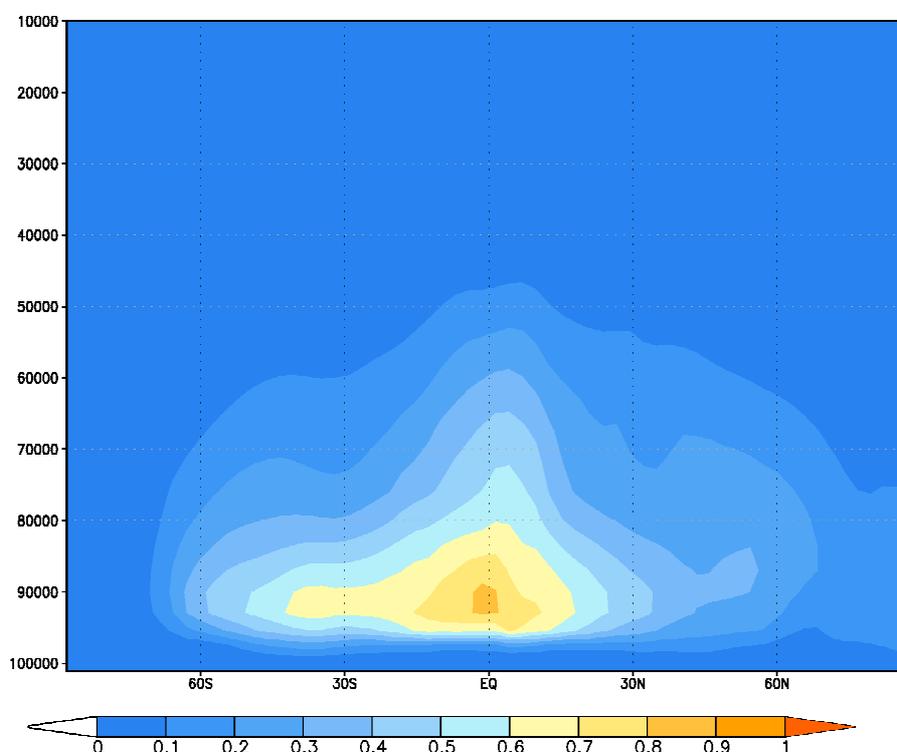


Figure 3.33 : Moyenne zonale annuelle de la concentration des nuages en eau liquide (LWC, en g.m^{-3}) Simulation sur l'année 2000 réalisée avec MOCAGE et les forçages météorologiques du modèle IFS du CEPMMT

Par ailleurs, la représentation du dépôt humide a été intégrée de manière précise dans MOCAGE pour les espèces gazeuses (Josse, 2004). Elle est décomposée en différentes composantes, représentées par des paramétrisations physiques qui ont été largement validées pour les espèces gazeuses : le lessivage sous les nuages stratiformes et convectifs (Liu et al., 2001), le lessivage dans les nuages stratiformes (Giordi et Chameides, 1986) et convectifs (Mari et al., 2000). Ces paramétrisations ont été mises en place pour les espèces gazeuses en premier lieu, mais elles sont classiquement utilisées dans les modèles pour décrire le dépôt humide des aérosols très solubles comme le sulfate, qui suivent grossièrement le même comportement physique que l'acide nitrique (HNO_3). Ce type de paramétrisation est basé sur

des concepts physiques, alors que celle que nous avons utilisée pour décrire le lessivage des aérosols (Langner et Rodhe, 1991) est basée sur une relation empirique, calée sur l'observation du transfert des aérosols vers l'eau liquide contenue dans l'atmosphère. Dans cette dernière approche, plusieurs processus qui sont pris en compte dans la paramétrisation du dépôt humide pour les gaz ont été négligés dans le modèle MOCAGE. C'est le cas du lessivage par les précipitations solides ainsi que de la réévaporation sous les nuages des espèces lessivées. Un troisième test de sensibilité a donc été réalisé, dans une configuration dénommée « Lessivage C », où le sulfate est lessivé de la même manière que les gaz.

Les trois configurations « Lessivage A, B et C » ont été utilisées pour réaliser trois simulations de 15 mois chacune. Pour chacune de ces simulations, les trois premiers mois représentent un temps de mise à l'équilibre, et seuls les 12 mois de l'année 2000 sont analysés.

3.3.3 Sensibilité de la charge de sulfate aux différentes version du lessivage

Le changement de version de la paramétrisation du lessivage implique de très fortes variations de la charge atmosphérique du sulfate (Tableau 3.3) quel que soit le domaine considéré. En passant de la version A à la version B du lessivage, la charge globale passe de 1.15 Tg[S] à 0.85 Tg[S]. Cette diminution est la conséquence d'une augmentation du flux de lessivage, qui passe de 37.19 Tg[S].an⁻¹ à 37.68 Tg[S].an⁻¹. Notons que cette augmentation du flux de lessivage est faible lorsque l'on relève sa valeur brute, mais que ce changement est significatif si on le rapporte à l'évolution de la charge de sulfate : la quantité lessivée augmente alors que la charge est nettement diminuée. La charge en sulfate est encore plus faible dans la configuration C (0.63 Tg[S]), avec un flux de lessivage plus intense encore (38.57 Tg[S].an⁻¹). L'augmentation du dépôt humide est légèrement compensée par une diminution du dépôt sec de 5 % pour le passage de la configuration A à B et de 15 % pour le passage de la configuration A à C. Le temps de résidence du sulfate à l'échelle globale est de 9.5 jours dans la configuration A, de 7 jours dans la configuration B et de 5.2 jours dans la configuration C. Que ce soit dans une atmosphère polluée (Europe et Arctique) ou dans une atmosphère non polluée (Antarctique), on constate une diminution de la charge de 30% en passant de la configuration A à B et de 50% en passant de la configuration A à C. Dans les deux cas, et quel que soit le domaine considéré, le temps de résidence est également réduit : En Europe, le temps de résidence passe de 7.2 jours (configuration A) à 5.5 jours (configuration B) et à 4.2 jours (configuration C). En Antarctique, il passe de 23 jours (configuration A) à 12.2 jours (configuration B) et à 7.8 jours (configuration C). En Arctique, il passe de 27.1 jours (configuration A) à 6.9 jours (configuration B) et à 6.2 jours (configuration C).

Sur le domaine Antarctique considéré ici (60°S à 90°S), le passage à la version B du lessivage a un fort impact sur le temps de résidence du sulfate. Le passage à la version C réduit encore bien plus le temps de résidence. Cela est vraisemblablement lié à la prise en compte du lessivage par les précipitations solides. Cet aspect semble primordial dans un domaine qui comprend la calotte Antarctique, où les précipitations sont presque exclusivement solides. En revanche, sur l'Arctique (60°N à 90°N), le passage de la configuration A à la configuration B et C entraînent des diminutions du temps de résidence du sulfate du même ordre de grandeur (de 27,1 jours dans la version A à 6.9 jours et 6.2 jours respectivement dans les versions B et C). Cela montre que négliger le lessivage par les précipitations solides en Arctique est moins pénalisant qu'en Antarctique. Cependant, dans cette région à faibles précipitations – et à faible valeur de LWC -, imposer ϵ à rester supérieur à 0.2 a un impact très fort sur l'efficacité du dépôt humide.

Test	Lessivage A				Lessivage B				Lessivage C			
Domaine	Charge	Dépôt humide	Dépôt sec	Temps séjour	Charge	Dépôt humide	Dépôt sec	Temps séjour	Charge	Dépôt humide	Dépôt sec	Temps séjour
Europe	0.64	15.28	5.58	7.2	0.48	16.22	5.26	5.5	0.36	16.98	4.76	4.2
Antarct.	0.035	0.42	0.071	23	0.024	0.62	0.06	12.2	0.014	0.60	0.04	7.8
Arctique	0.12	1.45	0.36	27.1	0.08	2.09	0.30	6.9	0.050	1.58	0.20	6.2
Global	1.15	37.19	6.64	9.5	0.85	37.68	6.17	7	0.63	38.57	5.30	5.2

Tableau 3.3 : Charge ($Tg[S]$), dépôt humide et dépôt sec ($Tg[S].an^{-1}$) et temps de résidence du sulfate simulés par MOCAGE avec les configurations de lessivage A, B et C (voir texte). Les valeurs sont données pour les domaines Europe, Antarctique, Arctique et global.

3.3.4 Confrontation des simulations avec des observations de surface

Après avoir analysé les variations globales de la charge en sulfate et du dépôt humide associées à des changements de la paramétrisation du lessivage, on cherche maintenant à savoir si ces variations se retrouvent en surface. De plus, les résultats des simulations sont comparés avec des observations de surface dans cette section, pour déterminer quelle version du lessivage permet d'obtenir les concentrations en sulfate les plus réalistes. Deux confrontations entre modèle et observations sont réalisées, en des lieux où les processus qui pilotent le cycle du soufre diffèrent fortement : une en Europe, région polluée, où les précipitations sont majoritairement liquide, et une en Antarctique, région où le sulfate est uniquement issu de sources naturelles, et où une part importante des précipitation est sous forme solide.

3.3.4.1 Comparaison des simulations et des observations en Europe...

La figure 3.34 confronte modèle et observations pour les concentrations de sulfate ainsi que pour les flux de dépôt humide dans les trois configurations différentes de lessivage (A, B et C). Rappelons que les flux de dépôt humide simulés correspondent à la quantité de sulfate qui a été éliminée de la colonne atmosphérique par lessivage au dessus de la station EMEP, alors que les flux de dépôt humide observés ont été obtenus en multipliant les flux de précipitation par les concentrations en sulfate mesurées dans l'eau de pluie. Ces deux variables sont directement comparables, à l'erreur près du modèle qui néglige le fait qu'une particule de sulfate peut être adsorbée par une goutte d'eau puis transportée horizontalement avant d'être déposée au sol.

En surface, les différences de concentration en sulfate entre les simulations réalisées avec les configurations de lessivage A et B est minime. En revanche, les concentrations de sulfate en surface sont mieux simulées dans la configuration de lessivage C (le coefficient de corrélation R augmente, et l'erreur quadratique diminue, cf. figure 3.34). En ce qui concerne les flux de dépôt humide, le changement relevé lors du passage de la configuration A à la configuration B est minime. Lors du passage à la version C du lessivage, le flux de dépôt humide simulé est fortement modifié. Ces modifications induisent une amélioration de la concentration de sulfate simulée en surface. Cependant, les flux de dépôt humide simulés restent très éloignés des flux observés.

On relève par ailleurs sur la figure 3.34 que la concentration en sulfate est en général sur-estimée en Europe du Nord alors qu'elle est mieux reproduite en Europe du Sud. Cette tendance se retrouve dans les trois simulations avec des configurations de lessivage différentes.

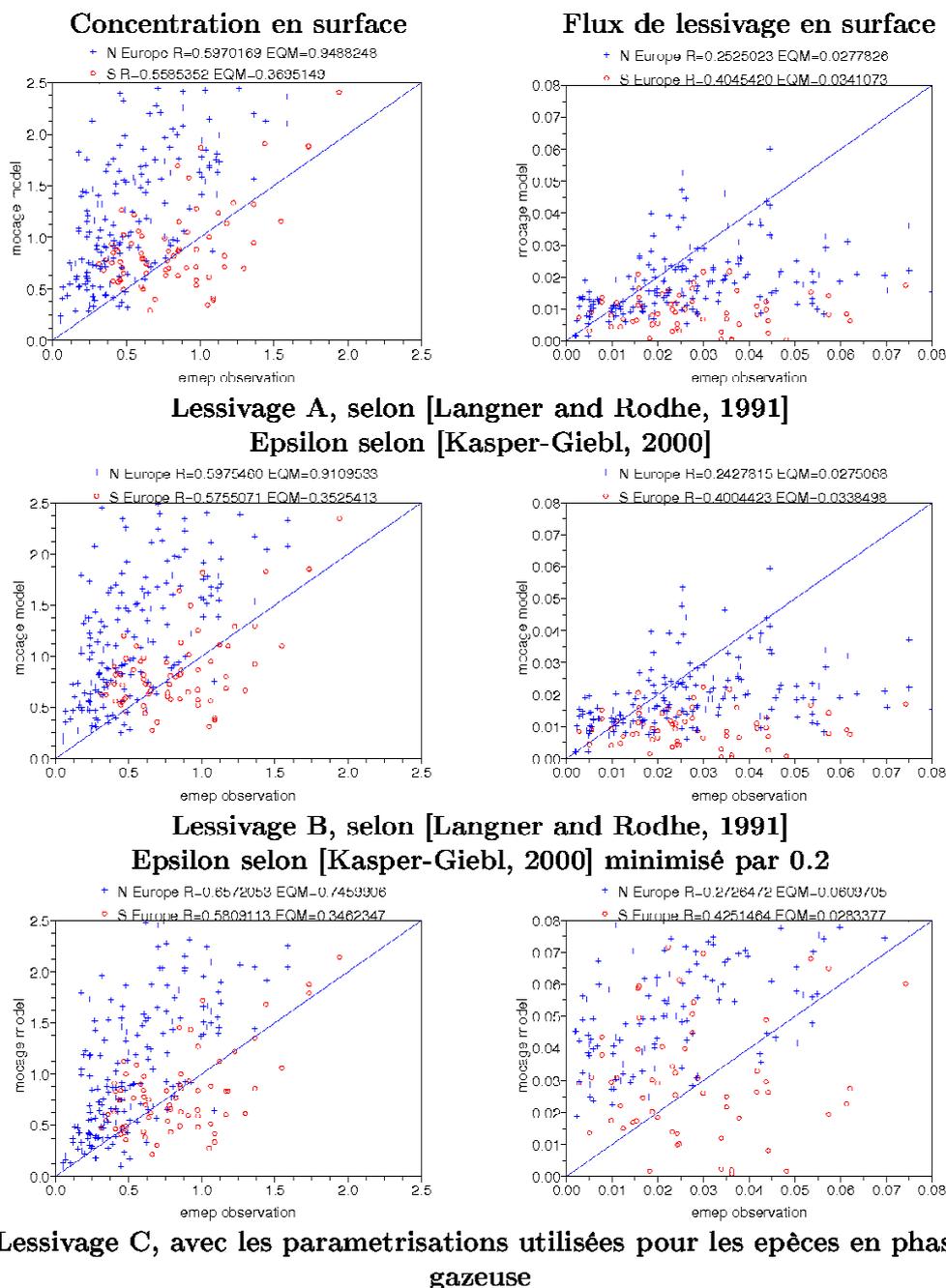


Figure 3.34 : Concentration (colonne de gauche, en $\mu\text{g}[S].\text{m}^{-3}$) et flux de lessivage (colonne de droite, en $\text{mg}[S].\text{m}^{-2}.\text{jour}^{-1}$) de sulfate. Valeurs observées (réseau EMEP) et modélisée (MOCAGE) en surface sur l'année 2000, dans les configurations de lessivage A, B et C. Les symboles en bleu correspondent aux stations d'Europe du Nord, et celles en rouge aux stations d'Europe du Sud. Pour chacun de ces domaines, les coefficients de corrélation (R) et les erreurs quadratiques moyennes (EQM) sont donnés en haut des graphiques. Les flux de lessivage observés ont été obtenus en multipliant les flux de précipitation par la concentration en sulfate mesurée dans les gouttes de pluies. Les flux de lessivage modélisés correspondent à la quantité de sulfate adsorbée par les gouttelettes d'eau nuageuse, tel que décrit dans la partie 3.1.2.4.

3.3.4.2 ... et en Antarctique

La figure 3.35 présente les concentrations de sulfate observées et modélisées à Dumont d'Urville pour l'année 2000. Contrairement aux comparaisons réalisées en Europe, le changement de la version du lessivage implique d'importantes modifications des concentrations de sulfate en surface. Si elles sont deux fois plus grandes dans la simulation réalisée avec la configuration A, elles diminuent de 10 % environ en passant à la configuration B. L'Antarctique étant une région avec de faibles valeurs de LWC (figure 3.33), minimiser le coefficient ϵ par 0.2 dans la paramétrisation du lessivage (expérience B) a un impact significatif dans cette région. Avec la configuration C, les concentrations observées sont très bien reproduites par le modèle. Le faible nombre d'observations dans cette région, tant des concentrations de sulfate que de flux de lessivage, rend délicat les conclusions quant à l'efficacité du modèle. Cependant, la configuration de lessivage C est la seule qui prend en compte le dépôt humide par les précipitations en phase glace. Il apparaît donc primordial de représenter ce processus pour décrire correctement le cycle du soufre dans les régions où la part des précipitations solides est importante.

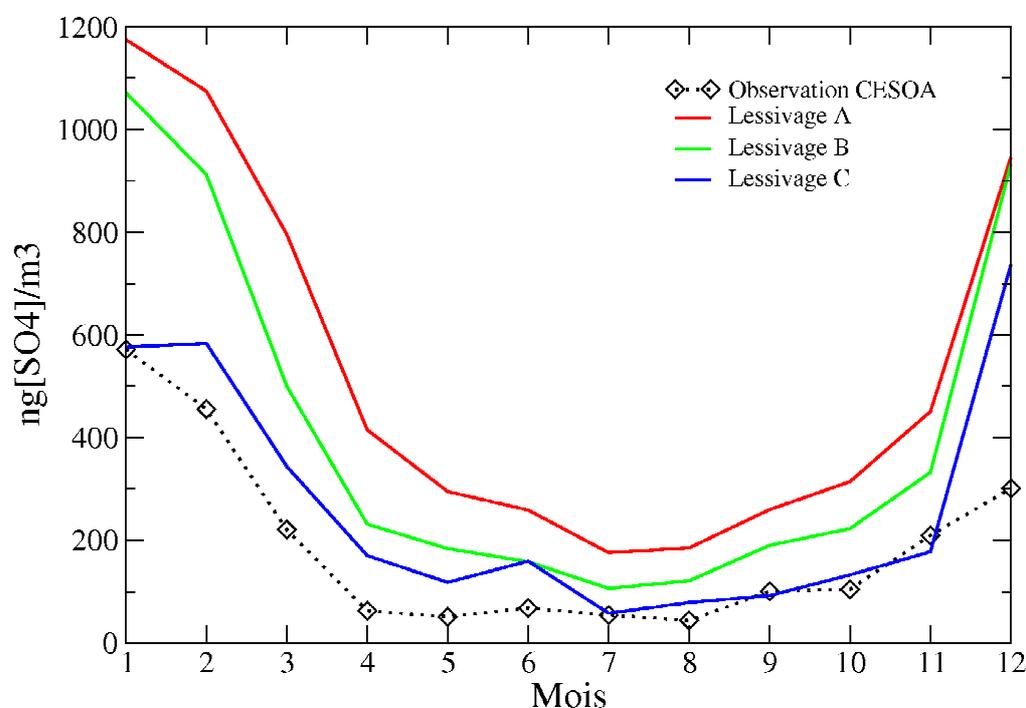


Figure 3.35 : Concentration de sulfate ($\text{ng}[\text{SO}_4].\text{m}^{-3}$) à Dumont d'Urville observée (réseau CESOA) et simulée par MOCAGE avec trois paramétrisations du lessivage.

3.3.5 Conclusion sur le choix de la paramétrisation du lessivage

Nous avons testé dans cette étude trois configurations de lessivage différentes. Le passage d'une configuration à une autre engendre de fortes modifications de la charge globale de sulfate. Il induit des variations de la concentration de sulfate en surface qui se sont avérées relativement faibles en Europe et fortes en Antarctique. La représentation de Langner et Rodhe (1991) est pertinente pour décrire le lessivage lorsqu'elle est calée de manière fine sur des observations. Dans notre cas, l'efficacité de transfert de l'aérosol vers les gouttelettes d'eau nuageuse, paramètre-clé dans la description de Langner et Rodhe (1991), est calée grâce aux observations de Kasper-Giebl (2000). La charge de sulfate globale simulée par MOCAGE, alors égale à 0.84 Tg[S], est du même ordre de grandeur que celle des modèles AEROCOM (0.7 Tg[S] en moyenne dans un intervalle de 0.3 à 1.2 Tg[S]). Cependant, dans cette configuration, la concentration de sulfate simulée est surestimée en surface. Cette surestimation est moyennement forte en Europe, mais très importante en Antarctique.

La troisième configuration de lessivage n'est *a priori* pas adaptée au lessivage des aérosols, puisqu'elle a été mise au point pour le lessivage des espèces gazeuses en premier lieu. Cependant, elle est couramment appliquée pour les particules très solubles comme le sulfate. Cette configuration représente le processus de lessivage de manière assez détaillée, elle tient compte de deux processus qui ne sont pas décrits dans les deux versions précédentes : la restitution à l'atmosphère des espèces chimiques contenues dans les gouttelettes d'eau évaporées sous les nuages, et le lessivage par les précipitations solides. En utilisant cette configuration de lessivage, la charge globale de sulfate simulée est égale à 0.63 Tg[S], valeur légèrement inférieure à la moyenne des modèles AEROCOM (0.7 Tg[S]). De plus, la concentration de sulfate modélisée à la surface de Europe et de l'Antarctique est plus réaliste avec la configuration C qu'avec les configurations A et B. Le dépôt humide simulé en Europe est cependant surestimé, et ne semble pas plus réaliste que dans les autres configurations (cf. Fig. 3.34).

Dans la suite de ce travail de thèse, les simulations du sulfate ont été réalisées avec la configuration de lessivage B. Ce choix semble pénaliser la qualité des simulations des concentrations de sulfate en surface, qui aurait été améliorée avec la configuration C. Cependant, nous avons vu que cette amélioration était en partie « artificielle », les flux de lessivage simulés étant toujours aussi peu comparables aux flux observés. Physiquement, il semble plus adapté de décrire le dépôt humide du sulfate avec la même approche que les autres aérosols plutôt qu'avec l'approche mise en place pour les espèces gazeuses. En revanche, il est évident que la paramétrisation du lessivage des aérosols doit encore être affinée dans le futur. Le lessivage par les précipitations solides devra absolument être pris en compte. L'efficacité de transfert des aérosols vers le milieu précipitant devra être calée sur des observations du même type que celle de Kasper-Giebl (2000), pour chaque type d'aérosol, mais aussi pour les différents types de nuage. Des confrontations avec des observations de la concentration de sulfate en altitude doivent aussi être réalisées pour vérifier si le lessivage est correctement modélisé sur toute la hauteur de l'atmosphère. L'ensemble de ces améliorations de la représentation du lessivage dans les modèles devrait permettre de réduire l'incertitude sur l'estimation de la charge globale en sulfate.

Synthèse du chapitre 3

Le modèle présenté dans le deuxième chapitre a été utilisé pour réaliser des simulations globales de plusieurs années du carbone-suie, du sulfate et des poussières désertiques. Le chapitre 3 est ciblé essentiellement sur l'étude du sulfate, aérosol pris en compte depuis peu dans MOCAGE. Au cours de ce chapitre, la charge en aérosol ainsi que ses variations intra- et inter-annuelles a été analysée en Europe, en Antarctique et en Arctique. Analyser une simulation de l'aérosol dans diverses régions est un moyen efficace pour appréhender en détail les processus physico-chimiques qui déterminent la concentration atmosphérique en aérosol. Ces processus pouvant varier d'un endroit à l'autre du globe, cette approche permet aussi de mettre en exergue les atouts et les défauts du modèle utilisé pour les simulations.

La principale source de soufre en Europe, région très polluée, provient des émissions anthropiques de SO_2 . La charge de sulfate simulée en moyenne sur la région Europe (30°W - $40^\circ\text{E}/30^\circ\text{N}$ - 85°N) atteint la valeur élevée de $5.4 \text{ mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}$. En Europe, cette charge de sulfate a un cycle annuel très marqué, malgré des émissions de SO_2 à peu près constantes au cours de l'année. Ce cycle est induit par les variations saisonnières de l'oxydation en phases aqueuse et gazeuse du SO_2 . Dans cette région le sulfate est éliminé de l'atmosphère par trois puits principaux, qui sont, du plus actif au moins actif, le dépôt humide, le transport de sulfate vers d'autres régions, et le dépôt sec.

L'atmosphère Antarctique est épargnée par la pollution anthropique. La charge de sulfate atteint $1.22 \text{ mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}$ en moyenne aux latitudes supérieures à 60°S dans nos simulations. Elle est issue de l'oxydation du DMS océanique. Elle présente aussi un cycle annuel marqué, lié aux fortes variations saisonnières des émissions de DMS. De la même manière qu'en Europe, le principal puit de sulfate est le dépôt humide, suivi par le transport en dehors de ces régions, puis par le dépôt sec.

En Arctique, les émissions anthropiques de dioxyde de soufre sont très faibles. Cependant, la charge de sulfate est relativement élevée, atteignant $4.2 \text{ mg}[\text{S}].\text{m}^{-2}$ en moyenne aux latitudes supérieures à 60°N dans nos simulations. Le transport de sulfate vers ces régions, première source de cet aérosol dans l'atmosphère Arctique, explique cette valeur élevée. La deuxième source de sulfate dans cette région est l'oxydation du dioxyde de soufre par voie aqueuse, ce gaz étant lui-même transporté dans l'atmosphère Arctique depuis les régions polluées situées plus au Sud. Le dépôt humide est aussi le puit majoritaire de sulfate en Arctique. Par ailleurs, l'atmosphère Arctique est aussi alimentée en carbone-suie et en poussières désertiques, par les mêmes processus de transport mis en évidence pour le sulfate.

Les faibles précipitations caractéristiques des hautes latitudes expliquent les faibles taux de lessivage du sulfate simulés dans ces régions. Pour cette raison, le temps de résidence du sulfate dans l'atmosphère simulé par MOCAGE est plus élevé aux hautes latitudes qu'aux moyennes latitudes. Cependant, nous avons vu au cours de ce troisième chapitre que le temps de résidence du sulfate est surestimé dans les simulations réalisées avec MOCAGE, ce qui a clairement été associé à une sous-estimation des flux de lessivage simulés dans le modèle.

Pour cette raison, des tests de sensibilités ont été menés avec différentes configurations de lessivage. Cela a permis d'optimiser la représentation de ce processus dans le modèle. Au vu des analyses régionales réalisées dans ce chapitre, la concentration en aérosol apparaît par ailleurs très liée aux conditions météorologiques. Pour cette raison, la sensibilité des simulations aux forçages météorologiques est analysée dans le quatrième chapitre, avant une évaluation de la charge globale de l'ensemble des aérosols.

Chapitre 4 : Evaluation des concentrations atmosphériques en aérosol à l'échelle planétaire

Au travers d'analyses régionales de nos simulations, de confrontations de ces simulations avec des observations et d'un test de sensibilité sur le lessivage, le troisième chapitre de cette thèse a permis de mettre en évidence les processus-clés à prendre en compte dans la modélisation de l'aérosol atmosphérique. La principale source de sulfate dans l'atmosphère est l'oxydation du SO₂ par voie aqueuse, et son principal puits est le dépôt humide. Ces deux processus sont très dépendants de l'humidité et des précipitations. De plus, le transport de cet aérosol par les courants atmosphériques induit de fortes variations spatio-temporelles de la concentration atmosphérique en sulfate. La simulation du champ atmosphérique de sulfate est donc nécessairement très dépendante de la représentation des conditions météorologiques dans le modèle. On peut s'attendre à ce qu'il en soit de même pour la modélisation des aérosols de carbone-suie et de poussières désertiques.

Ce quatrième chapitre est introduit par une synthèse des travaux de Martet (2008), qui a confronté des simulations globales de l'aérosol atmosphérique réalisées avec MOCAGE avec les simulations réalisées dans le cadre du projet AEROCOM. A la suite du travail de Martet (2008), des modifications ont été apportées dans le modèle MOCAGE. La représentation de l'aérosol sulfaté a notamment été intégrée au modèle. Cette nouvelle version, que nous avons utilisée pour réaliser les expériences décrites au cours de ce chapitre a été présentée dans le deuxième chapitre.

Dans ce quatrième chapitre, les simulations globales de l'aérosol réalisées avec MOCAGE sont évaluées au travers de deux approches : une étude de sensibilité des simulations MOCAGE aux champs météorologiques, et une comparaison des charges en aérosols simulées par MOCAGE et 4 modèles ayant participé au projet AEROCOM. Cette double comparaison a pour objectif de quantifier les écarts de charge en aérosol entre des simulations réalisées avec des forçages météorologiques différents, et de déterminer si ces écarts sont aussi importants que ceux relevés entre des simulations réalisées par deux modèles différents.

Au final, la simulation MOCAGE dont la configuration semble la plus pertinente est analysée pour établir un bilan global de la charge et des différents puits et sources d'aérosols.

4.1 Première évaluation des simulations de l'aérosol atmosphérique avec le modèle MOCAGE (Martet, 2008)

4.1.1 Description détaillée des expériences AEROCOM

Le projet AEROCOM a pour objectif de comparer des simulations globales de l'aérosol atmosphérique réalisées par différents modèles. Appuyé par nombre d'observations, cet exercice est l'outil idéal pour évaluer la concentration atmosphérique en aérosol et mettre en évidence les atouts – et les défauts – des modèles utilisés pour ces simulations. Cela devrait être un moyen efficace pour améliorer la représentation des processus physico-chimiques en jeu dans les modèles. Les principaux processus qui doivent être pris en compte - dans les CTM pour la simulation de l'évolution des aérosols – et dans les MCG pour l'étude de leur impact sur le climat – sont les suivants :

- Emissions
- Advection, transport convectif et diffusion
- Dépôt sec et humide, sédimentation
- Chimie homogène et hétérogène
- Granulométrie
- Coagulation ou condensation des différentes espèces chimiques à la surface de l'aérosol
- Hygroscopicité et interactions avec les nuages
- Propriétés radiatives des aérosols

L'évaluation des simulations réalisées dans le cadre du projet AEROCOM a été largement utilisée dans le cadre de l'écriture du rapport IPCC (2007). La connaissance de la communauté scientifique actuelle au sujet des processus décrits ci-dessus est synthétisée dans le premier chapitre de cette thèse. La plupart des modèles ayant participé au projet AEROCOM ne prennent pas en compte tous ces processus. Cependant, les principaux puits d'aérosols - le dépôt sec, le lessivage et la sédimentation -, ainsi que les principales sources - les émissions directes ou les réactions chimiques – sont nécessairement représentés dans les modèles. Dans le cadre du projet AEROCOM, différentes expériences ont été réalisées. Chaque expérience réalisée par les modèles ayant participé à cet exercice dure au moins une année entière, de manière à couvrir le cycle saisonnier de la charge en aérosols. Une expérience a été réalisée sur l'année 2000, dénommée « expérience A », dans laquelle chaque modèle utilise son propre inventaire d'émissions (Textor et al., 2006). Pour séparer les incertitudes provenant des émissions de celles liées à la représentation des processus physico-chimiques, une deuxième expérience a été conduite, dans laquelle chaque modèle utilise l'inventaire d'émissions évalué pour l'année 2000 par AEROCOM (Textor et al., 2007). Cette expérience est dénommée « expérience B », alors qu'une expérience équivalente, menée avec un inventaire commun à tous les modèles mais cette fois-ci représentatif de la période pré-industrielle (année 1750) a été conduite sous la désignation d' « expérience PRE ».

4.1.2 MOCAGE versus AEROCOM A et B

Une analyse des concentrations en aérosols à l'échelle planétaire simulées par MOCAGE a déjà été réalisée par Martet (2008). Ce travail s'est concentré sur l'étude des poussières minérales, des sels marins et du carbone-suie. Une paramétrisation de l'arrachement dynamique des poussières minérales (Marticorena et al., 1995 et 1997), ainsi que la prise en compte des sels marins et de leur caractère hygroscopique ont été intégrés dans MOCAGE. L'ensemble des simulations réalisées par Martet (2008) ont été réalisées avec les forçages météorologiques issus du modèle de prévision ARPEGE.

Dans le cadre de l'étude de Martet (2008), une comparaison a été réalisée entre les simulations réalisées avec le modèle MOCAGE et celles réalisées dans le cadre des expériences A et B du projet AEROCOM. On rappelle que la « diversité » δ entre les modèles AEROCOM est définie dans Textor et al. (2006) comme l'écart-type inter-modèle normalisé par la moyenne des modèles :

$$\delta = \sigma[\text{résultat}/(\text{moyenne de tous les modèles})] \times 100 \quad [\%]$$

Les deux paragraphes suivants synthétisent les résultats obtenus par Martet (2008).

4.1.2.1 Comparaison avec l'expérience A du projet AEROCOM

Martet (2008) a réalisé une simulation avec MOCAGE en suivant les consignes données dans le cadre A de l'exercice AEROCOM, c'est à dire avec l'inventaire d'émissions de son choix.

Dans le cadre de cette expérience, la charge moyenne globale en poussières désertiques simulée par MOCAGE (1.91 Tg) est plus faible que dans les autres modèles AEROCOM (22.70 Tg en moyenne ; $\delta=40\%$). Dans cette simulation, les émissions de poussières désertiques sont calculées par le modèle. Les épisodes de soulèvement de poussières minérales simulés par MOCAGE, associés à des vents intenses au dessus des déserts, ont été largement validés grâce à des images satellites et à des observations in-situ. Il semble donc que ce soit les émissions « de fond », associées à des vents faibles, qui sont moins actives et qui expliquent la faible valeur de la charge en poussières minérales dans les simulations réalisées avec MOCAGE par rapport à celle qui est simulée dans les autres modèles AEROCOM. Cela est dû au choix du diamètre des particules et du seuil à partir duquel les poussières sont soulevées dans la paramétrisation du modèle. Ce seuil pilote fortement le flux d'émissions de poussières désertiques. Ce flux reste toutefois très variable dans l'ensemble des modèles AEROCOM ayant participé à l'expérience A.

En ce qui concerne le carbone-suie, les différences d'émissions d'un modèle à l'autre sont plus faibles que pour les poussières (moyenne de 11.60 Tg.an⁻¹ ; $\delta=10\%$). Dans le cadre de l'expérience A, les émissions utilisées pour le modèle MOCAGE sont les émissions de l'inventaire « Global Emissions Inventory Activity (GEIA), égales à 13.94 Tg.an⁻¹. Elles sont légèrement supérieures à celles des autres modèles. La charge en carbone-suie simulée par MOCAGE (0.637 Tg) est par contre largement supérieure à la moyenne de celles simulées par les autres modèles (0.3 Tg ; $\delta=40\%$).

4.1.2.2 Comparaison avec l'expérience B du projet AEROCOM.

Martet (2008) a aussi réalisé des simulations avec MOCAGE en suivant les consignes proposées par AEROCOM lors de l'expérience B. On rappelle que dans cet exercice, chaque modèle doit réaliser une simulation avec les émissions préconisées par le projet AEROCOM. Avec des émissions identiques, la moyenne de la charge en poussière désertiques simulée par les modèles AEROCOM est de 21.3 Tg ($\delta=21\%$). La charge en poussières minérales simulée par MOCAGE dans le cadre de l'expérience B (12.0 Tg) est du même ordre de grandeur que celles des autres modèles alors qu'elle était nettement inférieure à celle des autres modèles dans le cadre de l'expérience A.

La charge moyenne de carbone-suie simulée par les modèles AEROCOM dans le cadre de l'expérience B est égale à 0.2 ($\delta=26\%$). Celle simulée par MOCAGE (0.19 Tg) est du même ordre de grandeur. Martet (2008) met cependant en avant le fait que le carbone-suie a un temps de résidence plus élevé dans les simulations MOCAGE (8.92 jours) que dans la moyenne des modèles AEROCOM (7 jours ; $\delta=26\%$).

Martet (2008) analyse par ailleurs une simulation des sels marins et constate que dans le cadre de l'expérience B, la charge simulée par MOCAGE (33.8 Tg) est près de 3 fois supérieure à la moyenne simulée par les autres modèles AEROCOM (12.7 Tg ; $\delta=31\%$). Martet (2008) attribue cette surestimation à la sous-estimation des précipitations issues des analyses ARPEGE, qui induit elle-même une sous-estimation du flux de lessivage de sels marins. Ce biais dans les précipitations aurait aussi un impact sur le temps de résidence du carbone-suie, surestimé à cause de la sous-évaluation du flux de lessivage de cette espèce. Des simulations réalisées avec d'autres forçages météorologiques, et notamment des précipitations plus réalistes, sont analysées dans la suite de ce chapitre.

4.2 Variabilité de la charge en aérosols simulée par MOCAGE et les modèles AEROCOM

Plusieurs modifications ont été apportées au code MOCAGE depuis les simulations réalisées par Martet (2008). La nouvelle version que nous utilisons est détaillée dans le chapitre 2. Le principal changement constitue la prise en compte de l'aérosol sulfaté, qui a nécessité la mise en place d'un schéma chimique décrivant le cycle du soufre, et l'adaptation de la paramétrisation du lessivage pour cet aérosol. Par ailleurs, les simulations de Martet (2008) ont été réalisées avec une grille « GLOB22 » alors que les nouvelles simulations sont réalisées sur une grille « T42 ». En ce qui concerne les poussières désertiques et le carbone-suie, peu de modifications ont été apportées au modèle. L'ensemble des simulations analysées dans la suite de ce chapitre a été réalisé avec l'inventaire d'émissions AEROCOM. Martet (2008) a utilisé les forçages météorologiques issus des analyses du modèle de prévision ARPEGE. Les expériences analysées au cours de ce chapitre ont été réalisées avec différents forçages météorologiques.

Dans ce chapitre, on compare aussi les simulations réalisées avec MOCAGE avec celles de 4 modèles ayant participé au projet AEROCOM. Ces modèles ont été choisis pour leurs caractéristiques très variables (cf. tableau 4.1). Les modèles LSCE et LOA sont des MCG, alors que les modèles MOZGN et TM5 sont des CTM, utilisant différents forçages météorologiques (TM5 utilise les forçages du modèle CEPMMT, alors que MOZGN utilise des forçages du modèle CCM 2.5). Ces modèles représentent la chimie atmosphérique de manière plus ou moins détaillée. Les modèles LOA et MOZGN représentent les distributions d'aérosols par des « classes » de tailles différentes, alors que les modèles LSCE et TM5 décrivent ces distributions avec une représentation log-normale.

Modèle	Type (+Forçage si CTM)	Résolution horizontale	Résolution verticale	Repr. granulo.	Chimie
LSCE	MCG	96×72 3.75°×2.5°	19 σ	Modes	Chimie interactive (modèle INCA ; Hauglustaine et al, 2004)
LOA	MCG	96×72 3.75°×2.5°	19 σ	Classes	Schéma soufre (Boucher et al., 2002) ; oxydants prescrits (Pham et al., 1995)
MOZGN	CTM (analyses CCM 2.5, cf. Brasseur et al., 1998)	192×96 1.9°×1.9°	28 σ -P	Classes	Chimie interactive (modèle MOZART, Horowitz et al, 2003)
TM5	CTM (analyses CEPMMT, cf. Krol et al., 2005)	60×45 6°×4°	25 σ -P	Modes	Chimie interactive (modèle TM3, Jeuken et al., 2001)
MOCAGE	CTM	128×64 2.81°×2.81°	47 σ	Classes	Schéma soufre (Pham et al, 1995) ; oxydants prescrits (Teyssède et al., 2007)

Tableau 4.1 : Principales caractéristiques du modèle MOCAGE et des modèles AEROCOM.
(voir Textor et al., 2006 pour plus d'informations sur les modèles AEROCOM).

4.2.1 Mise en place d'expériences de sensibilité des champs d'aérosols aux champs météorologiques

La concentration en aérosols est très sensible aux champs météorologiques utilisés dans les simulations. Ceux-ci peuvent varier significativement entre deux modèles de prévision météorologique ou entre un modèle météorologique et un modèle de climat. Etudier la réponse de la concentration en aérosols à des variations des conditions météorologiques constitue une étape importante avant l'étude des rétroactions complexes entre aérosols et système climatique. Dans cette optique, 3 simulations ont été réalisées avec différents champs météorologiques forçant MOCAGE : une première simulation a été réalisée avec les analyses du modèle de prévision ARPEGE de Météo-France (expérience dénommée « Prévision ARPEGE », PA), une deuxième avec les analyses du modèle IFS du CEPMMT (expérience appelée « Prévision avec forçage du Centre européen », PC), et une dernière avec les forçages du MCG ARPEGE-Climat (expérience désignée « ARPEGE-Climat », AC). Dans la suite de ce chapitre, ces 3 simulations sont évaluées et comparées à celles qui ont été réalisées dans le cadre de l'expérience B du projet AEROCOM. L'analyse est réalisée dans les trois sections suivantes, d'abord pour le sulfate, puis pour le carbone-suie, et enfin pour les poussières minérales.

4.2.2 Le sulfate

La tableau 4.2 expose les différents termes du bilan global de sulfate dans les simulations de MOCAGE réalisées avec des forçages météorologiques différents, ainsi que dans quatre modèles ayant participé au projet AEROCOM. Les deux dernières colonnes de ce tableau présentent la moyenne et la « diversité », définie dans la partie 4.1.2, de l'ensemble des modèles qui ont participé à l'exercice B.

La simulation « PA » a été réalisée avec la configuration de lessivage A présentée dans le chapitre 3. Il n'a malheureusement pas été possible dans le cadre de ce travail de réaliser une simulation forcée par les analyses ARPEGE avec la configuration de lessivage B. La simulation « AC » a été réalisée avec la configuration de lessivage B. Afin de pouvoir comparer les différences entre les simulations associées uniquement au changement de forçage météorologique et non pas aux différentes représentations du lessivage, deux expériences « PC » sont présentées dans le tableau 4.2 : la première d'entre elles a été réalisée avec la configuration de lessivage A et l'autre avec la configuration de lessivage B. Dans cette section, les deux simulations « PC » sont respectivement désignées « PC_A » et « PC_B ».

La charge de sulfate simulée par MOCAGE est réduite quasiment de moitié lorsque l'on passe de la simulation « PA » à « PC_A » où « AC » à « PC_B ». Le passage de la configuration du lessivage A à B diminue d'environ 30% la charge globale en sulfate dans les simulations forcées avec les analyses du modèle du CEPMMT. La différence de charge de sulfate entre les simulations forcées par les analyses du modèle de prévision ARPEGE et par ARPEGE-Climat est d'environ 30%. On peut donc supposer que cette différence est essentiellement expliquée par le changement de configuration de lessivage. Utiliser des forçages du modèle de prévision ARPEGE ou d'ARPEGE-Climat a donc un impact *a priori* relativement faible sur la simulation de la charge globale de sulfate. Cependant, l'efficacité relative des différents puits de sulfate (et notamment le rapport du dépôt humide sur la somme des puits, $W/(W+S+D)$ dans le tableau 4.2) diminue en passant de l'expérience « PA » à « PC_A » mais augmente en passant de l'expérience « AC » à « PC_B ». On restera prudent sur les comparaisons entre les simulations « PA » et « AC ».

Le temps de résidence du sulfate élevé dans les simulations « PA » et « AC » (16.9 et 10.6 jours) explique que malgré une production chimique plus faible (49.4 et 47.5 Tg[S].an⁻¹) que celle de la moyenne AEROCOM (54.7 Tg[S].an⁻¹), la charge de sulfate est élevée par rapport à celle relevée dans les autres modèles. En revanche, la charge est significativement diminuée lorsque l'on utilise les forçages météorologiques du CEPMMT et devient alors proche de la moyenne AEROCOM (0.70 Tg[S] dans l'expérience « PC_B »). Cette diminution est reliée à une diminution de la production chimique qui passe de 47.5 Tg[S].an⁻¹ dans la simulation « AC » à 42.8 Tg[S].an⁻¹ dans la simulation « PC_B ». Elle est aussi renforcée par une diminution du temps de résidence du sulfate qui atteint 7 jours dans la simulation « PC_B ». Cette diminution du temps de résidence du sulfate est nécessairement induite par une augmentation de l'efficacité du lessivage avec les champs météorologiques du modèle du CEPMMT. Notons que le temps de résidence simulé dans les expériences « PA » et « AC » est clairement sur-estimé, alors que celui simulé dans l'expérience « PC_B » est plus proche de la réalité.

La charge de sulfate simulée par le modèle TM5 (0.49 Tg[S]) est largement inférieure à la moyenne des charges simulées par les modèles AEROCOM (0.70 Tg[S]), ce qui est expliqué par le faible temps de séjour du sulfate (3.5 jours) simulé dans ce modèle. La charge simulée par le LOA (0.98 Tg[S]) est supérieure à la moyenne AEROCOM, cela étant induit par une production chimique très forte (77 Tg[S].an⁻¹). Les deux autres modèles considérés dans cette analyse simulent une colonne moyenne de sulfate légèrement supérieure à la moyenne AEROCOM (0.88 et 0.87 Tg[S] pour les modèles LSCE et MOZGN respectivement).

	MOCAGE (analyses ARPEGE) (Less. A) "PA"	MOCAGE (analyses CEPMMT) (Less. A) "PC _A "	MOCAGE (analyses CEPMMT) (Less. B) "PC _B "	MOCAGE (ARPEGE- Climat) (Less. B) "AC"	LOA	LSCE	MOZ	TM5	Moy. Aeroc.	Aeroc. δ (div.)
Charge (Tg[S])	2.26	1.15	0.85	1.42	0.98	0.88	0.87	0.49	0.70	25
Prod. chimique gazeuse (Tg[S].an ⁻¹)	10.74	9.62	9.64	10.37	21.0	21.7	N.C.	12.0	-	-
Prod. chimique aqueuse (Tg[S].an ⁻¹)	38.63	33.00	33.15	37.11	56	35	N.C.	39	-	-
Prod. chimique totale (Tg[S].an ⁻¹)	49.4	42.62	42.8	47.5	77	56.7	N.C.	51	54.7	23
Dépôt humide (Tg[S].an ⁻¹)	44.36	37.19	37.81	38.81	78	52	N.C.	51	47.3	24
Dépôt sec total (Tg[S].an ⁻¹)	4.43	6.67	6.23	9.94	~ 0	7.42	N.C.	0.52	6.8	29
W/(W+S+D) (%)	90.1	84.8	85.9	79.6	100	87.5	N.C.	99	86.9	5
Temps de résidence (jours)	16.9	9.6	7	10.6	4.6	5.4	N.C.	3.5	4.5	18

Tableau 4.2 : Charge, sources, puits, rapport du lessivage sur la somme des puits (W/(W+S+D), avec W : dépôt humide, S : Sédimentation, D : dépôt sec) et temps de résidence du sulfate dans les simulations de MOCAGE et des modèles AEROCOM. NB : Le dépôt sec total est égal à la somme du dépôt sec et de la sédimentation.

Les figures 4.1 et 4.2 montrent les colonnes et les moyennes zonales de sulfate simulées dans le cadre des trois expériences « PA », « PC » et « AC », ainsi que par des modèles ayant participé au projet AEROCOM. On rappelle que l'expérience « PA » a été réalisée avec la configuration de lessivage A alors que les deux autres expériences ont été réalisées avec la configuration de lessivage B. Les principales zones où la charge de sulfate est élevée à cause des émissions anthropiques de SO₂ se retrouvent dans toutes les simulations. On constate peu de différences dans les panaches de sulfate simulées au dessus de l'Asie et de l'Amérique du Nord par les différents modèles. En revanche, le panache de sulfate simulé au dessus de l'Europe s'étend largement au Sud de l'Europe dans les modèles du projet AEROCOM, alors qu'il reste relativement confiné sur l'Europe dans MOCAGE. La concentration de sulfate dans la zone inter-tropicale est plus faible dans les simulations réalisées avec les modèles MOCAGE, TM5 et MOZGN que dans celles réalisées avec les autres modèles (cf. Fig. 4.1 et 4.2). Par ailleurs, les simulations réalisées avec MOCAGE décrivent des colonnes de sulfate plus fortes que les autres modèles aux hautes-latitudes. Cela est dû à deux processus qui sont plus actifs dans les simulations réalisées avec MOCAGE que dans celle réalisées avec les autres modèles : la production de sulfate issue de l'oxydation du DMS océanique, et le transport de sulfate des régions polluées vers les hautes latitudes. Dans les simulations réalisées avec MOCAGE et les forçages ARPEGE (expériences « PA » et « AC »), simulations dans lesquelles la charge de sulfate est sur-estimée, cette caractéristique est exacerbée ; la colonne de sulfate aux hautes latitudes Nord est alors exagérément élevée (Fig. 4.1.b et 4.1.c). Notons que d'un modèle à l'autre, le transport de sulfate vers les hautes latitudes est toutefois assez variable.

Dans plusieurs des simulations décrites ici, le sulfate anthropique dépasse les hautes couches de la troposphère et est alors transporté le long de la tropopause au dessus de l'ensemble du globe (cf. figure 4.2). C'est le cas de la simulation « PA », dans laquelle la charge de sulfate était largement surestimée, ainsi que des simulations du LOA et du LSCE. Les simulations « PC » et celles réalisées par le modèle MOZGN ne présentent pas cette caractéristique. Le transport de sulfate anthropique dans la stratosphère est clairement exagéré dans la simulation « PA ». Cependant, il est difficile de savoir si celui qui est mis en évidence dans les simulations des modèles LOA et LSCE, plus modéré que celui de l'expérience « PA », est représentatif de la réalité.

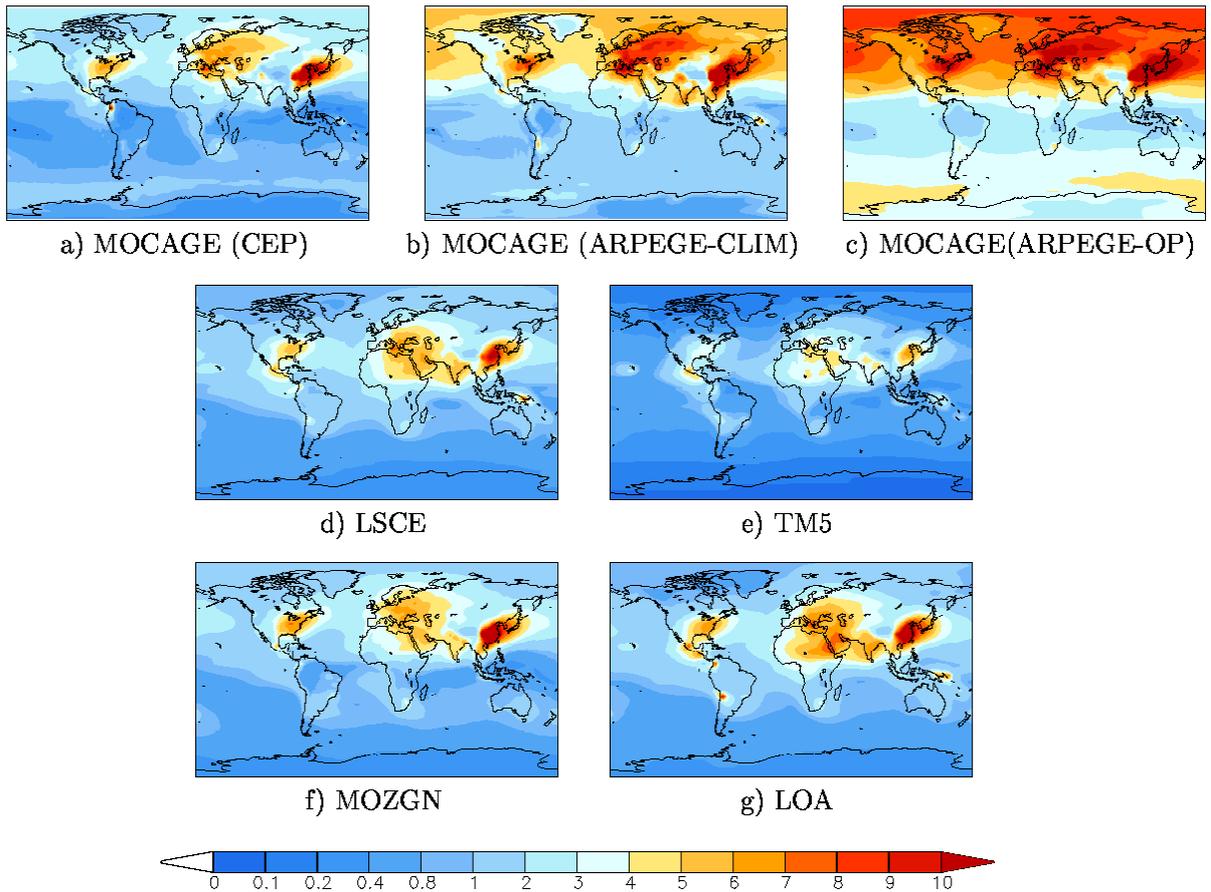


Figure 4.1 : Moyenne sur l'année 2000 de la colonne de sulfate ($\text{mg}[S].\text{m}^{-2}$) simulée par MOCAGE (avec trois forçages météorologiques différents) et par 4 modèles AEROCOM.

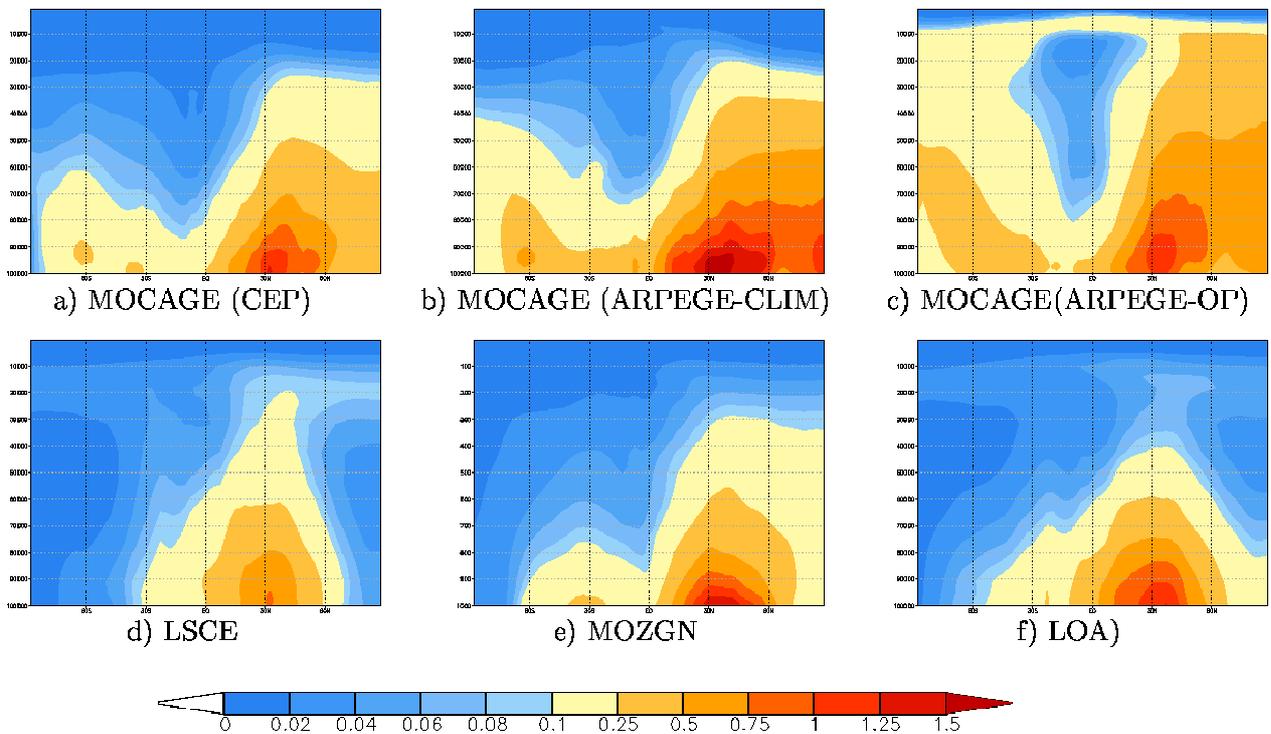


Figure 4.2 : Moyenne zonale sur l'année 2000 de sulfate ($\mu\text{g}[S].\text{m}^{-3}$) simulée par MOCAGE (avec trois forçages météorologiques différents) et par 4 modèles AEROCOM.

4.2.3 Le Carbone-suie

Le tableau 4.3 présente les termes du bilan de carbone-suie simulés par MOCAGE et par les modèles AEROCOM. Contrairement au sulfate, la même version du lessivage a été utilisée pour le carbone-suie dans l'ensemble des simulations réalisées avec MOCAGE. On rappelle que cet aérosol est un aérosol primaire, émis directement en surface, et considéré inerte chimiquement dans nos simulations. La charge de carbone-suie simulée par MOCAGE dans les expériences « PA » et « AC » (respectivement 0.228 et 0.225 Tg) est supérieure à celle simulée par les modèles du projet AEROCOM (0.2 Tg en moyenne). De la même manière que pour le sulfate, cela est dû au temps de résidence du carbone-suie, qui est nettement plus long dans les simulations « PA » et « AC » que dans les autres simulations. Dans l'expérience « PC », le temps de résidence du carbone-suie reste supérieur à celui des autres modèles AEROCOM, mais il est tout de même largement réduit, induisant une charge de carbone-suie de 0.196 Tg, valeur proche de la moyenne des modèles du projet AEROCOM. On constate que le rapport entre dépôt sec et dépôt humide est très variable d'un modèle à l'autre. Certains modèles comme le LOA et le TM5 considère que cet aérosol est éliminé de l'atmosphère de manière quasi-exclusive par le dépôt humide. D'autres, comme le LSCE où MOCAGE, considère qu'au moins 30% du dépôt est réalisée par la voie sèche. Ce rapport varie aussi fortement selon le forçage météorologique utilisé dans les simulations MOCAGE : 70% du dépôt concerne le lessivage dans l'expérience « PA », alors que ce pourcentage descend en dessous de 60 pour les expériences « PC » et « PC ». Il est difficile d'évaluer la valeur réelle de ce pourcentage, le caractère hydrophile du carbone-suie évoluant au cours du séjour de cette espèce dans l'atmosphère. Ces propriétés restent mal connues. On constate ici que cette incertitude est encore renforcée par sa forte dépendance aux champs météorologiques.

	MOCAGE (analyses ARPEGE) "PA"	MOCAGE (analyses CEPMPT) "PC"	MOCAGE (ARPEGE- Climat) "AC"	LOA	LSCE	MOZ	TM5	Mean Aeroc.	Median Aeroc.	Aeroc. δ (div.)
Charge (Tg)	0.228	0.196	0.225	0.158	0.177	0.179	0.123	0.2	0.2	26
Dépôt humide (Tg.an ⁻¹)	4.90	4.51	4.27	7.818	5.760	N.C.	7.585	6.2	6.2	11
Dépôt sec total (Tg.an ⁻¹)	2.8	3.22	3.45	N.C.	1.940	N.C.	0.244	1.6	1.5	38
W/(W+S+D) (%)	70	58	55	100	74	N.C.	97	79.8	80.0	10
Temps de résidence (jours)	10.8	9.2	10.6	7.4	8.4	8.4	5.7	7.6	7.2	26

Tableau 4.3 : Charge, sources, puits, rapport du lessivage sur la somme des puits (W/(W+S+D), avec W : dépôt humide, S : Sédimentation, D : dépôt sec) et temps de résidence du carbone-suie dans les simulations de MOCAGE et des modèles AEROCOM. NB : Le dépôt sec total est égal à la somme du dépôt sec et de la sédimentation.

L'allure des panaches de carbone-suie varie peu d'une simulation MOCAGE à une autre (cf. figures 4.3 et 4.4). Elle diffère aussi peu entre les simulations réalisées avec les modèles AEROCOM que nous avons considérés dans cette étude. C'est surtout l'intensité des panaches qui varie selon les simulations, en fonction de la manière dont sont représentés les processus de dépôt sec et humide dans les modèles.

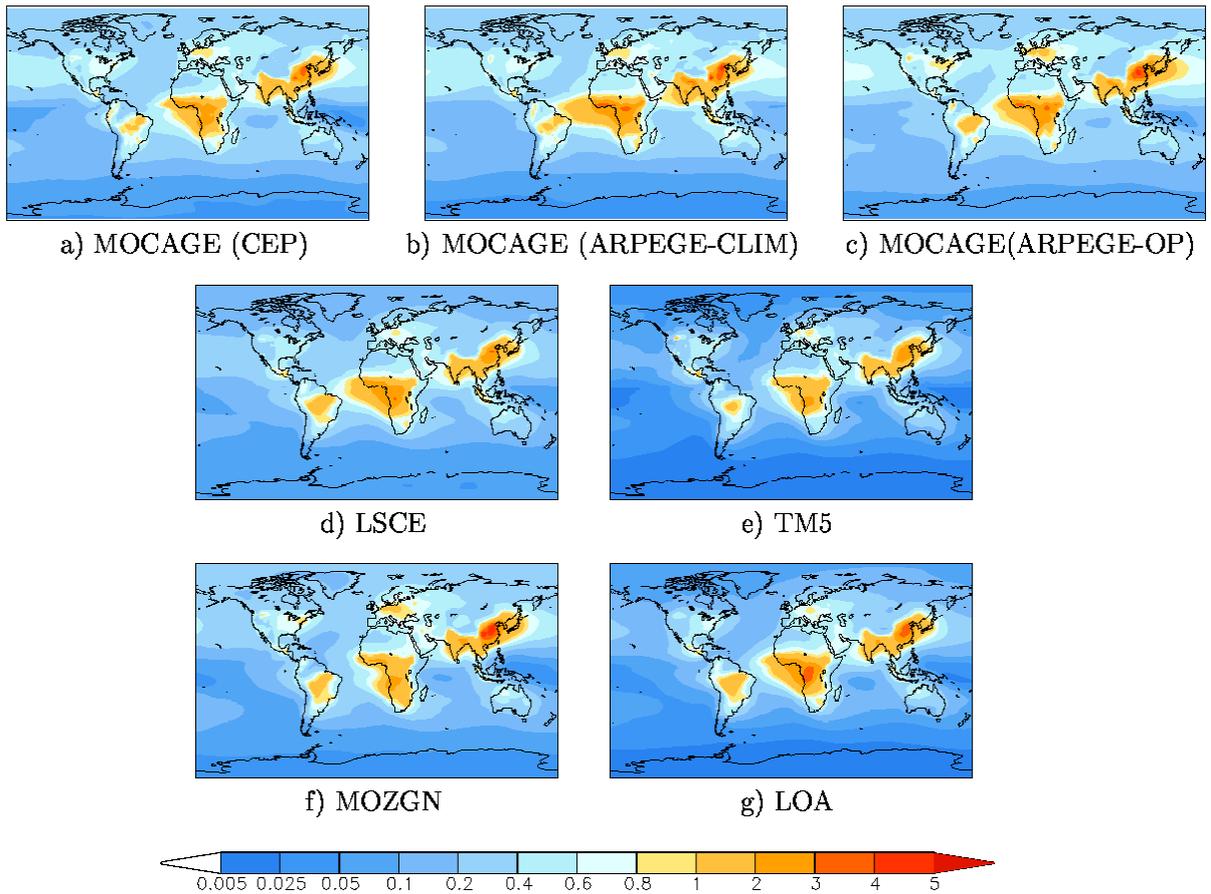


Figure 4.3 : Moyenne sur l'année 2000 de la colonne de carbone-suie (mg.m^{-2}) simulée par MOCAGE (avec trois forçages météorologique différents) et par 4 modèles AEROCOM.

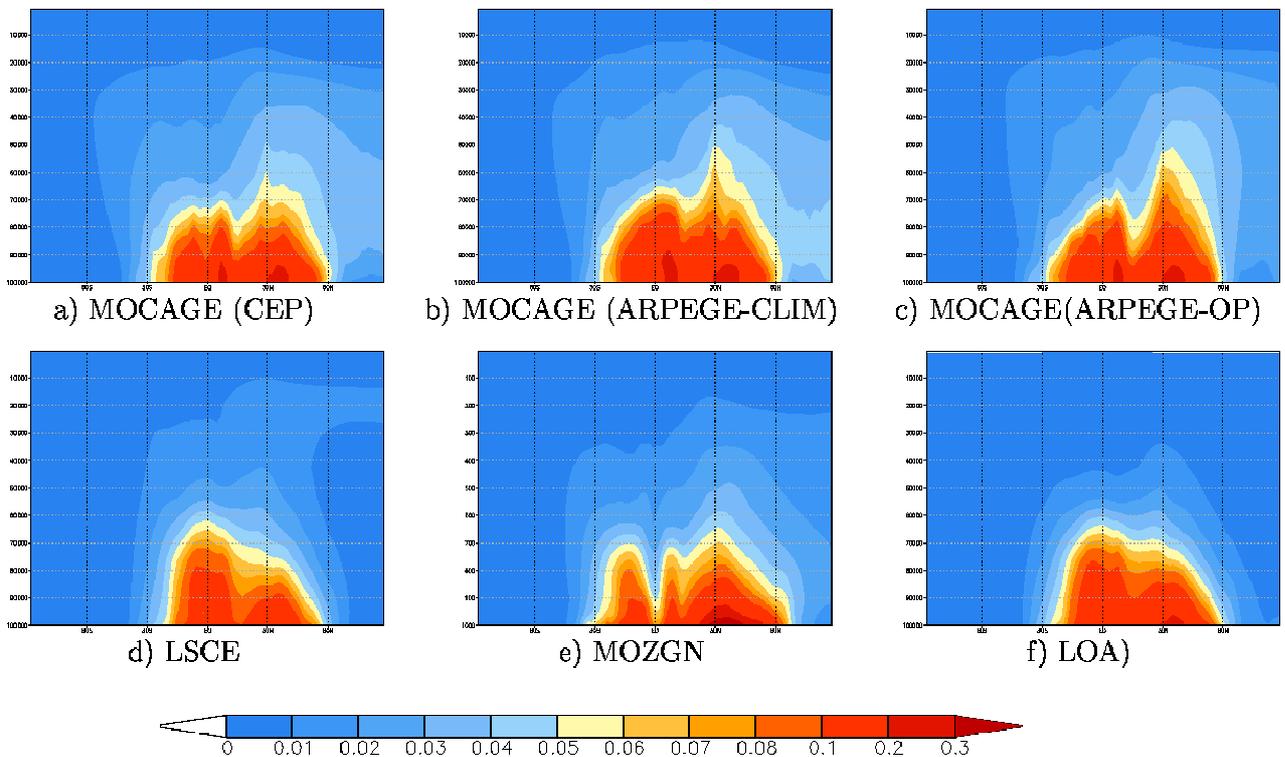


Figure 4.4 : Moyenne zonale sur l'année 2000 de carbone-suie ($\mu\text{g.m}^{-3}$) simulée par MOCAGE (avec trois forçages météorologiques différents) et par 4 modèles AEROCOM.

4.2.4 Les poussières désertiques

La charge de poussières minérales simulée dans les trois expériences réalisées avec MOCAGE est plus faible que la charge moyenne des modèles AEROCOM (respectivement 13.21, 15.43 et 16.01 Tg dans les simulations « PC », « PA » et « AC » contre 21.3 Tg pour la moyenne AEROCOM, cf. tableau 4.4). La valeur de ces charges de poussières minérales est liée au temps de résidence de ces aérosols, plus faible dans les simulations MOCAGE – il est de l'ordre de 3 jours - que pour la moyenne des simulations AEROCOM (4.8 jours). Dans les modèles LOA, LSCE, MOZGN et TM5, la charge est très variable. Cela s'explique par une grande variabilité du temps de résidence. La grande variabilité des flux de dépôts sec et humide dans l'ensemble des simulations explique les différences du temps de résidence d'un modèle à l'autre. Les flux de dépôt sec et humide, ainsi que le rapport de ces deux flux, sont très variables selon les champs météorologiques utilisés dans les simulations, comme le montre le bilan des 3 expériences « PC », « PA » et « AC » dans le tableau 4.4. Le passage d'un forçage météorologique à un autre dans ces simulations implique des variations du flux de lessivage, en partie compensées par des variations du flux de dépôt sec, mais qui impliquent tout de même des variations de l'ordre de 20 % du temps de résidence et de la charge en poussière minérales.

Tableau 4.4 : : Charge, sources, puits, rapport du lessivage sur la somme des puits

	MOCAGE (analyses ARPEGE) "PA"	MOCAGE (analyses CEPMNT) "PC"	MOCAGE (ARPEGE- Climat "AC"	LOA	LSCE	MOZ	TM5	Mean Aeroc.	Median Aeroc.	Aeroc. δ (div.)
Charge (Tg)	15.43	13.21	16.01	12.6	19.7	20.3	9.3	21.3	20.3	21
Dépôt humide (Tg.an ⁻¹)	533.56	428.38	321.266	447.1	504.1	370.1	299.3	498.0	504.0	46
Dépôt sec total (Tg.an ⁻¹)	927.85	1258.21	1364.95	1217.2	1162.2	1302.2	1404.4	1120	1160	20
W/(W+S+D) (%)	36.5	25.4	19.1	27	30.3	22.1	17.57	30.8	30.3	47
Temps de résidence (jours)	3.85	2.9	3.47	2.6	4.3	4.43	1.99	4.8	4.4	22

($W/(W+S+D)$, avec W : dépôt humide, S : Sédimentation, D : dépôt sec) et temps de résidence des poussières désertiques dans les simulations de MOCAGE et des modèles AEROCOM. NB : Le dépôt sec total est égal à la somme du dépôt sec et de la sédimentation.

Les répartitions zonale et verticale de poussières minérales sont relativement similaires dans les simulations de MOCAGE et dans celles des modèles AEROCOM (cf. Fig. 4.5 et 4.6). En revanche, le transport vers les hautes latitudes Nord de poussières minérales semble plus intense dans les simulations réalisées avec MOCAGE que dans les autres modèles. La colonne de poussières minérales simulée par MOCAGE en Arctique est comprise entre 10 et 25 mg.m⁻², alors qu'elle ne dépasse pas 5 mg.m⁻² dans les autres modèles, excepté dans MOZGN, où elle atteint 10 mg.m⁻². Excepté ces différences constatées aux hautes-latitudes Nord, la structure des panaches de poussières désertiques varie peu entre les simulations des différents modèles. Les différences de charge de poussière minérales évaluées dans le tableau 4.4 se traduisent surtout par des différences de colonne de sulfate au dessus de la région saharienne. L'utilisation de différents champs météorologiques dans les 3 expériences réalisées avec MOCAGE n'impacte que faiblement la répartition géographique des aérosols minéraux.

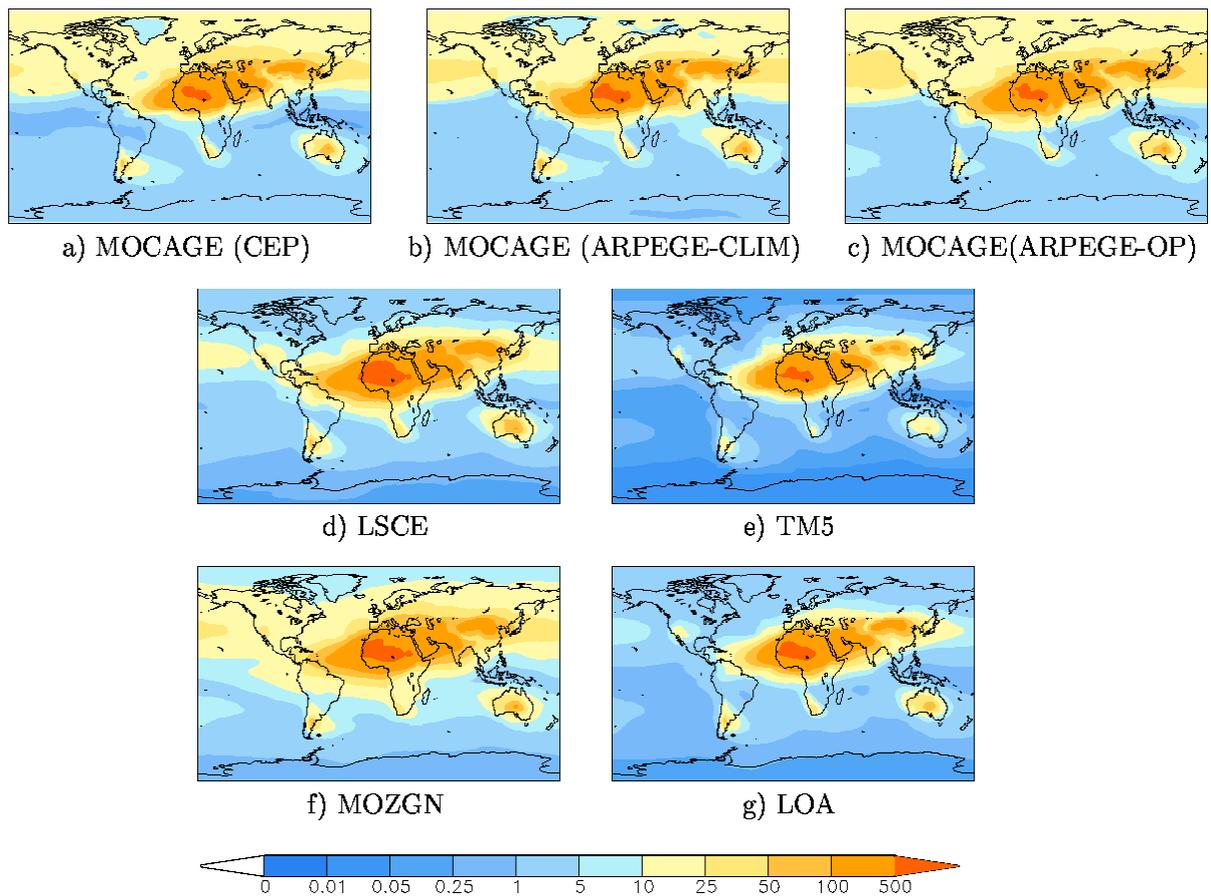


Figure 4.5 : Charge moyenne sur l'année 2000 de poussières désertiques (mg.m^{-2}) simulée par MOCAGE (avec trois forçages météorologiques différents) et par 4 modèles AEROCOM.

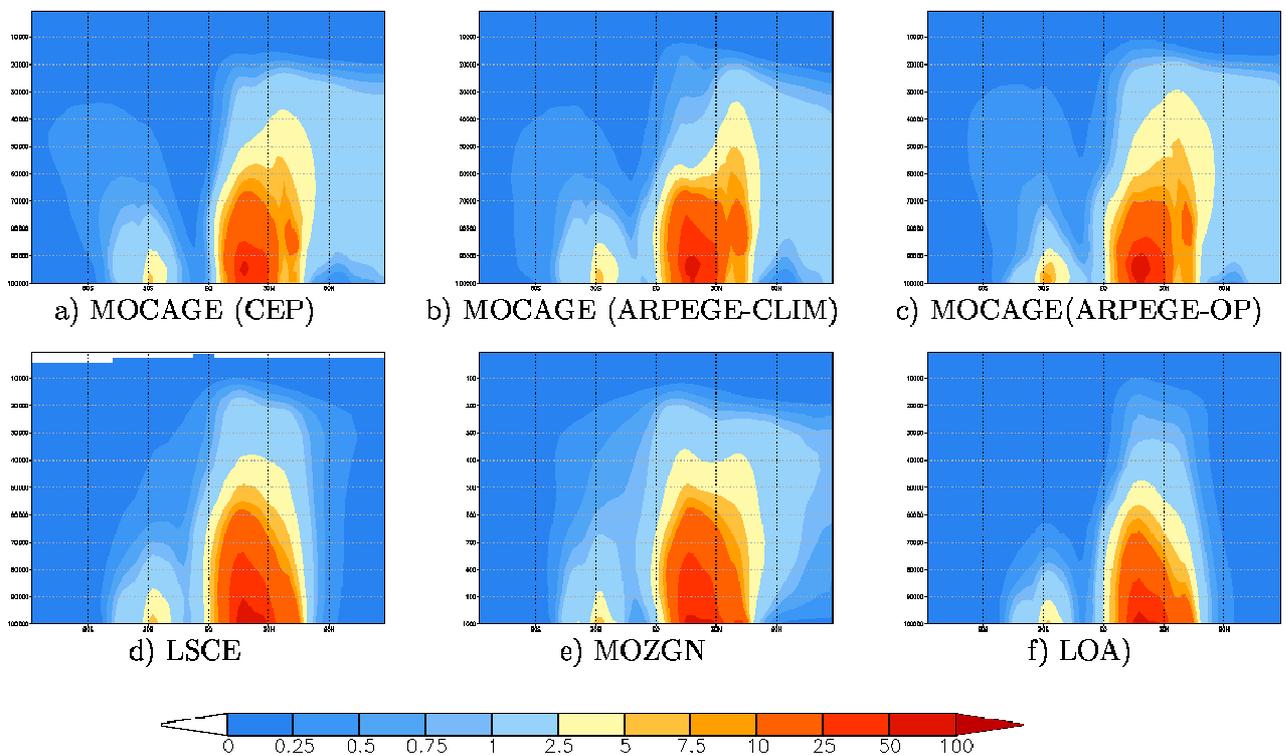


Figure 4.6 : Moyenne zonale sur l'année 2000 de poussière désertique ($\mu\text{g.m}^{-3}$) simulée par MOCAGE (avec trois forçages météorologiques différents) et par 4 modèles AEROCOM.

4.2.5 Conclusion sur la sensibilité des simulations de l'aérosol au champs météorologiques utilisés

L'expérience de sensibilité réalisée dans cette thèse a permis de montrer que la concentration de l'aérosol atmosphérique était fortement dépendante des champs météorologiques utilisés dans les simulations.

- ***Sensibilité du sulfate aux forçages météorologiques***

En ce qui concerne le sulfate, son temps de résidence semble surestimé de manière générale dans les simulations réalisées avec MOCAGE, ce qui induit des charges globales élevées. L'optimisation de la paramétrisation du lessivage proposée dans le chapitre 3 a permis d'améliorer la représentation de ce flux dans le modèle, de diminuer le temps de résidence et la charge de sulfate simulés par MOCAGE, dont les valeurs sont maintenant comparables avec la moyenne des modèles AEROCOM et sont donc *a priori* plus réalistes. Cependant, le temps de résidence du sulfate reste encore élevé, et comme on l'a vu au chapitre 3, la prise en compte des précipitations solides dans la représentation du dépôt humide devrait améliorer les simulations. Le temps de résidence du sulfate est réduit de plus de 50% en passant d'une simulation forcée par ARPEGE-Climat ou par le modèle de prévision ARPEGE à une simulation forcée par le modèle du CEPMMT. Il ne dépend donc pas uniquement de la manière dont le lessivage est représenté dans le modèle, aspect qui a été étudié dans le chapitre 3, mais aussi fortement des champs météorologiques. La production chimique de sulfate peut varier de 20% selon les forçages météorologiques utilisés dans les simulations. Par ailleurs, le flux de lessivage est fortement dépendant des précipitations. Ce point est essentiel en ce qui concerne la modélisation du sulfate car c'est une espèce très soluble.

- ***Représentation des précipitations dans nos simulations***

Le tableau 4.5 présente les moyennes globales des précipitations utilisées dans nos trois expériences de sensibilité, ainsi que dans les modèles AEROCOM. On constate que les précipitations sont globalement très faibles dans les simulations réalisées avec les forçages du modèle de prévision ARPEGE. Martet (2008) explique que les analyses ARPEGE sous-estiment nettement les précipitations sur la majeure partie du globe. Le modèle de prévision ARPEGE possède une grille étirée, avec une résolution forte sur l'Europe et faible sur le reste de la planète. Cette configuration permet de simuler des précipitations réalistes en Europe, mais ce n'est *a priori* pas le cas ailleurs : Martet (2008) présente le résultat d'une évaluation opérationnelle des précipitations réalisée à Météo France, indiquant des biais négatifs de 1 mm - cumulés sur six heures - pour l'ensemble des latitudes situées au Sud de 20°N. Cela semble être dû essentiellement à une sous-estimation du flux de précipitations stratiformes (0.92 mm.jour⁻¹ dans la simulation utilisant les analyses ARPEGE contre 3.1 mm.jour⁻¹ dans celle menée avec les analyses du CEPMMT). Le modèle ARPEGE-Climat simule pour l'époque actuelle – indépendamment de MOCAGE - un flux de précipitation de 3.27 mm.jour⁻¹, avec une composante convective de 2.59 mm.jour⁻¹ et une composante stratiforme de 0.68 mm.jour⁻¹. Cependant, dans les simulations MOCAGE, les précipitations convectives sont recalculées à partir du schéma de Kain-Fedrich-Bechtold (cf. partie 2.2.2), à partir des variables thermodynamiques fournies par le modèle de prévision où le modèle de climat. Les précipitations convectives indiquées dans le tableau 4.5 sont donc celles simulées par MOCAGE, alors que les précipitations stratiformes sont celles fournies directement par le modèle de prévision où le modèle de climat. Que ce soit dans les simulations réalisées avec les

champs provenant d'ARPEGE opérationnel ou d'ARPEGE-Climat, la moyenne des flux précipitations stratiformes est sous-estimée dans les simulations MOCAGE, alors que celle des flux de précipitations convectives semble plus réaliste.

A l'heure actuelle, les flux de précipitation sont bien moins décrits par les MCG que d'autres variables comme la température ou les vitesses du vent par exemple. Cependant, les variations des flux de précipitations relevées entre les trois expériences de sensibilité que nous avons réalisées sont particulièrement prononcées. Le projet international « Global Precipitation Climatology Project » (GPCP, Gruber et Levizzani, 2008) a pour objectif d'estimer les flux de précipitations à l'échelle globale, à partir d'analyses croisées entre observation et modélisation. La partition entre flux stratiforme et flux convectif est difficilement appréciable à la fois dans les observations et dans les exercices de modélisation, nous ne discuterons donc pas cet aspect dans le cadre de ce travail de thèse. La moyenne globale de précipitation totale estimée dans le cadre du projet GPCC est de 2.6 mm.jour⁻¹ pour l'année 2000. La moyenne AEROCOM se situe relativement proche de cette valeur. Dans les expériences réalisées avec MOCAGE, la valeur moyenne des précipitations simulée varie grandement selon le forçage météorologique utilisé. Elle est alors très sous-estimée dans les expériences réalisées avec ARPEGE, et sur-estimée dans celles forcées avec les analyses du CEPMMT.

	MOCAGE (analyses CEPMMT)	MOCAGE (analyses ARPEGE)	MOCAGE (forçage ARPEGE-Climat)	LOA	LSC E	MOZ	TM5	Moy. Aero.	Obs. GPCC
Précip. mm.jour ⁻¹	3.70 Stratiforme: 3.1 Convectif : 0.6	1.73 Stratiforme: 0.92 Convectif : 0.81	1.72 Stratiforme: 0.86 Convectif : 0.87	3.18	3.2	N.C.	3.45	2.88	2.6

Tableau 4.5 : Moyennes globales des précipitations (mm.jour⁻¹) sur l'année 2000 utilisées dans les simulations de MOCAGE et des modèles AEROCOM.

Contrairement au modèle de prévision ARPEGE, le MCG ARPEGE-Climat n'a pas de grille étirée. On s'attend donc à ce que les biais de précipitation décrits précédemment pour le modèle opérationnel ARPEGE ne se retrouvent pas dans les simulations réalisées avec les forçages ARPEGE-Climat. On constate dans la figure 4.7 que les précipitations dans l'hémisphère sud – notamment dans la bande 30°S-60°S - semblent plus réalistes dans la simulation forcée avec ARPEGE-Climat que dans celle forcée avec le modèle de prévision ARPEGE. La structure des champs de précipitation simulée dans l'expérience « AC » semble cohérente avec celle simulée dans l'expérience « PC », mais la valeur des précipitations reste très faible sur l'ensemble du globe. De manière générale, la représentation des précipitations nécessite d'être perfectionnée dans les expériences de simulation réalisées avec MOCAGE pour pouvoir décrire au mieux l'évolution des aérosols.

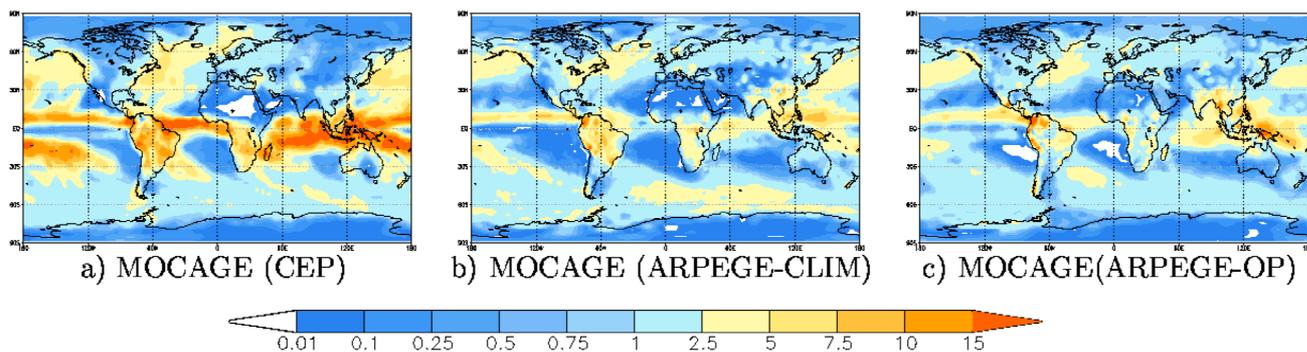


Figure 4.7 : Précipitations (mm.jour^{-1}) moyennées sur l'année 2000 utilisées dans les simulations de MOCAGE et des modèles AEROCOM.

- ***Sensibilité du carbone-suie et des poussières désertiques aux forçages météorologiques***

Le temps de résidence du carbone-suie est aussi surestimé dans les simulations réalisées avec MOCAGE. Le changement de champs météorologiques dans les trois simulations réalisées avec MOCAGE impacte moins le temps de résidence et la répartition géographique du carbone-suie que celui du sulfate. Le rapport du flux de lessivage sur le flux de dépôt total de carbone-suie est plus faible dans MOCAGE que dans les modèles AEROCOM en moyenne. Des confrontations avec des observations sont nécessaires pour déterminer comment se comporte le carbone-suie dans la réalité, espèce dont l'évaluation de la charge atmosphérique est encore très incertaine.

En ce qui concerne les poussières minérales, l'utilisation de différents champs météorologiques dans nos expériences de sensibilité peut induire des variations de 20% environ du temps de résidence et de la charge de cet aérosol. Ces variations sont nettement plus faibles que la variabilité constatée entre les différents modèles ayant participé au projet AEROCOM.

4.2.6 Vers un couplage MOCAGE-ARPEGE-Climat

L'étude de sensibilité réalisée dans ce chapitre a permis d'évaluer les variations de la concentration en aérosol simulées avec différents champs météorologiques. En particulier, la simulation réalisée avec les forçages du CEPMMT semble être la plus réaliste au vu de l'analyse de l'ensemble des simulations réalisées dans le cadre du projet AEROCOM. L'expérience réalisée avec les analyses ARPEGE surestime fortement les concentrations en sulfate. De la même manière, Martet (2008) avait remarqué que les concentrations en sels marins étaient surestimées d'un facteur 3 dans les simulations MOCAGE. La paramétrisation du lessivage, qui prend en compte le caractère plus ou moins hygroscopique des aérosols, a été améliorée dans le cadre de notre étude, mais il manque encore la représentation du lessivage par les précipitations en phase solide. Des observations du type de celles réalisées par Kasper-Giebl (2000) seront peut-être nécessaires pour déterminer une valeur correcte de l'efficacité de transfert des espèces aérosols vers la phase glace. Une optimisation de la représentation du lessivage du carbone-suie semble aussi nécessaire pour améliorer la représentation de cet aérosol dans le modèle MOCAGE. En ce qui concerne les poussières désertiques, les variations associées à l'utilisation de différents champs météorologiques ne privilégient pas particulièrement l'une des trois configurations.

La simulation réalisée avec les champs météorologiques d'ARPEGE-Climat sur-estime fortement la charge globale en sulfate. Cette sur-estimation est étroitement liée à la manière de représenter les précipitations dans les expériences réalisées avec le modèle MOCAGE et les forçages issus du modèle ARPEGE-Climat. Excepté cet aspect qui nécessite encore des mises au point, on peut entrevoir positivement la réalisation d'un couplage entre MOCAGE et ARPEGE-Climat. Ce nouvel outil permettra l'étude des rétroactions des aérosols sur le système climatique.

Un aspect marquant dans les simulations que nous avons réalisées est le transport d'aérosols vers la stratosphère, qui varie significativement d'une simulation à l'autre. Une simulation de l'aérosol atmosphérique n'atteint pas nécessairement un état d'équilibre au bout d'une année si elle décrit un transport des particules troposphériques vers la stratosphère. Le temps de résidence des espèces chimiques dans la stratosphère pouvant atteindre plusieurs années, il faudra attendre la même durée pour que la simulation atteigne un état d'équilibre. La dernière partie de ce chapitre s'attache à évaluer le réalisme de nos simulations à représenter le transport d'aérosols vers la stratosphère. Cet aspect est en effet doublement important, d'une part au niveau de l'élaboration du bilan atmosphérique global des flux d'aérosols et d'autre part au niveau du forçage radiatif induit par la couche d'aérosols stratosphériques.

4.3 Fermeture du bilan de sulfate à la tropopause

4.3.1.1 Les aérosols stratosphériques

Les grandes éruptions volcaniques impactent significativement la concentration d'aérosols dans la stratosphère, et donc le bilan radiatif de l'atmosphère. En 1991, l'éruption du Mont Pinatubo a modifié significativement la température de l'atmosphère terrestre pendant 3 ans, avec un refroidissement maximal évalué à 0.5°C, 18 mois après l'éruption (Soden et al., 2002). En dehors des périodes de forte activité volcanique, on observe dans la stratosphère une couche d'aérosols sulfatés (Junge et al., 1961), dont la principale source est l'oxydation du COS (Crutzen, 1976). Des observations régulières de la concentration en aérosols stratosphériques ont été réalisées depuis le début des années soixante-dix. Indépendamment des éruptions volcaniques, des variations de la concentration en aérosols stratosphérique ont été observés localement durant les dernières décennies (Hofmann, 1990). En s'affranchissant de la contribution volcanique, Deshler et al. (2006) estiment cependant que la concentration de ces aérosols n'a globalement pas varié depuis 1970. Les émissions de soufre anthropique sur les 30 dernières années ont diminué d'environ 20 % en moyenne (Stern, 2003). La diminution des émissions dans les pays d'Europe et d'Amérique du Nord a cependant été en grande partie compensée par une forte hausse des émissions en Asie du Sud-Est. L'oxydation du COS dans la stratosphère n'apparaît pas être une source suffisante pour alimenter la couche d'aérosols stratosphériques observée. Le deuxième facteur qui peut expliquer l'approvisionnement de cette couche d'aérosols stratosphérique est le flux de composés soufrés d'origine anthropique. L'estimation de ce flux reste cependant très incertain à l'heure actuelle. Myhre et al. (2004b) estiment que le transport vers la basse stratosphère de SO₂ et de sulfate est une source largement majoritaire devant l'oxydation naturelle de COS. Pitari et al. (2001) estiment que la couche d'aérosols stratosphérique est alimentée à 43% par l'oxydation de COS, à 27% par le transport de SO₂ et à 30% par le transport de sulfate depuis la troposphère.

4.3.1.2 Variations interannuelles de la charge globale en sulfate

Les réactions impliquant le COS n'ont pas été prises en compte dans les simulations réalisées dans le cadre de cette thèse. Cependant, le modèle que nous avons utilisé bénéficie d'une résolution verticale relativement fine jusqu'à 5hPa (i.e. 35km). Plusieurs études de chimie stratosphérique ont déjà été réalisées avec le modèle MOCAGE (Teyssède et al., 2007). Estimer les quantités d'aérosols anthropiques qui pénètrent la stratosphère permet de mieux quantifier l'impact radiatif de la couche d'aérosols stratosphériques d'une part et de fermer correctement le bilan des puits et des sources d'aérosols troposphériques d'autre part.

La figure 4.8.a présente le bilan atmosphérique du sulfate simulé par MOCAGE sur la période 2000-2005. Cette simulation a été réalisée avec les émissions AEROCOM et les forçages issus du modèle IFS du CEPMMT. Le cycle annuel de sulfate est marqué, avec un maximum en hiver et un minimum en été. La simulation semble globalement avoir atteint un équilibre. On constate une variation interannuelle de la charge en sulfate. La simulation ayant été réalisée avec des émissions constantes d'une année sur l'autre, la variabilité interannuelle provient donc *a priori* de la variabilité des champs météorologiques utilisés dans la simulation. La figure 4.8.b décrit l'évolution de la moyenne globale des précipitations prises en compte dans notre simulation. On constate que celles-ci ont une tendance générale à diminuer sur la période 2000-2005. L'évolution de la moyenne globale du flux de précipitation, variable qui conditionne fortement le lessivage du sulfate, semble avoir un lien avec les évolutions de la charge de

sulfate, qui augmente légèrement sur les 6 années de simulation. L'année 2000 est l'année durant laquelle la charge de sulfate est la plus faible et les précipitations les plus fortes sur l'ensemble des 6 années de simulation. Au cours des années 2001 à 2004, la variabilité interannuelle de la charge en sulfate est faible, de la même manière que celle des précipitations. La charge en sulfate est la plus forte en 2005, année où les précipitations sont les moins intenses.

La moyenne des précipitations globale est estimée à 2.6 mm.jour^{-1} pour la période actuelle (estimation GPCC, cf. partie 2.4.5). De plus, la moyenne annuelle des précipitations estimée par le projet GPCC n'a pas de tendance particulière sur la période 1979-2006, et reste comprise dans l'intervalle $[2.4 ; 2.8] \text{ mm.jour}^{-1}$. La tendance du flux de précipitation présentée dans la figure 4.8.b n'est donc pas réaliste. Cependant, il apparaît que la variabilité inter-annuelle de la charge en sulfate est liée aux flux de précipitation. Ce lien ayant été mis en évidence, la représentation des précipitations devra être améliorée dans les expériences réalisées avec MOCAGE pour permettre l'analyse des variations inter-annuelles de la charge en aérosol. Cet aspect n'est pas celui auquel nous nous intéressons principalement dans cette section. L'objectif de l'analyse proposée ici est de vérifier que nos simulations ont atteint un équilibre, que le bilan d'aérosol soit bien fermé. Dans ce cadre, on peut alors tenter d'évaluer le flux d'aérosol vers la stratosphère.

Le temps de résidence d'un aérosol troposphérique est de l'ordre de plusieurs jours, alors que celui d'un aérosol stratosphérique peut atteindre plusieurs années. On considère dans nos simulations qu'une particule d'air se trouve dans la stratosphère si sa température potentielle dépasse 380 K ou si son tourbillon potentiel est supérieur à 2 pvu (Malardel, 2005, p.110). La figure 4.8.c décrit la charge stratosphérique de sulfate au cours de notre simulation de 6 ans. Elle a un cycle annuel très lié à celui de la charge atmosphérique totale. On distingue toutefois une accumulation d'environ 0.03 Tg[S] dans la stratosphère, représentant 0.1% de l'augmentation de la charge en sulfate totale au cours des 6 ans de simulation. L'accumulation de sulfate dans la stratosphère n'explique donc qu'une très faible part de la tendance de la charge globale de sulfate.

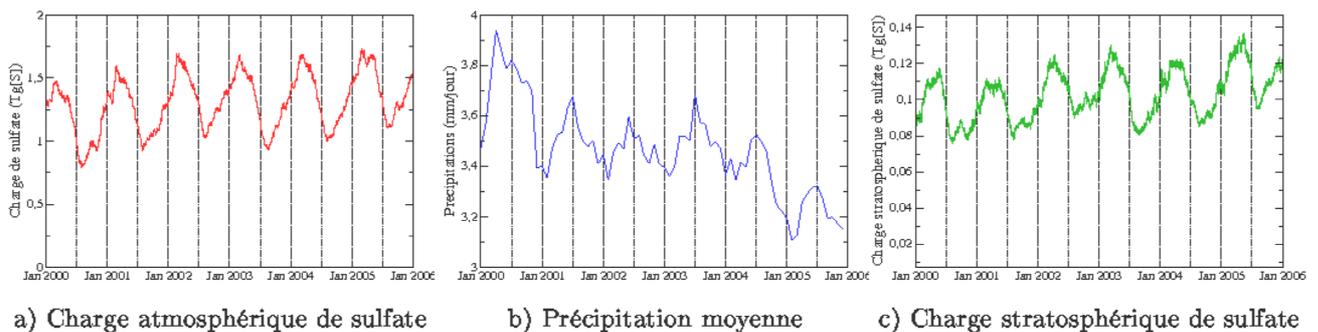


Figure 4.8 : Charge atmosphérique en sulfate (Tg[S]), précipitations (mm.jour^{-1}) et charge troposphérique en sulfate simulées sur la période 2000-2005 par MOCAGE avec les champs météorologiques du CEPMMT.

4.3.1.3 Le transport de sulfate vers la stratosphère simulé par MOCAGE

La simulation réalisée avec MOCAGE et les champs météorologiques provenant des analyses ARPEGE surestime fortement la charge globale de sulfate (cf. partie 4.3.1). Aspect lié à cette surestimation, la quantité de sulfate accumulée dans la stratosphère représente 30% de la charge totale de sulfate dans cette simulation, ce qui n'est pas réaliste. La moyenne zonale de la concentration de sulfate au cours de cette simulation décrit des concentrations de sulfate stratosphérique élevées aux hautes latitudes (cf. figure 4.2.c). Cette simulation n'est pas prise en compte dans les discussions menées dans la suite du texte.

La simulation de 6 ans présentée dans le paragraphe précédent (figure 4.8) a été réalisée avec les champs météorologiques provenant du CEPMMT, et avec la configuration de lessivage « A » (cf. partie 3.3). Dans cette simulation, la charge globale de sulfate est légèrement surestimée (cf. partie 4.3.1). La charge stratosphérique de sulfate, elle aussi *a priori* surestimée, varie entre 0.08 et 0.012 Tg.

La figure 4.9 décrit les charges de sulfate simulées avec la configuration de lessivage B. Une simulation a été réalisée avec les forçages météorologiques du CEPMMT (figure 4.9.a) et une autre a été menée avec les forçages météorologiques issus d'ARPEGE-Climat (figure 4.9.b).

La simulation réalisée avec les forçages météorologiques du CEPMMT décrit une charge stratosphérique de sulfate oscillant entre 0.04 et 0.07 Tg[S]. Dans cette simulation, les charges stratosphériques et troposphériques de sulfate présentent toutes les deux une variabilité de haute fréquence. La simulation réalisée avec les forçages météorologiques issus d'ARPEGE-Climat décrit une charge stratosphérique qui ne dépasse pas 0.02 Tg[S]. Contrairement à la simulation précédente, la charge stratosphérique ne présente pas de variabilité haute fréquence. Cette constatation permet de supposer que le temps de résidence du sulfate stratosphérique est plus court dans la simulation forcée par les analyses du CEPMMT que dans celle forcée par les forçages issus d'ARPEGE-Climat. Le sulfate stratosphérique a un comportement proche du sulfate troposphérique dans la simulation réalisée avec les forçages du CEPMMT, alors que ça n'est pas le cas dans l'autre simulation. Dans la simulation réalisée avec les forçages issus d'ARPEGE-Climat, le sulfate est probablement moins dépendant des conditions météorologiques.

Cet aspect doit être lié à la répartition géographique du sulfate stratosphérique, qui est très différente dans les deux simulations : Dans l'expérience forcée par le modèle du CEPMMT, le sulfate stratosphérique s'accumule plutôt aux hautes latitudes. Dans l'autre simulation, le sulfate stratosphérique se trouve plutôt dans la zone intertropicale. Ces deux comportements se retrouvent dans les moyennes zonales de la concentration en sulfate exposées dans les figures 4.2.a et 4.2.b. Ces deux simulations exposent deux modes de transport des aérosols depuis la troposphère vers la stratosphère : un mode lié au mouvement convectifs dans la zone intertropicale, qui sont parfois assez puissants pour creuser la tropopause et permettre à des espèces troposphériques de pénétrer la stratosphère. Ce mode est celui décrit dans la simulation forcée par ARPEGE-Climat (figures 4.2.b et 4.9.b). L'autre mode concerne le passage d'aérosols depuis la troposphère vers la stratosphère à des plus hautes latitudes (i.e. 60°N et 60°S), dans des régions où la tropopause a une structure moins horizontale qu'entre les tropiques. Le passage de courants-jet à ces latitudes peut alors transporter des espèces troposphériques vers la stratosphère. Ce deuxième mode de transport se retrouve dans la simulation forcée par les analyses du modèle du CEPMMT (figures 4.2.a et 4.9.a).

A partir de confrontations entre simulations et observations, Pitari et al (2001) estiment la valeur de la charge stratosphérique de sulfate - hors activité volcanique - à 0.156 Tg[S], dont environ la moitié (i.e. 0.078 Tg[S]) serait issue de sources anthropiques. Nous avons vu

précédemment que la charge stratosphérique du sulfate peut varier de 100% selon le forçage météorologique utilisé dans les simulations réalisées avec MOCAGE. Cependant, la valeur de la charge stratosphérique simulée dans nos deux expériences est du même ordre de grandeur que celle estimée par Pitari et al. (2001). De plus amples investigations sont nécessaires pour savoir laquelle de nos deux simulations réalisées avec des forçages météorologiques différents reproduit au mieux le sulfate stratosphérique, tant en terme de charge que de distribution géographique.

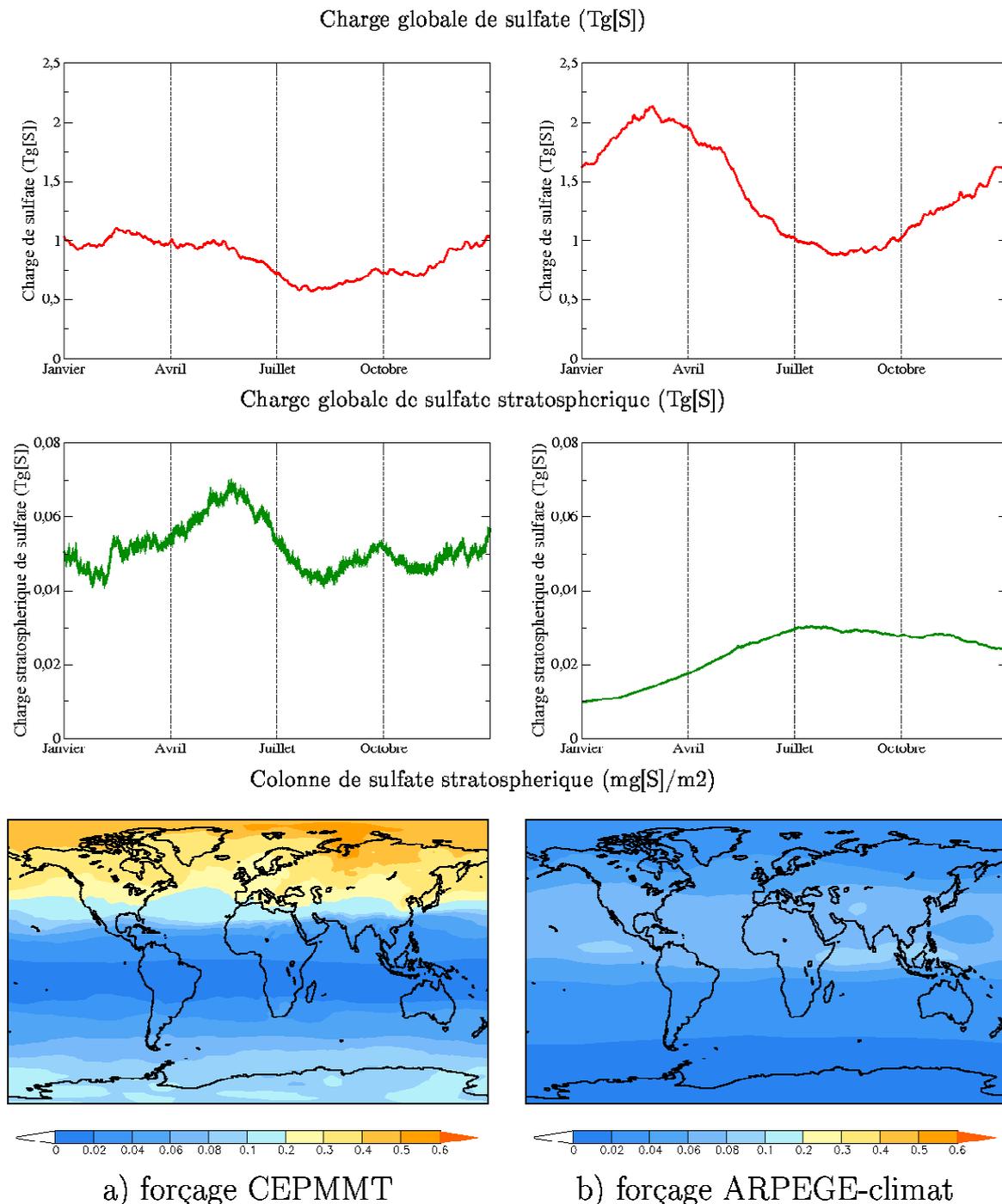


Figure 4.9 : Charge globale (Tg[S], charge troposphérique (Tg[S]) et colonne stratosphérique (mg[S].m⁻²) de sulfate simulées par MOCAGE avec les forçages météorologiques du CEPMNT et d'ARPEGE-Climat (année 2000).

4.4 Charge atmosphérique en aérosols simulée par MOCAGE

L'analyse de nos simulations en diverses régions du globe réalisée dans le troisième chapitre ainsi que l'étude de sensibilité des simulations aux conditions météorologiques menée dans ce quatrième chapitre nous a permis de mettre en évidence les points-clés à respecter pour modéliser au mieux l'aérosol atmosphérique. A partir d'une simulation réalisée avec la configuration retenue comme la plus pertinente, nous présentons ici un bilan des puits et des sources d'aérosols à l'échelle globale. Cette simulation a été réalisée sur l'année 2000, avec les émissions AEROCOM et les champs météorologiques provenant des prévisions opérationnelles du modèle IFS du CEPMMT. Dans cette simulation, le lessivage du sulfate a été réalisé selon la configuration B présentée dans le chapitre 3. La simulation commence le 1^{er} Octobre 1999 ; les 3 premiers mois – jusqu'au 1^{er} janvier 2000 - sont considérés comme une période de mise à l'équilibre. Les paragraphes suivant présentent l'analyse des champs de sulfate, de carbone-suie et de poussières désertiques.

4.4.1 Le sulfate

4.4.1.1 Bilan des sources et puits de soufre dans l'atmosphère terrestre

La figure 4.10 présente le bilan des puits et sources de soufre moyenné sur l'année 2000 simulé par MOCAGE. La charge globale de sulfate modélisée est de 0.85 Tg[S]. Sa principale source est l'oxydation en phase aqueuse du SO₂ (33 Tg[S].an⁻¹), suivie par l'oxydation en phase gazeuse (9.62 Tg[S].an⁻¹). Les émissions directes, comme préconisé dans le cadre du projet AEROCOM, sont minoritaires (1.35 Tg[S].an⁻¹). Le principal puits est le dépôt humide (37.68 Tg[S].an⁻¹), suivi par le dépôt sec (6.17 Tg[S].an⁻¹), alors que la sédimentation reste négligeable (0.03 Tg[S].an⁻¹). A l'échelle globale, la principale source de soufre provient des émissions de SO₂ – issues des activités humaines, des feux de biomasse et des volcans - (67 Tg[S].an⁻¹), suivie par les émissions de DMS (18.27 Tg[S].an⁻¹). L'essentiel du DMS est directement oxydé en SO₂ (13.59 Tg[S].an⁻¹), alors qu'une très faible part est directement déposée au sol (dépôt humide (0.12) + dépôt sec (0.03) = dépôt total de 0.15 Tg[S].an⁻¹). 25 % de DMS est oxydé en DMSO, (4.53 Tg[S].an⁻¹), dont 3.80 Tg[S].an⁻¹ oxydé en SO₂ alors que le reste (1.247 Tg[S].an⁻¹) retourne au sol soit directement par dépôt, soit après avoir été oxydé en MSA.

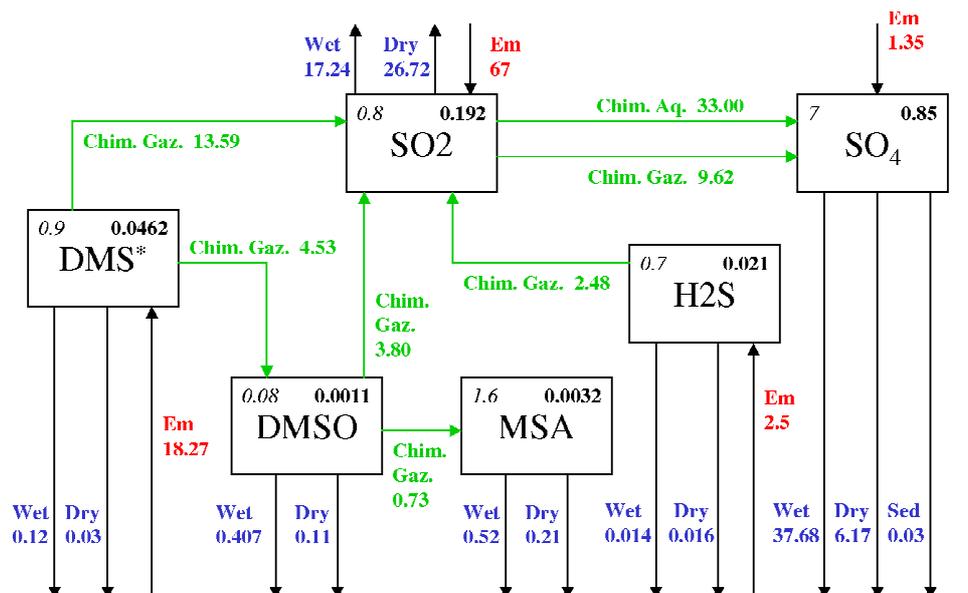


Figure 4.10 : Bilan des puits et sources de sulfate simulés par MOCAGE à l'échelle globale pour l'année 2000. Les charges(Tg[S]) sont renseignées en gras dans le côté droit des cadres où figurent les noms de chaque composé. La durée de vie (en jours) est renseignée en italique dans le côté gauche des cadres. Les flux Tg[S].an⁻¹) sont indiqués dans le sens correspondant à chaque flèche. Chim. Aq. : Chimie Aqueuse, Chim. Gaz. : Chimie Gazeuse, Wet : dépôt humide, Dry : dépôt sec, Sed : sédimentation, Em : Emissions. Simulation réalisée avec les émissions AEROCOM et les prévisions opérationnelles du centre européen (ECMWF).

4.4.1.2 Distribution géographique du sulfate atmosphérique

La figure 4.11 expose la moyenne annuelle de la distribution globale de la charge en sulfate, ainsi que celles des différents puits et sources de cet aérosol. La moyenne annuelle de la colonne de sulfate est étroitement liée aux zones d'émissions de SO₂ (cf. Fig. 2.6). Elle est bien plus forte dans l'hémisphère Nord que dans l'hémisphère Sud. Elle dépasse 10 mg[S].m⁻² dans l'Est de la Chine, et atteint en général 2.5 à 5 mg[S].m⁻² dans l'atmosphère au dessus des régions industrialisées. Comme on l'a vu au cours du chapitre 3, elle a des valeurs bien plus fortes en Arctique - région touchée par la pollution des zones industrialisées - qu'en Antarctique, où le cycle du soufre reste non perturbé par les activités anthropiques. On distingue une autre zone dans la bande intertropicale où les colonnes de sulfate sont faibles, à cause des émissions peu élevées et de la forte humidité de l'atmosphère dans ces régions qui induit un lessivage intense des aérosols.

Le dépôt humide est fortement lié à la colonne de sulfate, excepté dans les régions sèches comme les déserts du Sahara et du Moyen Orient, l'Atlantique tropical Sud, et les régions océaniques situées à l'Ouest de l'Océanie et de l'Amérique du Sud. Dans ces régions où le dépôt humide est faible, variant de 0.1 à 10 mg[S].m⁻².an⁻¹, le dépôt sec prend des valeurs plus fortes, de 10 à 100 mg[S].m⁻².an⁻¹. De manière générale, le dépôt humide est plus actif que le dépôt sec, atteignant des valeurs de l'ordre de 1000 mg[S].m⁻².an⁻¹ sur des superficies étendues autour des régions polluées. Le dépôt sec peut atteindre localement des valeurs de 1000 mg[S].m⁻².an⁻¹, mais il est souvent plutôt de l'ordre de 10 g[S].m⁻².an⁻¹ dans les régions polluées.

La production chimique par voie aqueuse a des valeurs plus fortes aux alentours des régions polluées (250 à $5000 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$) que la production chimique par voie gazeuse (100 à $1000 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{an}^{-1}$). De plus, les zones de forte production chimique de sulfate sont plus étendues pour la chimie par voie aqueuse que pour la chimie par voie gazeuse.

La moyenne zonale annuelle de concentration en sulfate montre clairement un maximum au niveau des zones industrialisées de l'hémisphère Nord (30°N), avec des valeurs atteignant $2.5 \text{ }\mu\text{g[S].m}^{-3}$. Dans ces régions, les concentrations en sulfate sont aussi élevées en altitude, atteignant des valeurs de $0.5 \text{ }\mu\text{g[S].m}^{-3}$ à 500 hPa (5.5 km) et des valeurs de $0.1 \text{ }\mu\text{g[S].m}^{-3}$ à la tropopause. La présence de ces aérosols anthropiques jusqu'à de telles altitudes entre 30°N et 90°N induit la possibilité d'un transport de sulfate vers la stratosphère. On retrouve dans la moyenne zonale annuelle la partie sud de l'atmosphère équatoriale qui est faiblement concentrée en sulfate ($0.2 \text{ }\mu\text{g[S].m}^{-3}$ maximum). Dans l'hémisphère Sud, deux maxima de concentration à $0.5 \text{ }\mu\text{g[S].m}^{-3}$ sont observés : un à 30°S , lié aux émissions de SO_2 en Afrique du Sud, Amérique du Sud et Océanie, et un à 60°S , lié aux émissions océaniques de DMS dans ces régions.

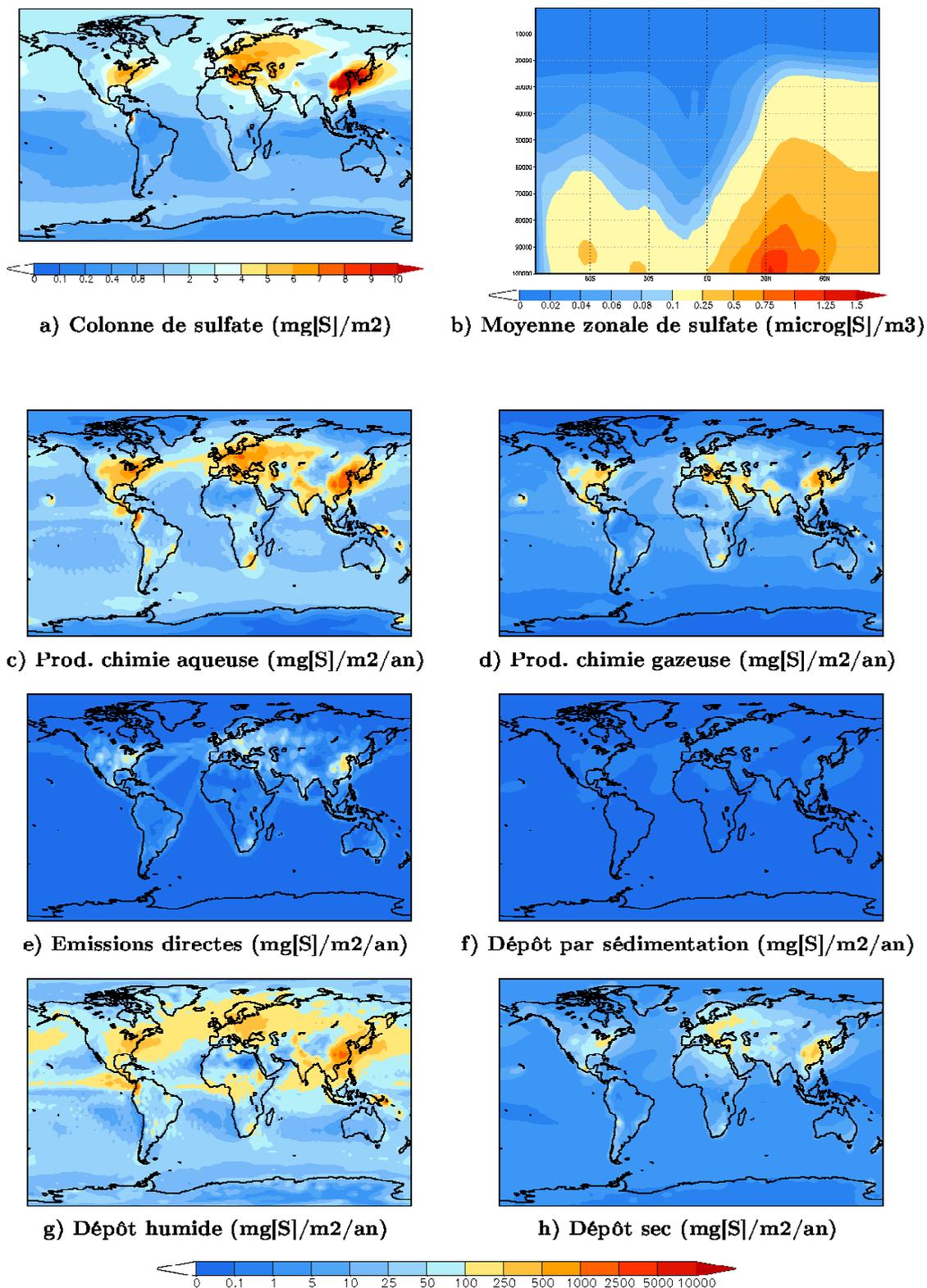


Figure 4.11 : Moyenne annuelle des champs de sulfate (colonne et moyenne zonale de la concentration) ainsi que des différents puits (sédimentation, dépôt sec et dépôt humide) et sources (chimie par voies aqueuse et gazeuse, émissions directes) simulés par MOCAGE sur l'année 2000.

4.4.2 Le Carbone-suie

La figure 4.12 présente le bilan des puits et sources de carbone-suie et de poussières désertiques simulé par MOCAGE. La charge globale de carbone-suie est égale à 0.196. Les émissions de carbone-suie sont égales à 7.7 Tg.an⁻¹. Dans les simulations réalisées avec MOCAGE, le principal puits de cet aérosol est le dépôt humide (4.51 Tg.an⁻¹), suivi par le dépôt sec (3.22 Tg.an⁻¹). La sédimentation de ces aérosols est négligeable devant les autres puits, à cause de leur petite taille. L'efficacité de ces puits induit un temps de séjour plus long pour le carbone-suie (9.2 jours) que pour le sulfate (7 jours).

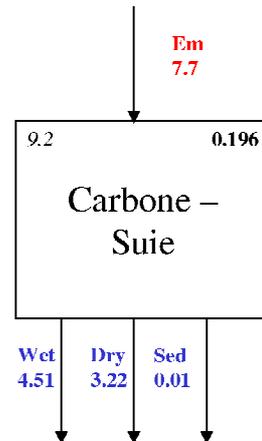
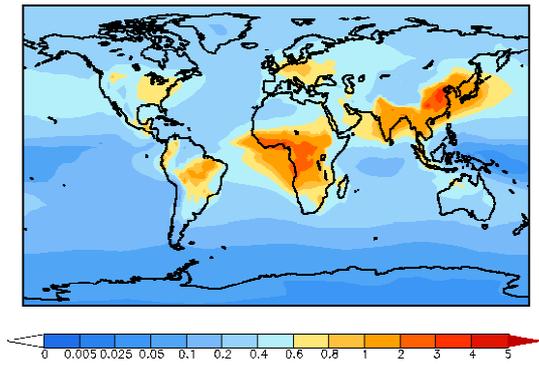


Figure 4.12 : Bilan global des puits et sources de carbone-suie simulé par MOCAGE. La charge (Tg) est renseignée dans le côté droit et la durée de vie (en jours) dans le côté gauche du cadre. Wet : dépôt humide, Dry : dépôt sec, Sed : sédimentation, Em : Emissions (flux en Tg.an⁻¹).

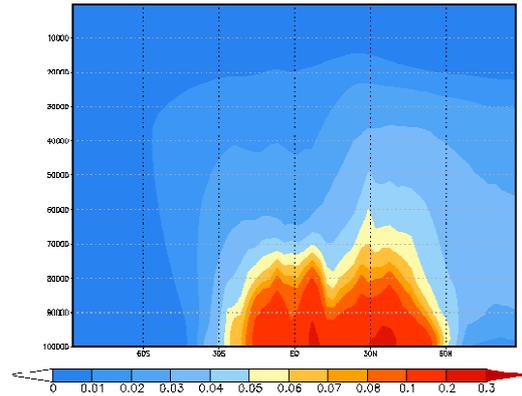
La figure 4.13 décrit la moyenne annuelle de la distribution globale de la charge en carbone-suie, ainsi que celles des différents puits et sources de cet aérosol.

La colonne moyenne de carbone-suie est clairement liée aux zones d'émissions (figure 4.13.a et 4.13.c). Elle a des valeurs maximales au dessus de la Chine, où elle atteint 4 mg.m⁻². Elle ne descend pas en dessous de 3 mg.m⁻² sur de grandes étendues au dessus des régions industrialisées d'Asie du Sud-Est et au dessus de l'Afrique équatoriale, en raison des fortes émissions liées aux feux de biomasse. On retrouve d'autres grandes zones où la charge en carbone-suie est importante : au dessus de la forêt amazonienne, où elle atteint localement 2 mg.m⁻² et au dessus de l'Europe et de l'Amérique, régions où elle est cependant plus faible qu'en Asie du Sud-Est, avec des valeurs ne dépassant pas 1 mg.m⁻². La pollution liée aux activités anthropiques et aux feux de biomasse est injectée dans l'atmosphère uniquement au dessus des continents, mais elle a un impact sur la presque totalité de la troposphère : Hormis dans toute la région Antarctique, au Groenland et au milieu du Pacifique où la colonne de carbone-suie est très faible (i.e. en dessous de 0.025 mg.m⁻²), la charge de carbone-suie ne descend pas en dessous de 0.1 mg.m⁻² sur le reste de la planète. Au dessus des zones d'émissions ainsi qu'au dessus de l'Arctique, l'atmosphère est polluée en carbone-suie jusqu'à la tropopause (i.e. jusqu'à 200 hPa, figure 4.13.b).

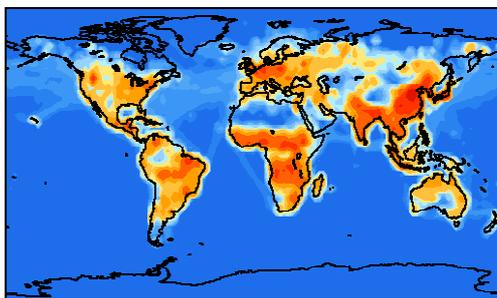
Les flux de dépôt sec et humide ont à peu près les mêmes valeurs au dessus des zones d'émissions (figures 4.13.e et 4.13.f). Le dépôt humide est par contre actif sur des zones plus étendues que le dépôt sec. Cela explique que le dépôt humide est majoritaire devant le dépôt sec à l'échelle globale dans nos simulations.



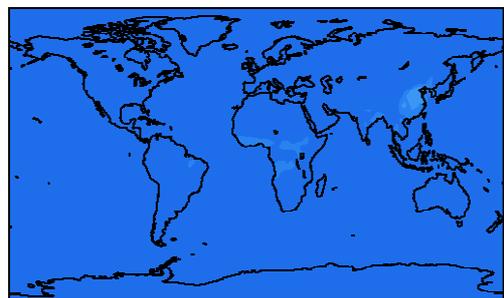
a) Colonne de carbone-suie (mg/m²)



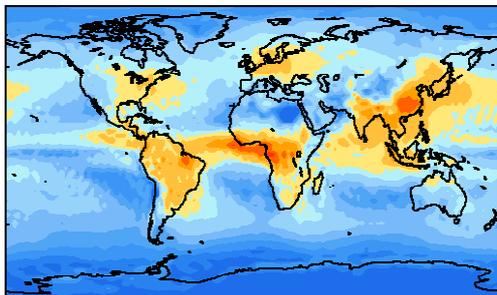
b) Moyenne zonale de carbone-suie (microg/m³)



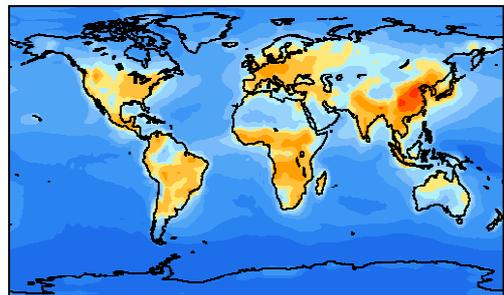
c) Emissions directes (mg/m²/an)



d) Dépôt par sédimentation (mg/m²/an)



e) Dépôt humide (mg/m²/an)



f) Dépôt sec (mg/m²/an)

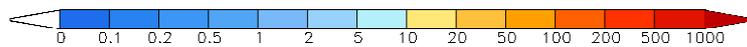


Figure 4.13 : Moyennes annuelles des champs de carbone-suie (colonne et moyenne zonale de la concentration), des émissions et des différents puits (sédimentation, dépôts humide et sec) simulées par MOCAGE sur l'année 2000.

4.4.3 Les poussières minérales

Sur la figure 4.14, on peut voir que la charge globale en poussières désertiques est égale à 13.21 Tg. Les émissions (1678 Tg.an⁻¹) proviennent uniquement des déserts, les sources anthropiques n'ayant pas été prises en compte dans nos simulations. Le dépôt sec (1051 Tg.an⁻¹) est le principal puits, suivi par le dépôt humide (428 Tg.an⁻¹) et la sédimentation (206 Tg.an⁻¹).

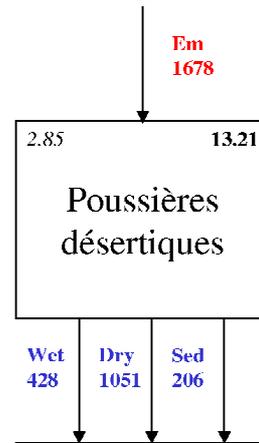
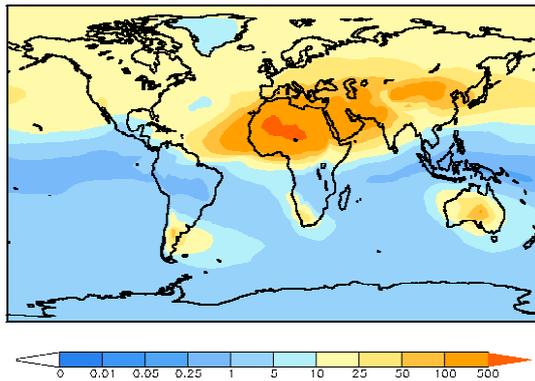
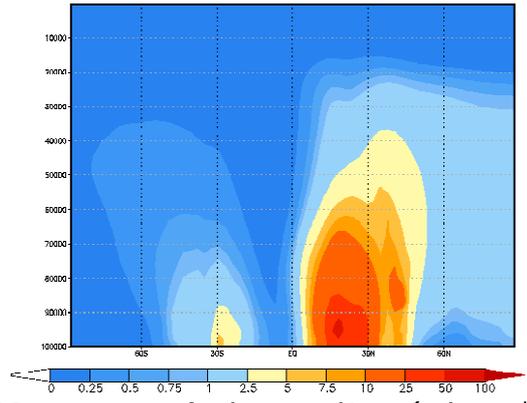


Figure 4.14 : Bilan global des puits et sources de poussières désertiques simulé par MOCAGE. La charge (Tg) est renseignée dans le côté droit et la durée de vie (en jours) dans le côté gauche du cadre. Wet : dépôt humide, Dry : dépôt sec, Sed : sédimentation, Em : Emissions (flux en Tg.an⁻¹).

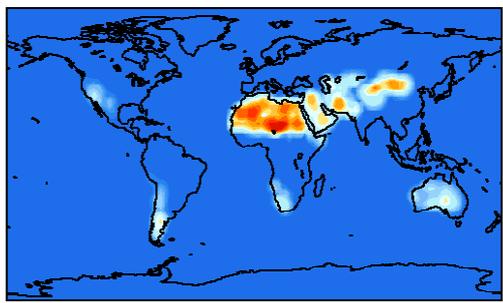
Le Sahara représente la majeure partie des émissions, ce qui induit dans cette région de très fortes charges de poussières, atteignant localement une moyenne annuelle de 500 mg.m⁻².an⁻¹ (cf. figure 4.15.c). La charge atmosphérique en poussières désertiques est fortement impactée par ces émissions du Sahara : elle garde une valeur moyenne de plus de 100 mg.m⁻².an⁻¹ au dessus d'une région qui s'étend depuis le milieu de l'Atlantique jusqu'au Moyen-Orient en longitude, et depuis l'équateur jusqu'à la méditerranée en latitude. Hormis au dessus du Groenland, la majeure partie de l'atmosphère de l'hémisphère Nord a une charge en poussières désertiques supérieure à 10 mg.m⁻². Verticalement, cet aérosol est transporté au delà de 200 hPa (cf. Fig. 4.15.b), c'est à dire pratiquement jusqu'à la tropopause. Dans l'hémisphère Sud, elle ne descend pas en dessous de 1 mg.m⁻². La région où la colonne de poussière minérale est la plus faible est le Pacifique équatoriale où les faibles émissions associées à de forts taux de lessivage induisent des charges descendant jusqu'à 0.25 mg.m⁻². Au dessus des déserts, le puit le plus efficace est le dépôt sec, suivi par la sédimentation. Une fois les poussières minérales transportées au dessus d'autres régions, c'est le dépôt humide qui devient prépondérant devant les autres puits (Fig. 4.15.e et 4.15.f).



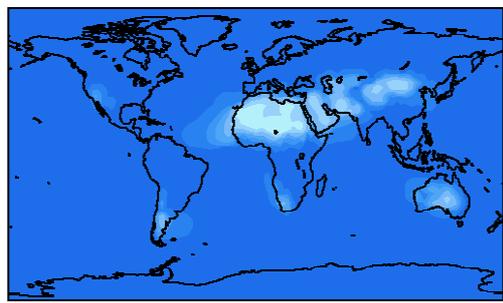
a) Colonne de poussières (mg/m²)



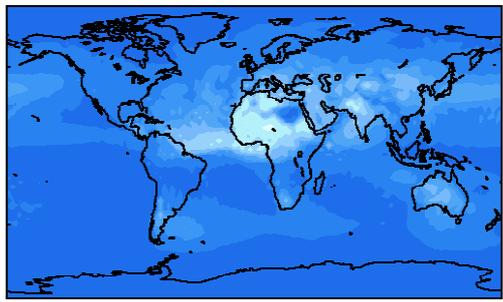
b) Moyenne zonale de poussières (microg/m³)



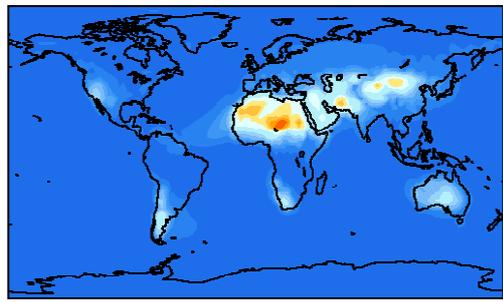
c) Emissions directes (g/m²/an)



d) Dépôt par sédimentation (g/m²/an)



e) Dépôt humide (g/m²/an)



f) Dépôt sec (g/m²/an)

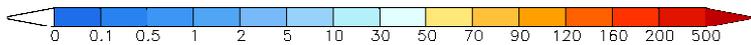


Figure 4.15 : Moyennes annuelles des champs de poussières désertiques (colonne et moyenne zonale de la concentration), des émissions et des différents puits (sédimentation, dépôts humide et sec) simulées par MOCAGE sur l'année 2000.

Synthèse du chapitre 4

Ce quatrième chapitre concerne l'analyse à l'échelle globale des concentrations en aérosol simulées par MOCAGE. Il entre dans la continuité des travaux de Martet (2008), qui a notamment évalué la charge globale en carbone-suie, en poussières désertiques et en sels marins à partir de simulations réalisées avec le modèle MOCAGE.

Ce chapitre présente l'analyse d'une expérience de sensibilité des concentrations en aérosols à différents forçages météorologiques utilisés dans les simulations. Les forçages issus du modèle de prévisions ARPEGE de Météo France, du modèle de prévision IFS du CEPMMT, et du MCG ARPEGE-Climat ont tour à tour été utilisés dans diverses simulations. On relève de fortes variations de la charge en aérosol entre ces différentes expériences.

Les simulations réalisées avec les champs météorologiques issus du modèle opérationnel de Météo France surestiment les charges de carbone-suie, de sulfate et de sels marins (cf. Martet, 2008). Cette surestimation est liée à une surévaluation de temps de résidence de ces aérosols, elle-même induite par une sous-estimation du flux de lessivage, principal puits pour ces aérosols très solubles. Le lessivage des aérosols, tel qu'il est paramétrisé dans le modèle MOCAGE et dans nombre de modèles, dépend fortement du flux de précipitations considéré dans la simulation. Dans les simulations forcées avec les analyses du modèle ARPEGE, celles-ci sont fortement sous-estimées par rapport aux observations. Des conclusions similaires sont observées quant aux simulations réalisées avec les forçages issus d'ARPEGE-Climat. Dans cette configuration, la valeur du flux annuel de précipitations est elle-aussi largement sous-estimée. Cependant, la distribution des précipitations en surface semble alors plus réaliste que dans la simulation réalisée avec les forçages de la version opérationnelle d'ARPEGE.

La simulation réalisée avec les forçages issus des analyses du modèle IFS du CEPMMT est caractérisée par une représentation des précipitations très différente, dont la moyenne annuelle est alors surestimée par rapport aux observations. Dans ces conditions, le lessivage des aérosols est plus efficace, induisant un temps de résidence du sulfate et du carbone-suie plus réalistes, alors comparables à ceux simulés en moyenne par les modèles du projet AEROCOM.

Dans les simulations MOCAGE, les flux de précipitation sont générées conjointement par le MCG – pour la partie stratiforme- et par le CTM – pour la partie convective recalculée par le CTM à partir des variables thermodynamiques fournies par le MCG. Cette manière de procéder est très souvent utilisée dans les CTM, qui reçoivent des informations des MCG à des pas de temps relativement élevés (6 ou 3 heures en général), et ont donc besoin de recalculer les flux de précipitations à des échelles de temps plus fines pour simuler correctement l'évolution des espèces chimiques. Dans cette configuration, le modèle MOCAGE génère cependant des champs de précipitations fortement éloignés des observations. Idéalement, ces aspects devront être améliorés pour une meilleure représentation de l'aérosol dans les simulations.

Les poussières désertiques sont moins solubles que le sulfate et le carbone-suie, leur comportement dans l'atmosphère est donc moins dépendant de l'humidité de l'atmosphère. Les variations de la charge et du temps de résidence de cet aérosol ne dépassent pas 20 % entre les simulations réalisées avec des forçages météorologiques différents. La charge de cet aérosol est systématiquement inférieure à celle simulée en moyenne par les modèles du projet AEROCOM. Cette caractéristique n'est pas associée aux champs météorologiques utilisés dans les simulations, mais probablement à la représentation du dépôt sec dans le modèle MOCAGE.

Le bilan de la quantité d'aérosols a été étudié en détail au cours de cette thèse : nous avons vu qu'une période de trois mois suffisait largement à atteindre une situation d'équilibre des

sources et des puits d'aérosols. Par ailleurs, le bilan de la quantité d'aérosols est apparu correctement fermé dans les hautes couches de l'atmosphère, c'est à dire qu'il n'y a pas d'accumulation irréaliste d'aérosols en altitude. Grâce à la grille du modèle MOCAGE qui décrit relativement précisément la haute troposphère et la basse stratosphère, nous avons pu évaluer dans quelle mesure le sulfate anthropique contribue à alimenter la couche d'aérosols stratosphériques. Le mode de transport d'aérosols troposphériques vers la stratosphère diffère selon le forçage météorologique utilisé dans les simulations. Cependant, quelque soit ce forçage météorologique utilisé, la charge de sulfate stratosphérique d'origine anthropique atteint des valeurs similaires, de l'ordre de quelques centièmes de $Tg[S]$. Cette estimation est comparable à d'autres évaluations basées à la fois sur des observations et des expériences de modélisation.

A partir de la configuration que nous avons estimée la plus réaliste, ce quatrième chapitre est clôturé par une évaluation détaillée de la charge, ainsi que des principaux puits et sources du carbone-suie, du sulfate et des poussières désertiques. Les résultats présentés dans ce chapitre valident l'utilisation du modèle MOCAGE pour décrire la concentration atmosphérique en aérosols. Cette étape devra permettre par la suite de prendre en compte les aérosols simulés par MOCAGE dans des simulations climatiques afin de déterminer l'impact des aérosols sur l'équilibre radiatif de la planète. Ce type d'étude pourra être réalisé en mode forcé – le CTM fournissant les champs d'aérosols au MCG sans rétroactions de la simulation du MCG sur celle du CTM – ou en mode couplé – les deux modèles s'échangeant des informations au fur et à mesure du déroulement des simulations -.

Chapitre 5 : Interactions atmosphère-aérosols en hiver dans l'Atlantique Nord

L'essentiel de cette thèse est ciblé sur l'étude des processus qui gouvernent la concentration atmosphérique en aérosols. Cependant, ce dernier chapitre ouvre une des perspectives des travaux qui ont été réalisés jusque là, qui concerne l'analyse de l'impact des aérosols sur le système climatique. Cette problématique étant très vaste - et la durée d'une thèse n'étant pas infinie - nous avons choisi de nous intéresser à l'impact de la présence d'aérosols sur une région et une période spécifiques : nous avons étudié les interactions entre atmosphère et aérosols au dessus de l'Europe et de l'océan Atlantique Nord, durant les trois mois d'hiver (décembre – janvier - février). Dans cette région, l'atmosphère tend préférentiellement vers 4 états distincts, définis comme des « régimes de temps » (Vautard, 1990). Ces régimes de temps ont une persistance moyenne d'une semaine environ. Prévoir la durée des régimes de temps et leur séquençage est un défi auquel de nombreux scientifiques se sont attelés. C'est principalement la dynamique de l'atmosphère qui pilote la durée ainsi que les transitions entre les différents régimes de temps. Cassou (2008) estime que l'oscillation de Madden-Julian contrôle en partie la distribution et les séquences des 4 régimes de temps définis dans l'Atlantique Nord. Par ailleurs, de nombreuses études ont tenté d'établir des liens à différentes échelles temporelles, entre des forçages externes – la température de surface de l'océan, par exemple – et l'occurrence ou la persistance de ces 4 régimes de temps. Ce cinquième chapitre présente une analyse des liens entre la concentration atmosphérique en aérosol et la persistance des régimes de temps. Ce travail a été soumis sous la forme d'un article à la revue « Journal of Geophysical Research ». Il est résumé dans la synthèse présentée ci-après – qui fait office de synthèse du cinquième chapitre -, et exposé dans le reste du chapitre.

Synthèse du chapitre 5

Le troisième et le quatrième chapitre de cette thèse se sont attachés à mettre en évidence les processus clés qui pilotent la concentration atmosphérique en aérosol. Ils ont permis la validation des simulations réalisées avec le modèle MOCAGE, intégrant les champs météorologiques issus des prévisions opérationnelles du modèle IFS du CEPMMT, et les émissions de l'inventaire AEROCOM. Le troisième chapitre a permis de valider régionalement ce type de simulation, notamment au travers de comparaisons avec des observations de surface. Le quatrième chapitre a permis d'évaluer globalement la charge en aérosol simulée par MOCAGE. Les forçages météorologiques issus des analyses fournies par le CEPMMT sont apparus comme des forçages permettant de simuler de manière réaliste la concentration atmosphérique en aérosol. Dans cette configuration, une simulation de la concentration atmosphérique en sulfate, en carbone-suie et en poussières minérales a été réalisée sur la période 2000-2005.

L'étude des rétroactions entre régimes de temps et concentration atmosphérique en aérosol en Atlantique Nord commence à partir de l'analyse de cette simulation. Dans cette région, les régimes de temps sont définis à partir d'états préférentiels du géopotentiel à 500 hPa. La simulation que nous avons réalisée avec MOCAGE couvre une période trop courte pour pouvoir définir statistiquement les régimes de temps. Ceux-ci ont donc été définis à partir des réanalyses ERA40 s'étendant sur la période 1958-2004 (Uppala et al., 2004). Les champs météorologiques utilisés dans notre simulation MOCAGE - c'est à dire les analyses issues du modèle IFS du CEPMMT - ont été projetées sur le classement établi à partir des réanalyses ERA40. A partir de la classification ainsi établie, nous avons réalisé des analyses composites des variables simulées par MOCAGE en fonction du régime de temps. Cette classification a permis de quantifier les anomalies de la charge en aérosols associées aux 4 régimes de temps, et de mettre en évidence les mécanismes induisant de telles anomalies. MOCAGE simule l'évolution des aérosols dans un espace en trois dimensions. Cependant, seule la distribution horizontale des aérosols a été analysée dans cette étude. Les variations verticales de la concentration en aérosol liées aux régimes de temps n'ont pas été étudiées. Dans un deuxième temps, les champs d'aérosols simulés par MOCAGE pour chaque régime de temps ont été utilisés pour forcer des simulations réalisées avec le MCG ARPEGE-Climat. 5 expériences ont été réalisées, chacune concernant 50 hivers sur la période 1980-2029 : une première simulation est forcée par la moyenne hivernale de la charge en aérosol simulée par MOCAGE, et 4 autres sont forcées par les champs d'aérosols associés aux 4 régimes de temps dans l'Atlantique Nord. Dans ces 4 dernières simulations, l'occurrence des 4 régimes de temps n'est pas modifiée par rapport à la première expérience de contrôle, alors que la persistance des régimes de temps est parfois impactée : La phase « NAO- » est réduite de 1.78 jours lorsque les hivers sont simulés avec le champ d'aérosols associé au régime « Zonal ». La phase « Zonale » est réduite de 0.88 jours lorsque l'expérience est forcée avec la distribution de colonne d'aérosol associée au régime de « Blocage ». Ce travail suggère que les interactions atmosphère-aérosols peuvent déstabiliser les phases « NAO- » et « Zonale » qui apparaissent respectivement après le régime « Zonal » et le régime de « Blocage ».

Winter interactions between aerosols and weather regimes in the North-Atlantic European region

M. Ménégoz (1), V. Guemas (1,2), D. Salas y Melia (1), A . Voltaire (1)

[1] {CNRM/GAME, Météo-France, Toulouse, France}

[2] {LSCE, UMR1572, IPSL, UVSQ, CNRS, Gif-sur-Yvette, France}

Correspondence to: M. Ménégoz (menegozmartin@yahoo.fr)

Abstract

This study aims at understanding the winter interaction between aerosols and weather regime in the North-Atlantic European region. A six year simulation of sulphate, black-carbon and dust is performed with the chemical transport model MOCAGE, forced by the meteorological data issued from the ECMWF IFS model. The model uses the inventory of aerosols and precursors gases emissions provided by the AEROCOM project. Emissions are the same from one year to another. This experiment is used to assess the impact of the North Atlantic European regimes on the atmospheric concentrations of aerosol. Composites of 2D aerosol burdens anomalies associated with each weather regime are computed and the evaluation of deposition, transport and chemistry processes inducing such anomalies are investigated. Then, the aerosol burden anomalies related to each weather regime simulated by MOCAGE are prescribed to the ARPEGE-Climat General Circulation Model. In our simulation, the interaction between the atmosphere and its aerosol concentration tends to prevent the transitions from the NAO- to the Zonal regime and from the Blocking to the Zonal regime.

5.1 Introduction

The variability of the large scale wintertime atmospheric circulation over the North-Atlantic European (NAE) region goes hand in hand with changes in surface temperature, precipitation and storminess that affect Europe. A better understanding of the atmospheric circulation variability is worthwhile for European countries. The intra-seasonal variability can be represented by transitions between four weather regimes (Vautard, 1990), which can be viewed as the preferred states of the atmospheric circulation. Each of these four weather regime has a mean persistence of about a week. The recent study by Cassou (2008), using this concept of weather regimes, suggests a potential predictability of the atmospheric circulation more than a week in advance in the North-Atlantic European region. A better understanding of the mechanisms favouring the occurrence of each winter weather regime is therefore essential to improve their predictability and the predictability of associated patterns of temperature, precipitation and storminess.

It is well known that the variability of the atmospheric circulation is primarily driven by internal dynamical processes. However, some external forcing can modulate the temporal evolution of the atmospheric state, like for example sea surface temperature variability (Cassou et al, 2004). Atmospheric aerosols are known to influence substantially the radiation budget of the Earth through scattering and absorption (direct radiative forcing) as well as through clouds, due to their role as condensation nuclei (indirect radiative forcing). They may have an impact

on the atmospheric variability over the NAE, but this topic received very little attention up to now.

The total aerosol radiative forcing is estimated to be negative, evaluated to -1.2 W.m^{-2} [-2.7 to -0.4 W.m^{-2}] (IPCC, 2007). The climate impact of aerosols is however rather uncertain, because of uncertainties on both aerosol atmospheric concentrations and aerosol radiative properties (IPCC, 2007). Natural and anthropogenic aerosols can be directly emitted in the atmosphere – like dust, sea-salt and Black-Carbon (BC) for example – whereas others - like sulphate – are produced by chemical reactions from precursors gases. Many simulations have been performed to evaluate the global aerosol burden in the context of the **Aerosol Intercomparison** (AEROCOM, Textor et al., 2006). In the context of this project, an emission inventory was established, containing both aerosol and precursors gases. This inventory is found to be one of the best estimate of global emissions up to now. An accurate description of meteorological conditions is also essential to describe correctly aerosol concentration, which can reveal strong intra- and inter-annual variability (e.g. Hongisto et al, 2003). In the context of the AEROCOM project, Schulz et al. (2006) show that uncertainties in the simulation of global aerosol direct radiative effect essentially comes from the uncertainties in the simulation of residence time, vertical profile, internal or external mixing state, mass extinction, absorption coefficients of aerosols. The surface albedo and the cloud representation in the models play also a major role on the description of the aerosol direct effect. Aerosol indirect effect has been also assessed at the global scale, but it is very uncertain (Quass and Boucher, 2005). Aerosol forcing was also studied over Europe (Hohenegger and Vidale, 2005, Marmer et al., 2007). These studies showed that the aerosol radiative forcing simulated over Europe is strongly dependent on the aerosol distribution that can vary significantly both seasonally and from one year to another.

This study aims at analysing the atmosphere-aerosol interactions in the NAE region. We focus in particular on the interaction between aerosol distributions and weather regime occurrence. As a first step, a Chemistry-Transport Model (CTM) is used to simulate the distribution of sulphate, black-carbon and desert dust from 2000 to 2005. This CTM is forced with IFS meteorological analyses from the European Centre for Medium-range Weather Forecast (ECMWF). All our simulations were performed with the AEROCOM emissions inventory. This simulation allowed to create a reasonable data-set of daily aerosol burdens. The distribution of the burden, sinks and sources of each aerosol is evaluated for each weather regime. In a second step, the patterns of aerosol anomalies induced by each weather regime are used to force an Atmosphere General Circulation Model (AGCM). This allows to investigate the role of aerosol burden on the persistence of weather regimes or their transition toward another weather regime during the winter.

The CTM used and the aerosol simulation are presented in section 1.2. The impact of North-Atlantic weather regimes on the aerosol distributions is analysed in section 1.3. Section 1.4 presents the AGCM and investigates the feedback of the aerosol distributions on the North-Atlantic weather regime persistence. Discussion and conclusions are drawn in section 1.5 and 1.6.

5.2 The MOCAGE CTM

The CTM used in this study is the MOCAGE model (Modèle de Chimie Atmosphérique de Grande Echelle) (Teyssède et al., 2007, CNRM/GAME/Météo-France). MOCAGE has been designed for a range of applications, from regional studies of air quality to global analyses of the evolution of both the stratosphere and the troposphere. The version used in this study, which has been adapted to represent trace gases and aerosols at the global scale, is briefly described in the following, but is detailed in Ménégoz et al. (2009).

5.2.1 General features of the CTM

In our simulation, MOCAGE is used on a T42 Gaussian grid (about $2.8^\circ \times 2.8^\circ$ horizontal resolution) and with 47 layers from the surface to 5 hPa. 7 levels are within the planetary boundary layer (PBL), 20 in the free troposphere and 20 in the stratosphere. The vertical coordinate is an hybrid sigma-pressure coordinate. The first layer is 40 m thick, while the resolution above 300 hPa is constant with altitude, around 800 m. A semi-lagrangian scheme is used for the advection of tracers and chemical compounds. It is based upon the work of Williamson and Rasch (1989) and detailed in Josse et al. (2004). Time steps are 1 hour for advection and 15 minutes for subgrid-scale processes. The turbulent diffusion follows Louis (1979), while the convection scheme (mass-flux-type) is that of Bechtold et al. (2001). The representation of dry-deposition for gases, based on the work of Wesely (1989) is presented in Michou and Peuch (2002). In-cloud and below-cloud scavenging representation for gases is presented in Teyssède et al. (2007).

5.2.2 Aerosol representation on the model

MOCAGE can simulate the evolution of three type of aerosols : sulphate, black-carbon and dust. Organic and sea-salt aerosols are not yet implemented in the model. Black-Carbon and Dust are emitted directly in the atmosphere, whereas sulphate is produced by chemical reactions involving precursor gases. Some of them are natural (DMS, emitted by the ocean) and others are anthropogenic (SO₂ and H₂S). The oxidants (OH, H₂O₂, O₃ and NO₃) concentrations are prescribed and provided by a one-year MOCAGE simulation with the full chemical scheme described in Teyssède et al. (2007). Representation of the sulphur cycle, based on Pham et al (1995), is detailed in Ménégoz et al (2009). Both aqueous and gaseous phase reactions produce sulphate. The parameterisation of the dry-deposition is based on Seinfeld and Pandis (2006), and its adaptation in MOCAGE is presented in Nho-Kim et al. (2004). The sedimentation velocity, negligible for black-carbon and sulphate aerosols, is essential for the representation of large dust aerosols. Its parameterisation is adapted from the Stokes law (Seinfeld and Pandis, 2006). Below-cloud scavenging depends on the collision efficiency between aerosols and cloud droplets, computed as in Seinfeld and Pandis (2006). In-cloud scavenging is simulated according to the scheme of Langner and Rodhe (1991). Black-Carbon and sulphate transfer efficiencies from solid to aqueous phase are adjusted from Kasper-Giebl (2000) observations, as presented in Ménégoz et al (2009). This parameter is considered to be identical for mineral dust and black-carbon. For each type of aerosols, the total distribution can be represented by several modes which all have a log-normal distribution. Diameter, standard deviation and fraction number of the different modes for each aerosol are

presented in the first column of table 2.1. Distributions are discretized into bins of different sizes in MOCAGE, as described in Martet (2008). The second column of the table 2.1 shows the different bins used for each aerosol. In MOCAGE simulations, the chemical production of sulphate and the direct emissions of black-carbon and mineral dust are injected into the atmosphere following the distribution shown in this table 5.1.

Aerosol	Distribution (diameter (μm) – standard-deviation – number fraction)	Size bins used in the model (m)
Mineral dust modes	0.22 - 1.59 - 0.38	5 bins (1.00E-8 to 6.31E-8 / 6.31E-8 to 3.98E-7 / 3.98E-7 to 2.51E-6 / 2.51E-6 to 1.58E-5 / 1.58E-5 to 1.00E-4)
	0.63 - 2.0 - 0.62	
Black-Carbon modes	0.015 - 1.8 - 0.92	4 bins (1E-9 to 1E-8 / 1E-8 to 1E-7 / 1E-7 to 1E-6 / 1E-6 to 1E-5)
	0.040 - 1.8 - 0.08	
Sulphate modes	0.015 - 1.8 - 0.98331	4 bins (1E-9 to 1E-8 / 1E-8 to 1E-7 / 1E-7 to 1E-6 / 1E-6 to 1E-5)
	0.04 - 1.8 - 0.01650	
	0.5 2 0.00019	

Table 5.1 : Diameters, standard deviation and number fraction of log-normal distribution for mineral dust, black-carbon and sulphate based on AEROCOM indications (first column) ; Distribution in size-bins used in MOCAGE model (second column).

5.2.3 The 2000-2005 simulation

A simulation of the 2000-2005 was computed for the aim of this study. In this simulation, air temperature, humidity, pressure and wind components used to drive MOCAGE were provided from 6-hourly analyses obtained by the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) IFS model. For the six years of the simulation, we used the “AEROSOL Comparison between Observations and Models” (AEROCOM) global emissions inventory representative of the year 2000 (Dentener et al, 2005). Emissions of SO_2 , H_2S and SO_4^{2-} are constant over the year, except for biomass burning emissions, which have monthly variations. The AEROCOM inventory considers daily variations of DMS and dust emissions. However, we used monthly averages for these fields because we assume that daily variations of these emissions are very different from one year to another, and it would not make sense in a six-year simulation. We assumed that 2.5 % of the anthropogenic elementary sulphur is directly emitted as SO_4^{2-} ; the rest being SO_2 .

5.2.4 Validation of the simulation

Before studying our aerosols simulation over the NAE region, it is necessary to check the ability of the model to describe the main sources and sinks for each type of aerosols. Table 5.2 shows global aerosol burdens, sinks and sources computed during the year 2000 by MOCAGE and the multi-model mean from the AEROCOM inter-comparison exercise. Aerosol burdens

simulated by MOCAGE are in the range of the burdens simulated by AEROCOM models. MOCAGE black-carbon burden is equal to the mean of AEROCOM models. Concerning this aerosol, dry deposition is more efficient in MOCAGE than in all other models, but it is compensated by wet deposition which is lower in MOCAGE than in other AEROCOM models. Dust burden is lower in MOCAGE than in AEROCOM models. It seems to be due to MOCAGE dry deposition and sedimentation fluxes, which are stronger than those simulated by AEROCOM models on average. Sulphate burden simulated by MOCAGE is similar to the higher estimate from the AEROCOM inter-comparison. Dry deposition of this aerosol is of the same order of magnitude in MOCAGE as in AEROCOM models, whereas sulphate chemistry production simulated by MOCAGE is lower than in AEROCOM models. High sulphate burden simulated by MOCAGE may be due to the wet deposition, which is less efficient in MOCAGE than in the other models on average. Ménégos (2009) compared a MOCAGE simulation of sulphate with observations of the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP, Hjellbrekke, 2004), and confirms that MOCAGE tends to underestimate scavenging fluxes of sulphate. Nevertheless, this study shows that in spite of a slight tendency to overestimate sulphate concentration, MOCAGE describes the distribution of sulphate over Europe quite well.

	Sulphate		Black-Carbon		Mineral dust	
	MOCAGE	AEROCOM	MOCAGE	AEROCOM	MOCAGE	AEROCOM
Burden	1.15	0.7 [0.3-1.2]	0.2	0.2 [0.11-0.37]	13.2	21.3 [6-30]
Emission+ Chem. Prod (only sulphate)	44.0	54 [30-80]	7.8	7.8 [-]	1670	1670 [-]
Dry Deposition + Sedimentation	6.6	6.8 [1-13]	3.2	1.6 [0.2-2.4]	1254	1120 [700-2100]
Wet Deposition	37.2	47 [28-116]	4.5	6.2 [5.3-11]	427	498 [100-750]

Table 5.2 : Global burden ($Tg[S]$ for sulphate and Tg for other aerosols), sinks and sources ($Tg[S].year^{-1}$ for sulphate and $Tg.year^{-1}$ for other aerosols) modelled by MOCAGE and by AEROCOM models (mean and interval, adapted from (Textor (2006)). Simulations made with the same emissions for all AEROCOM model and MOCAGE over the year 2000.

5.2.5 Aerosol budget over the North-Atlantic Region

Figure 5.1 shows the main sinks and sources over the North-Atlantic Region for sulphate, black-carbon and mineral dust. Sulphate originates essentially from SO₂ oxidation, by aqueous chemistry pathway, whereas gaseous chemistry pathway and direct emissions represent only 6 and 5 percent of total sulphate sources respectively. Considering the North-Atlantic region, the main sink for sulphate is wet deposition ($0.28 \text{ mg}[S].\text{m}^{-2}.\text{day}^{-1}$) followed by dry deposition ($0.11 \text{ mg}[S].\text{m}^{-2}.\text{day}^{-1}$) and transport outside of the domain ($0.07 \text{ mg}[S].\text{m}^{-2}.\text{day}^{-1}$).

Sedimentation is negligible for sulphate, due to the very small size of this aerosol. The mean sulphate burden is $4.59 \text{ mg[S].m}^{-2}$ in this region. The mean black-carbon burden is 0.38 mg.m^{-2} . The black-carbon emissions, issued from biomass burning and human activities in Europe, Africa and America, are equal to $0.067 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ on average over the whole North-Atlantic region. The main sink for this aerosol is dry deposition ($0.022 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$), followed by wet deposition ($0.014 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$) and export out of the domain ($0.0017 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$). Sedimentation is negligible for black-carbon, due to the small size of this aerosol. The mineral dust burden is 68.4 mg.m^{-2} over North-Atlantic region, with emissions coming from African and Middle-East deserts equal to $115.9 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ on average over the whole domain. The main sinks for this aerosol are dry deposition ($23.22 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$), followed by transport outside of the domain ($8.47 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$), sedimentation ($5.10 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$) and wet deposition ($2.40 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$). The total budget of all fluxes ($0.026 \text{ mg[S].m}^{-2}.\text{day}^{-1}$, $0.029 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ and $76.7 \text{ mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ for sulphate, black-carbon and mineral dust respectively) is positive for all aerosols, indicating an accumulation of aerosols in the NAE region during winter.

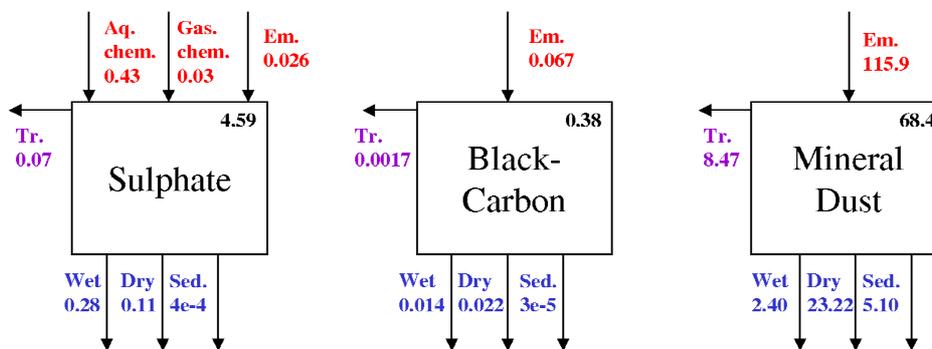


Figure 5.1: Sulphate, Black-Carbon and mineral dust budget over the North-Atlantic region ($20^{\circ}\text{N}-80^{\circ}\text{N}$, $80^{\circ}\text{W}-40^{\circ}\text{E}$) in winter (December-January-February) 2000 to 2005. Burdens (on the upright corner of the square) are given in mg[S].m^{-2} for sulphate and mg.m^{-2} for other aerosols. Fluxes are given in $\text{mg[S].m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ for sulphate and $\text{mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ for other aerosols: Tr: Transport outside of the domain ; Wet: Wet deposition ; Dry: Dry deposition ; Sed: Sedimentation ; Aq. Chem.: Aqueous chemistry ; Gas. chem.: Gaseous chemistry ; Em.: Emissions.

Sulphate is essentially concentrated over Europe and America in winter, due to high SO_2 anthropogenic emissions (Figure 5.2.a), with an average burden varying between 5 and 9 mg[S].m^{-2} . Over the North Atlantic ocean, the sulphate burden varies from 0 mg[S].m^{-2} in the tropics to 5 mg[S].m^{-2} in the North. Over Greenland, sulphate column is very low (i.e. lower than 2 mg[S].m^{-2}) above the centre of the island, whereas it takes values about 2.5 mg[S].m^{-2} above the littoral. Black-carbon has a distribution similar to those of sulphate, with an averaged column reaching 0.8 mg.m^{-2} over Europe and America, 0.4 mg.m^{-2} above Atlantic and 0.2 mg.m^{-2} over Greenland (Figure 5.2.b). There is however a large difference between black-carbon and sulphate distribution over Africa: the sulphate burden is very low over this region, whereas black-carbon burdens are comparable to those modelled in European polluted area, because of strong biomass burning emissions in central Africa. Mineral dust is essentially concentrated over northern Africa, due to Saharan and Middle-East desert emissions (Figure 5.2.c). The winter average of dust column varies between 200 and 500 mg.m^{-2} above Africa, between 10 and 25 mg.m^{-2} over Europe and between 0 and 10 mg.m^{-2} above the Atlantic ocean and America. Only the eastern part of the Atlantic atmosphere is strongly concentrated in dust:

Dust column ranges from 200 mg.m^{-2} in the West coast of Africa to 0 mg.m^{-2} in the middle of the North Atlantic region.

The resulting aerosol radiative forcing is estimated using Aerosol optical Thickness (AOT). AOT is computed here from the aerosol column with the coefficients estimated by Tegen et al. (1997). Figure 5.2.d shows that simulated AOT takes very high values over Africa, reaching 0.6, due to the extreme concentration of mineral dust in the atmosphere. AOT ranges from 0.2 to 0.3 over Eastern Europe and from 0.1 to 0.2 over Western Europe, due to the presence of mineral dust, sulphate and black-carbon. Over America, AOT varies between 0.2 and 0.25, only due to the presence of sulphate and black-carbon. AOT is comprised between 0.1 and 0.15 over the Atlantic ocean, except near the African western coast, where it can reach values of 0.4 due to transport of desert dust. AOT takes its lower values over Greenland and over the Caribbean sea, ranging from 0.05 to 0.01.

We have to keep in mind that organic aerosols and sea-salt aerosols are not yet implemented in the model, necessarily inducing an underestimation of AOT. Remer (2008) estimates AOT analysing MODIS satellite images. He evaluates a set of 5 year monthly means of AOT at global scale. In this study, AOT varies between 0.1 to 0.3 during winter over Europe, between 0.1 and 0.2 over the North of the Atlantic ocean, except near the African western coast where it can reach 0.4, and ranges from 0 to 0.15 over American eastern coast. These values are of the same order of magnitude as those simulated by MOCAGE, which suggests that AOT distribution modelled by MOCAGE is quite realistic.

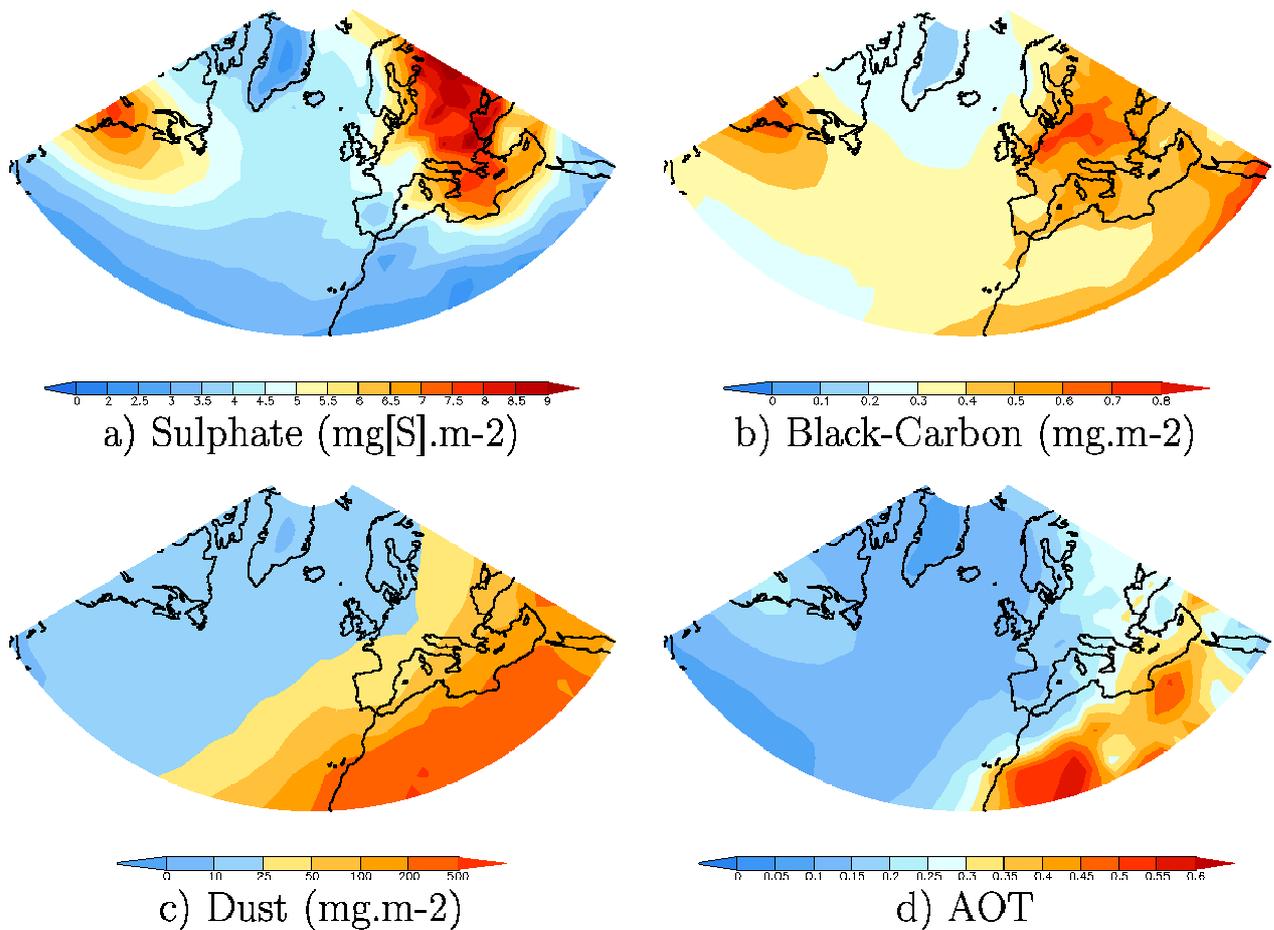


Figure 5.2: Sulphate (mg[S].m^{-2}), black-carbon (mg.m^{-2}), dust (mg.m^{-2}) and Aerosol Optical Thickness (AOT) winter average over 2000-2005 simulated by MOCAGE.

5.3 Aerosol distribution induced by North-Atlantic-European weather regimes

5.3.1 Weather regimes classification

The MOCAGE simulation is driven using operational analysis products. However, the period 2000-2005 is too short to define robust cluster centroids. We have thus classified MOCAGE data onto the 4 weather regimes obtained from the 1958-2001 ERA40 reanalysis product (Gibson et al., 1997; Uppala et al., 2004). The classification is applied to the 500hPa geopotential height (Z500) over the North-Atlantic European region (20°N-80°N, 80°W-40°E). An empirical orthogonal function (EOF) analysis is performed on the daily anomalies of Z500 for the winter (December-February) season. The first 30 EOFs are retained, capturing more than 90% of the total variance. The decomposition of the large scale atmospheric circulation variability into weather regimes is performed in the space spanned by the leading EOFs using the k-means partition algorithm developed by Michelangeli et al. (1995). As in Michelangeli (1995), k was chosen to be four and hence the daily anomalies of Z500 were classified into four clusters, which constitute the optimal partition compared to a classification performed on a multivariate noise.

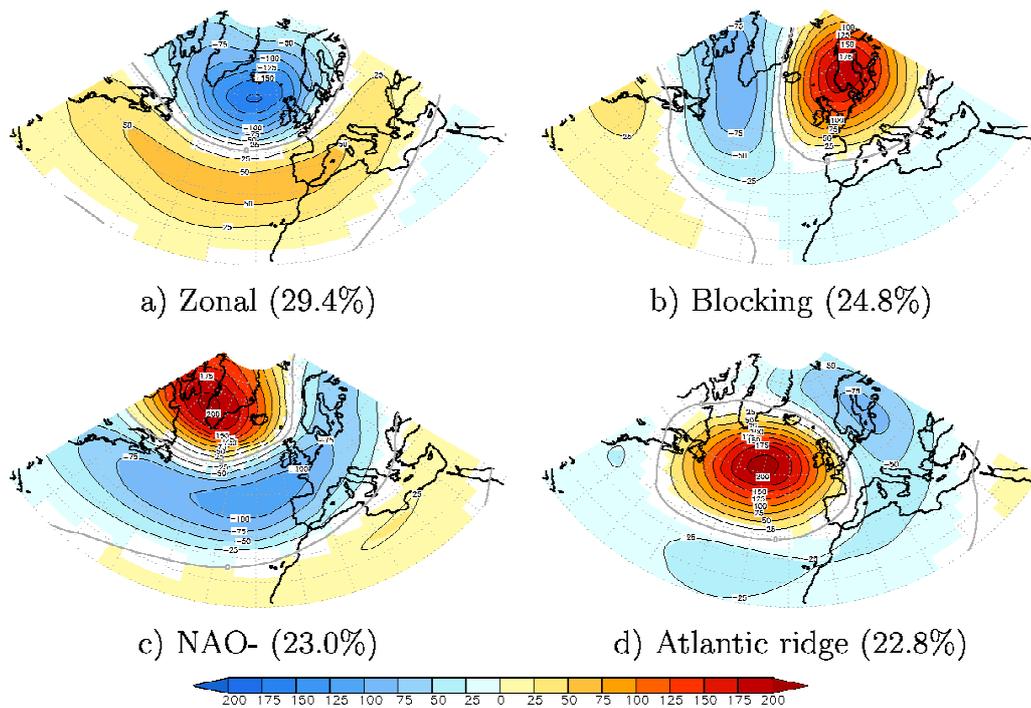


Figure 5.3 : Composites of the anomalies of ERA40 500 hPa geopotential height anomalies (m) corresponding to the four North-Atlantic weather regimes in winter (December-January-February). a) : Zonal, b) : Blocking, c) : NAO-, d) : Atlantic ridge. Weather regime frequencies are written in parentheses. Contour interval : 25m ; 95 % significant values are drawn in colour.

The four weather regimes from the ERA40 reanalysis obtained following this method are represented on figure 5.3. The first regime (Fig. 5.3.a), named Zonal regime, consists of a dipole of anomalies with a negative centre covering the northern North Atlantic Ocean, situated north of a positive centre extending from the eastern American coast to the southern European continent. This regime corresponds to the positive phase of the NAO-. The coloured areas

correspond to anomalies significant at the 95% level, according to a bootstrap test. The second regime (Fig. 5.3.b), named Blocking, displays an anomalous ridge centred over the Scandinavian Peninsula, along with a trough extending southward from the Baffin Bay. The third regime (Fig. 5.3.c), named NAO– (negative NAO phase), consists of a dipole of anomalies with a positive centre over the southern coast of Greenland and a negative centre over the Azores Islands. The Atlantic Ridge regime (Fig. 5.3.d) is dominated by an anticyclonic anomalous core off western Europe flanked to the northeast by a low pressure centre over the Scandinavian Peninsula.

The daily operational analysis of the period 2000-2005 used in our MOCAGE simulation is classified onto the weather regimes already defined. Before performing the classification, the daily anomalies of Z500 for the (December-February) season, are projected onto the first 30 EOFs computed from the ERA40 reanalysis. Each day is attributed to the class for which the Euclidian distance with the cluster centroid from ERA40 reanalysis is minimal. The classification in weather regimes is thus achieved in the space spanned by the leading 30 EOFs of the ERA40 reanalysis.

In MOCAGE simulations, all meteorological variables are provided from analyses of the ECMWF IFS model, except convective precipitation flux, which is computed by MOCAGE. Figures 5.4 and 5.5 show precipitation and wind anomalies associated with each weather regime. Precipitation anomalies are obtained from the classification of the total precipitation flux, which is the sum of a stratiform component issued from the IFS model and a convective component computed in MOCAGE. Wind anomalies originate from a classification of the IFS model analyses.

The zonal regime is characterised by a low pressure system over the North of the domain, inducing a northward shift of the storm track, and therefore more precipitation over Northern Europe and less precipitation over Southern Europe (Fig. 5.4.a). On the contrary, the NAO-regime induces a southward shift of the storm track, associated with less precipitation over Northern Europe and more precipitation over Southern Europe (Fig. 5.4.c). The blocking regime induces a deviation of the storm track toward the northern North Atlantic ocean, associated with less storms reaching northern Europe. The blocking regime is therefore characterised by less precipitation over Europe and more precipitation over Atlantic (Fig. 5.4.b). Finally, the Atlantic ridge induces a slowdown of the westerlies flow, and then less precipitation in the Northeastern Atlantic Ocean (Fig. 5.4.d). The zonal regime is associated with an increased cyclonic circulation in the north of 45°N (Fig. 5.3.a), contrary to the NAO-regime, characterised by an increased anticyclonic circulation in the same region (Fig. 5.5.c). The blocking regime is characterised by stronger southerly winds over the northern North Atlantic ocean (Fig. 5.5.b). The high pressure system over the ocean during an Atlantic ridge episode induces strong northerly winds on the western coast of Europe and Africa (Fig. 5.5.d). The meteorological field variations associated with each weather regime over the North Atlantic basin are expected to have an impact on aerosol concentrations, through the modification of chemical production, deposition and transport of aerosols. These links between the weather regimes and the aerosol distribution are investigated in the next sections.

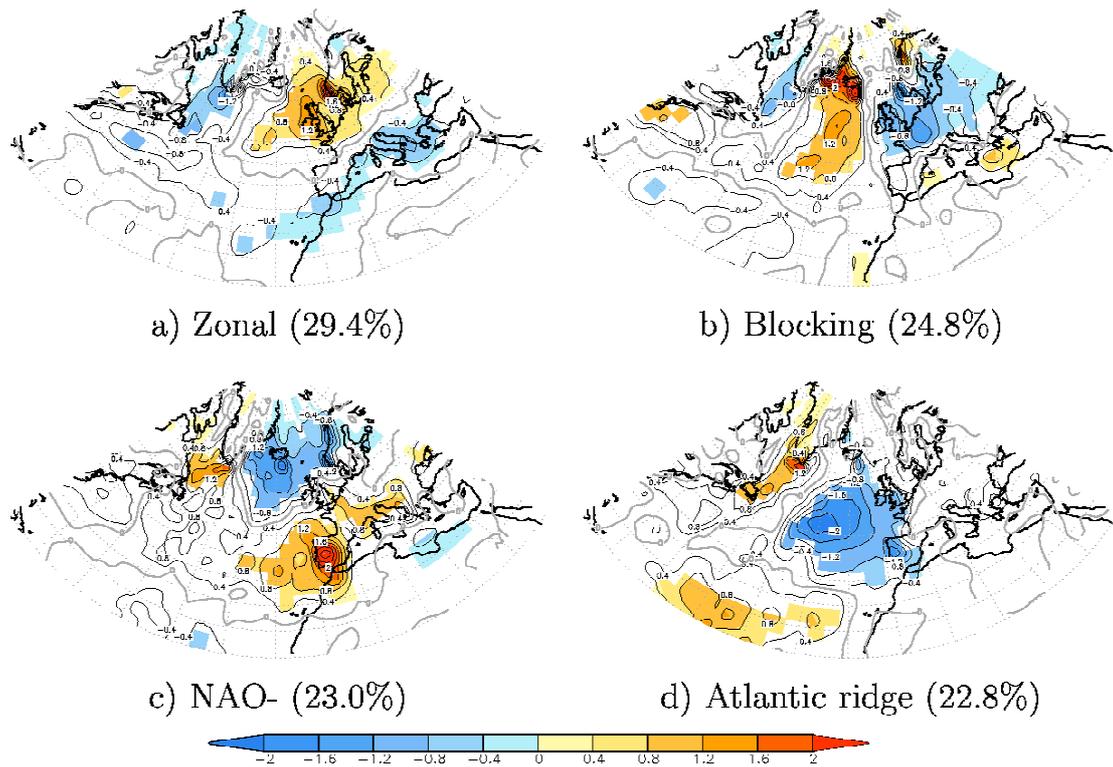


Figure 5.4: Composites of 2000-2005 ECMWF/MOCAGE (see text) liquid precipitation anomalies during the days for which the atmosphere is classified as a): Atlantic ridge, b): Atlantic low, c): Blocking, d): NAO-. Contour interval: 0.4 ; 95 % significant values are drawn in colour.

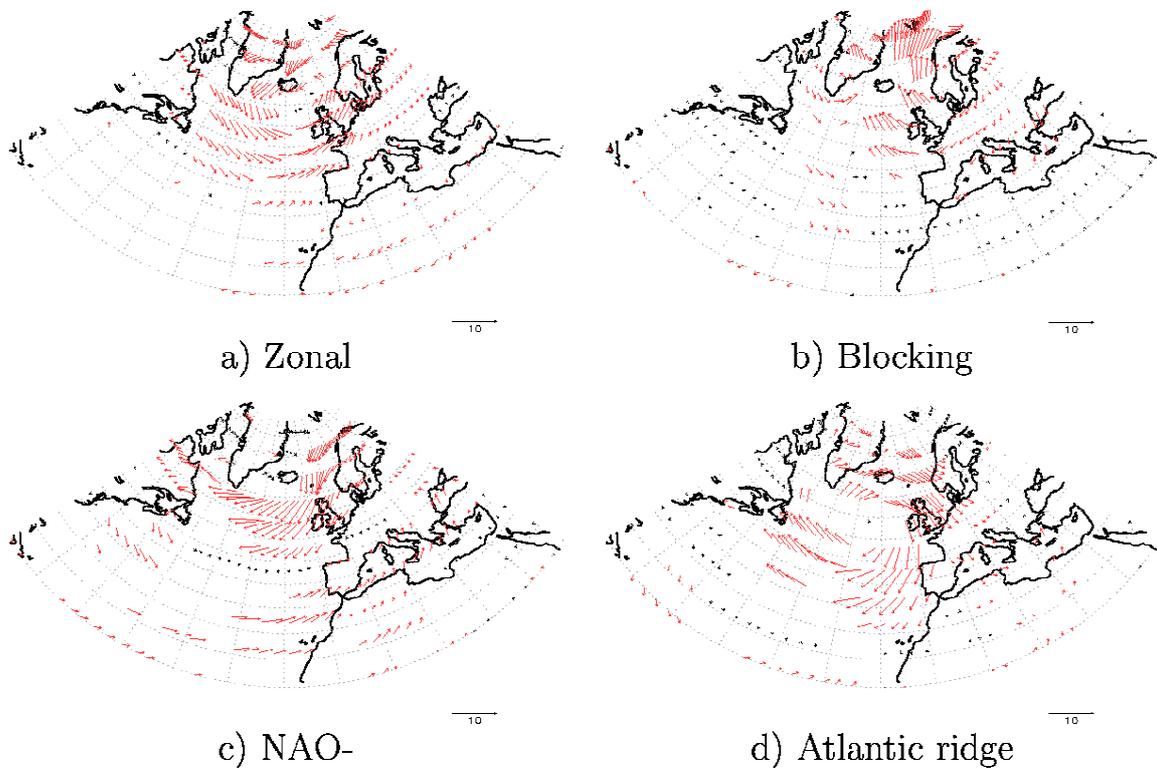


Figure 5.5: Composites of 2000-2005 ECMWF IFS model (see text) wind anomalies during the days for which the atmosphere is classified as a): Atlantic ridge, b): Atlantic low, c): Blocking, d): NAO-. 95% significant values are drawn in red.

5.3.2 Aerosol budget variations associated to weather regimes

The aerosol budget associated with each weather regime is computed as a composite of the days for which MOCAGE data is classified as pertaining to this weather regime. It is presented on table 5.3. We have to keep in mind that we used climatologic dust emissions in our simulation, which does not depend on wind velocities. The representation of dynamical dust emissions is not yet implemented in the version of the model used here. Considering our simulation, we only analyse aerosol burden variations linked to transport and sinks efficiency (except for sulphate sources, which are described by chemical reactions, that depend also on meteorological conditions).

Averaged over the whole NAE region, the differences in the aerosol budget simulated for each weather regime are relatively small: The mean sulphate burden over the North Atlantic region varies by about 5% depending on the weather regime relative to the winter mean. These variations are the result of changes in export of sulphate out of the NAE region, and variations of wet deposition, dry deposition, aqueous and gaseous chemistry production. The export of sulphate out of the NAE region can be modified by a factor 10 depending on the weather regime considered, whereas the variations of the other fluxes do not exceed 10%. The black-carbon burden varies by less than 3% and dry and wet deposition - its two main sinks - vary by no more than 5% depending on the weather regime considered. The mean dust burden undergoes variations by up to 10% depending on the weather regime considered. This is induced by changes of transport outside of the domain, sedimentation, wet and dry deposition, which can vary by 15 % from one weather regime to another for this aerosol.

To evaluate the local differences of the aerosol burden, we computed the composites of burden, sinks and sources of aerosols associated with each weather regimes. The pattern obtained are discussed in the following.

SULPHATE	Zonal	Blocking	NAO-	Atlantic Ridge
Wet Deposition	0.289	0.267	0.290	0.280
Dry Deposition	0.107	0.114	0.115	0.110
Sedimentation	-	-	-	-
Transport	-0.23	0.84	-0.53	-0.42
Aqueous chemistry	0.441	0.410	0.455	0.450
Gaseous chemistry	0.031	0.029	0.026	0.029
Burden	4.419	4.709	4.714	4.659
BLACK-CARBON				
Wet Deposition	0.0145	0.0142	0.0149	0.0136
Dry Deposition	0.0208	0.0232	0.0210	0.0212
Sedimentation	-	-	-	-
Transport	-0.0022	-0.0007	-0.0016	-0.0022
Burden	0.367	0.391	0.387	0.387
DUST				
Wet Deposition	2.05	2.65	2.31	2.98
Dry Deposition	23.05	22.74	22.78	23.23
Sedimentation	5.12	5.02	5.03	5.07
Transport	-9.22	-7.24	-7.85	-8.42
Burden	63.67	70.72	66.54	75.64

Table 5.3: Sinks and Burden of sulphate ($\text{mg[S].m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ and mg[S].m^{-2}), black-carbon ($\text{mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ and mg.m^{-2}) and mineral dust ($\text{mg.m}^{-2}.\text{day}^{-1}$ and mg.m^{-2}) over North-Atlantic region (20°N - 80°N , 80°W - 40°E) in winter (December-January-February) 2000 to 2005 associated to the four weather regimes, Zonal, Blocking, NAO- and Atlantic Ridge. (Transport is positive when turned inside the NAE region).

5.3.3 Zonal regime signature

The zonal weather regime induces significant negative anomalies of the sulphate column all over Europe (Fig. 5.6.a), reaching 1.2 mg[S].m^{-2} over regions where the winter mean sulphate column takes values of about 8 mg[S].m^{-2} . The zonal regime is associated with more precipitation (Fig. 5.2.a) and therefore a moister atmosphere over Northern Europe. For this reason, the aqueous chemical production is increased over Northern Europe (cf. Fig. 5.6.g). Nevertheless, reinforced south-westerly winds transport sulphate produced over Europe toward the Northern Europe, a very humid region, leading to a strong increase of wet deposition (Fig. 5.6.g). This mechanism implies a general decrease of the sulphate burden over Europe. A slight sulphate burden increase is modelled over Northern Africa, due to an increase of aqueous chemistry, not compensated by an increase of wet deposition over this region. A significant negative anomaly of black-carbon column is modelled over Western Europe during zonal regime episodes: a negative anomaly of 0.1 mg.m^{-2} is modelled in particular over England, region with black-carbon winter mean of about 0.5 mg.m^{-2} (figure 5.6.b). Two reasons explain such a decrease: more intense precipitation reinforces wet deposition over western Europe, and increased northward winds (see figure 5.3.a) transport black-carbon from Western Europe highly polluted areas (see figure 5.5.b) to Northern Europe, where wet deposition is very efficient due to high precipitation rates. The zonal regime is also associated with a strong negative anomaly of mineral dust burden over a region extending from Northern Africa to the Black Sea (negative anomaly about 50 mg.m^{-2}) where winter mean column varies between 200 and 500 mg.m^{-2} (Fig. 5.6.c). This negative anomaly is explained by the increase of easterly winds associated with the zonal regime (Fig. 5.3.a), inducing also a strong positive anomaly over the oceanic region located in the West coast of Africa. AOT modelled is a combination of the three aerosols burden taken into account in our simulation. The zonal regime is therefore associated with significant AOT negative anomaly over the whole Europe and Northern Africa. A slight AOT negative anomaly is also pointed out over the North Atlantic ocean. On the contrary, there is an intense positive anomaly over the ocean along West Africa due to dust. During a zonal regime episode, the typical value of AOT decrease is 10% over Africa and Europe, and the typical value of AOT increase is about 20% over Africa.

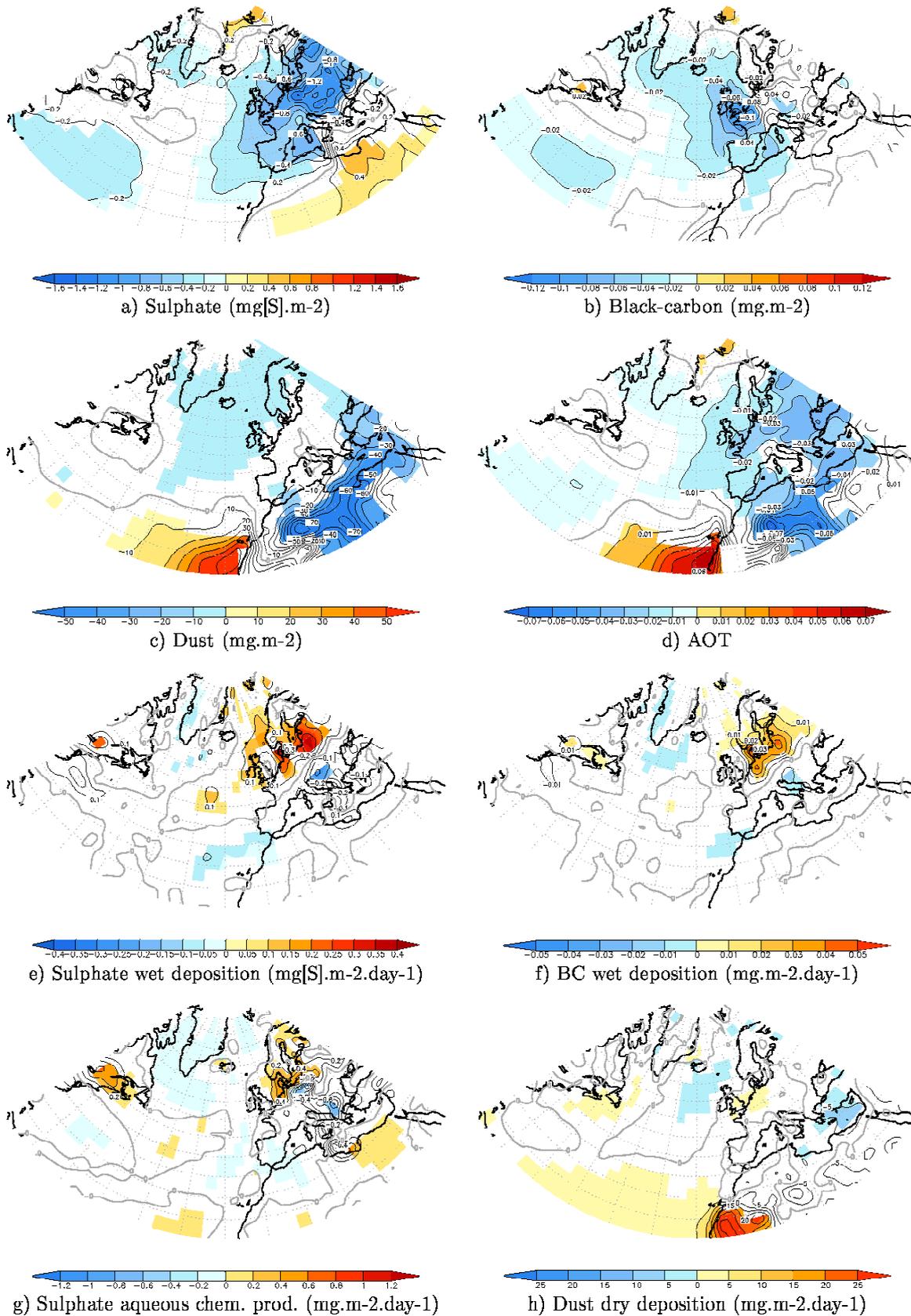


Figure 5.6: 2000-2005 DJF zonal regime anomalies of sulphate burden, black-carbon burden, dust burden, aerosol optical thickness (AOT), sulphate wet deposition, black-carbon wet deposition, sulphate aqueous chemical production and dust dry deposition over North Atlantic region ; 95 % significant values are drawn in colour

5.3.4 Blocking regime signature

The blocking regime is associated with an enhancement of 20% of the sulphate burden over Southern Europe in comparison with the winter mean (Fig. 5.7.a). During this weather regime, the atmosphere is drier over polluted central Europe areas, and aqueous chemical production is therefore less active (Fig. 5.7.g), but wet deposition is also less efficient (Fig. 5.7.e). Such a situation implies a decrease of the sulphate burden over Scandinavia whereas combined with reinforced northerly winds (Fig. 5.3.b), it favours an increase of the sulphate burden modelled over the Mediterranean sea. Negative anomalies modelled over Scandinavia are linked to strong south-westerly winds associated with the blocking regime (Fig. 5.3.b). The black-carbon burden associated with the blocking regime is increased over Western and Southern Europe (by 20%, Fig.5.7.b) and decreased over Scandinavia, essentially because of the atmospheric circulation induced by this regime. North-easterly winds transport Black-carbon from North-eastern Europe to West and South Europe. This tendency is reinforced by low levels of wet deposition over Northern Europe (5.7.f). Weak dust anomalies are modelled for the blocking regime over two regions: negative anomalies about 10 mg.m^{-2} over tropical Atlantic, and positive anomalies between 10 and 50 mg.m^{-2} over Morocco and Algeria (Fig. 5.7.c). These anomalies are explained by wind anomalies associated with the Blocking regime. AOT anomaly is mainly driven by sulphate and black-carbon anomalies during blocking regime episodes, largely positive all over Western Europe (20% increase) and negative over the Scandinavian region (10% decrease) (Fig. 5.7.d).

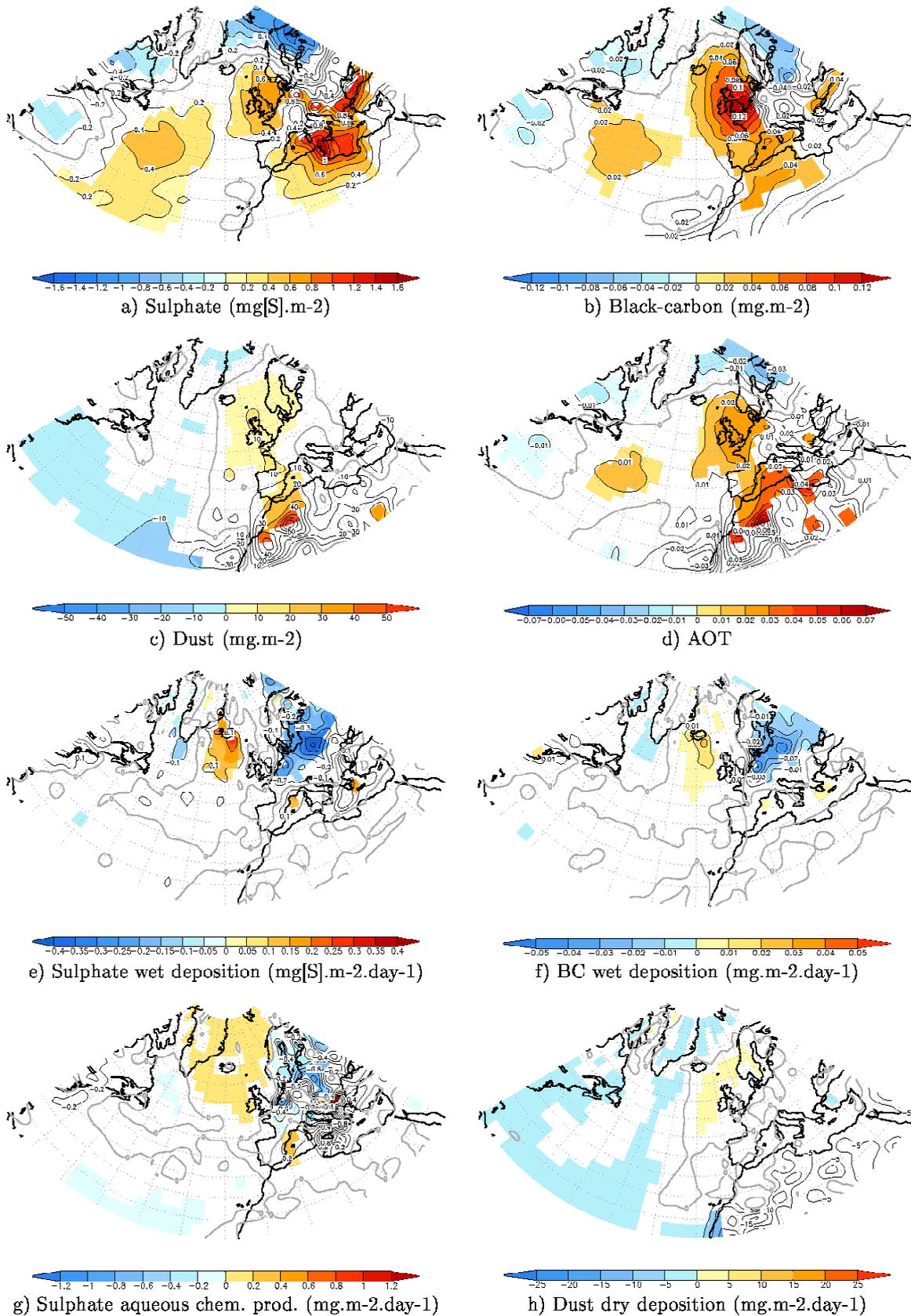


Figure 5.7: 2000-2005 DJF blocking regime anomalies of sulphate burden, black-carbon burden, dust burden, aerosol optical thickness (AOT), sulphate wet deposition, black-carbon wet deposition, sulphate aqueous chemical production and dust dry deposition over North Atlantic region ; 95 % significant values are drawn in colour

5.3.5 NAO- regime signature

The NAO- regime is associated with strong positive sulphate and black carbon anomalies over Europe (between 0.4 and 1.4 mg[S].m⁻² for sulphate and 0.04 and 0.06 mg.m⁻² for black-carbon), and negative anomalies over Africa for these aerosols (between -0.4 and -1.4 mg[S].m⁻² for sulphate and around -0.04 mg.m⁻² for black-carbon; see figure 5.8.a and 5.8.b). The accumulation of sulphate over Europe, combined with a decrease of sulphate burden over the Mediterranean sea and Northern Africa, is probably linked with the atmospheric circulation (Fig. 5.3.c). Wind anomalies may limit the discharge of sulphate from Europe. Wet deposition and aqueous chemical production anomalies have low level of significance over the NAE region during the NAO- phase (Fig. 5.8.e and 5.8.g). However, an increase of aqueous chemistry production over Europe (Fig. 5.8.g) - more intense than the increase of wet deposition modelled over this region (Fig. 5.8.e) - could reinforce the accumulation of sulphate over the European continent. An accumulation of sulphate is also modelled over tropical Atlantic, about 0.4 to 0.6 mg[S].m⁻², linked to a southward shift of westerlies, which transport both sulphate and SO₂ over this region. For this reason, aqueous chemistry is also reinforced in this region (Fig. 5.8.g). The black-carbon burden is also accumulated over Scandinavia – with anomalies between 0.02 and 0.06 mg.m⁻² - due to a decrease of wet deposition. Over Western Tropical Atlantic, reinforced westerlies imply slight black-carbon positive anomalies. Negative dust anomalies reaching 50 mg.m⁻² are noticed over the Atlantic ocean, close to Africa, due to a decrease of the easterlies which limit the transport of dust from the Sahara to the Atlantic ocean. This process explains also the dust positive anomaly modelled over North Africa. As a consequence of these aerosol burden anomalies, NAO- regime signature in AOT is characterised by a negative anomaly near the western African coast (15% decrease), linked to low dust burden, and by two positive anomalies over Western Tropical Atlantic (20% increase) and Northern Europe (10% increase), linked to strong accumulations of sulphate and black-carbon.

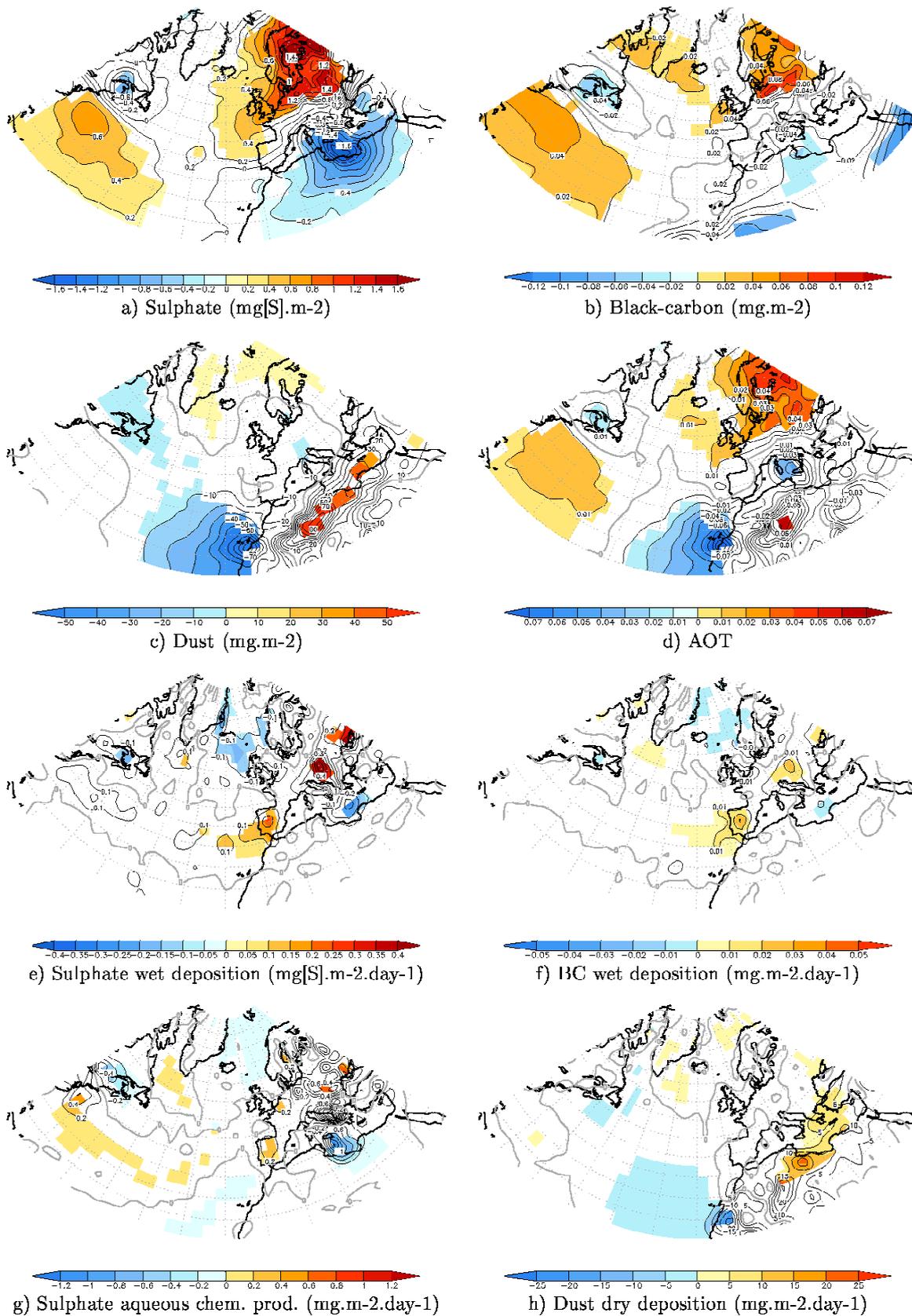


Figure 5.8: 2000-2005 DJF NAO- regime anomalies of sulphate burden, black-carbon burden, dust burden, aerosol optical thickness (AOT), sulphate wet deposition, black-carbon wet deposition, sulphate aqueous chemical production and dust dry deposition over North Atlantic region ; 95 % significant values are drawn in colour

5.3.6 Atlantic ridge signature

The Atlantic ridge signature in sulphate burden is characterised by negative anomalies over the centre of the North Atlantic ocean and North-western Europe – with values from 0.2 to 0.4 mg[S].m^{-2} – and positive anomalies over South-Western Europe and Northern America – with values from 0.2 to 0.6 mg[S].m^{-2} – (Fig. 5.9.a). The positive anomalies over South-Western Europe are linked both to reduced westerly winds (Fig. 5.3.d), and to a more active aqueous chemical production over Central and South-Western Europe (Fig. 5.9.g). Due to strong emissions of sulphur compounds in Northern America, reduced westerly winds over the Atlantic ocean induces a negative sulphate anomaly over the Atlantic ocean and a positive sulphate anomaly over America. The sulphate wet deposition negative anomaly over the Atlantic ocean is probably not due to a change in meteorological conditions. But it may be associated directly with the decrease of sulphate concentration over this region. The negative anomaly of sulphate modelled in North-western Europe is linked to positive anomalous north-westerly winds (Fig. 5.3.d). The black-carbon burden shows a negative anomaly over the North Atlantic centre from 0.02 to 0.08 mg.m^{-2} and positive anomalies over Western Europe and Northern America reaching 0.06 mg.m^{-2} (Fig. 5.9.b). Such distribution anomalies are due to the Atlantic ridge wind anomalies (Fig. 5.3.d), inducing a transport of BC from Northern to South-Western Europe. A strong positive dust anomaly with values between 20 and 50 mg.m^{-2} is modelled over Eastern Africa. It is linked with the increase of northwest winds (Fig. 5.3.d), transporting dust on the southwest of the NAE region. A weaker positive dust anomaly with values between 0 and 20 mg.m^{-2} covers most of the North Atlantic Ocean. It is induced by weaker dust wet deposition (not shown). The AOT distribution associated to the Atlantic ridge regime is therefore characterised by positive anomalies over Africa and Southern Europe (10% increase) and negative anomalies over North-Western Europe (10% decrease).

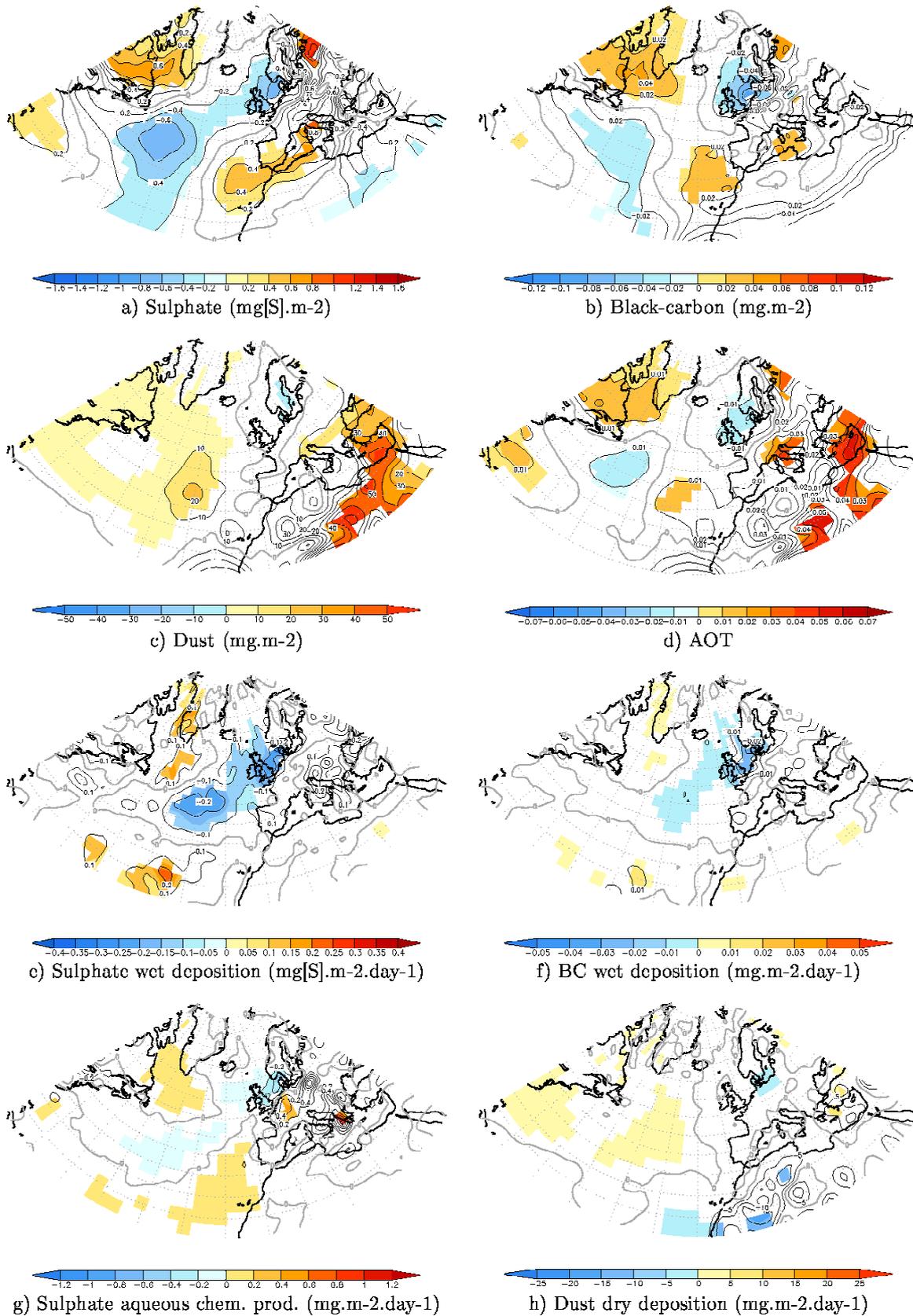


Figure 5.9: 2000-2005 DJF Atlantic ridge regime anomalies of sulphate burden, black-carbon burden, dust burden, aerosol optical thickness (AOT), sulphate wet deposition, black-carbon wet deposition, sulphate aqueous chemical production and dust dry deposition over North Atlantic region ; 95 % significant values are drawn in colour

5.4 Feedback of the aerosol distribution on the weather regimes

It has been shown in the previous section that weather regimes can affect the aerosol burden up to 20%. A new question arise from this result : can aerosol burdens exert in turn an influence on weather regimes. To assess the impact of these aerosol burden anomaly patterns, experiments are conducted in which an AGCM is forced by the North Atlantic aerosol burdens anomalies showed in figures 5.6 to 5.9.

5.4.1 The ARPEGE global climate model

The atmospheric model used for these experiments is the ARPEGE-Climat version 4 AGCM (Déqué *et al.*, 1999, Gibelin and Déqué, 2003). The model has 31 vertical levels extending up to 10 hPa using a hybrid sigma-pressure vertical coordinate, and a 2.8° horizontal resolution. The semi-lagrangian advection scheme allows for a 30-mn time step. The ISBA Soil-Vegetation-Atmosphere Transfer model, described by Mahfouf *et al.* (1995) is included in ARPEGE-Climat. It contains a detailed snow cover formulation (Douville *et al.*, 1995a and 1995b). Soil and vegetation properties are prescribed from the global high-resolution ECOCLIMAP dataset (Masson *et al.*, 2003). The radiative scheme used in ARPEGE is the FMR (Fouquart-Morcrette-Radiation) scheme (Dandin and Morcrette, 1996), describing the absorption and emission in the long wave radiation and reflection, scattering and absorption in the solar radiation. There are two wide wave bands (0.25 μm -0.68 μm and 0.68 μm -0.4 μm) in the shortwave radiation calculation. Reflection, scattering and absorption by gases, aerosols and clouds are computed by applying a two-stream method together with a photon path distribution method (Fouquart and Bonnel, 1980). Longwave radiation is computed by broad band flux emissivity method with six wide wave bands covering the spectrum between 0 and 2620 cm^{-1} without scattering process.

The aerosols direct effect, i.e. aerosol aptitude to scatter and to absorb solar radiation, is taken into account in ARPEGE-Climat as presented by Rongming *et al.* (2001). It is based on vertically integrated AOT, single scattering albedo and asymmetry factor for each aerosol. Representation of these parameters was originally done following the works of Tanré *et al.* (1984) and Dandin and Morcrette (1996). Tanré *et al.* (1984) consider 5 types of aerosols: continental, maritime, urban, desert and stratospheric aerosols. In the model, for each type of aerosol, a specific vertical profile is applied to “verticalize” 2D AOT inputs (Fig. 5.10). The sulphate aerosol representation was originally added by Rongming *et al.* (2001), leading to a total of six aerosol types represented in ARPEGE-Climat. In our simulation, we used the Tegen *et al.* (1997) AOT representation for continental aerosols (limited to organic aerosols on its description), sea-salt aerosols, and background stratospheric aerosols. Background stratospheric aerosols concern volcanic aerosols that penetrate into the stratosphere, and sulphate aerosols issued from the oxidation of Carbonyl Sulphide (OCS), a compound which is chemically inert on the troposphere but which is oxidised in sulphate in the stratosphere (Turco, 1980). In our simulation, black-carbon, dust and sulphate AOT monthly means were computed from our 2000-2005 MOCAGE simulation. MOCAGE aerosols burden were vertically integrated and converted into 2D AOT following Tegen (1997). It would have been interesting to directly use 3D AOT from MOCAGE in ARPEGE but this could not be done easily for this study.

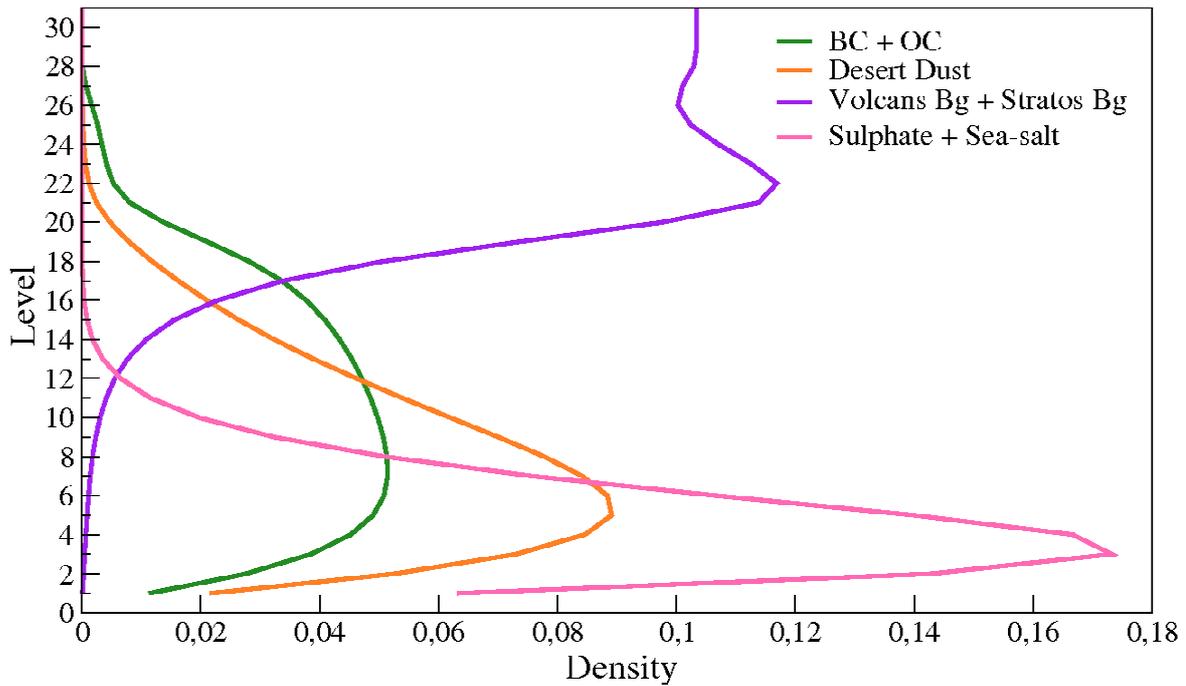


Figure 5.10 : Aerosol profile prescribed in the 31 levels ARPEGE-Climat model

An increase in sulphate aerosol can increase the number of Cloud Condensation Number (CCN) taken a constant cloud liquid water content, this leads to a larger concentration of cloud droplets of small radius, and then to an enhancement of cloud reflectivity (Twomey, 1977). This effect, named “first indirect effect”, is very difficult to quantify, and has been discussed many times (IPCC, 2007 ; Heintzenberg and Charlson, 2008). Moreover, Global climate models resolution is often too coarse to describe it correctly. One single relationship between sulphate concentration and cloud droplets concentration (CDN) is however classically used for climate study (Boucher, 1995) :

$$C_{dn} = 10^{a+b \log(mSO_4^{2-})}$$

where mSO_4^{2-} is the sulphate mass expressed in μgm^{-3} and C_{dn} is CDN in cm^{-3} .

Many different values of a and b coefficients have been proposed. In our ARPEGE-Climat simulations, we used those recently updated by Quaas (personal communication, 2005) :

$$a=1.7 \text{ and } b=0.2$$

In ARPEGE-Climat, the effective radius of cloud liquid water droplets and then the AOT, the asymmetry factor and the single scattering albedo of clouds, all depending on CDN, liquid water content and liquid water path, are then computed as it is detailed in Rongming et al. (2001).

5.4.2 Atmosphere-forced experiments

Five experiments are conducted : one control experiment named CTL, using an average AOT from the CTM simulation, and four experiments to test the sensitivity of the atmosphere to the pattern of aerosol burden associated with each weather regime in the 20°N-80°N, 80°W-40°E domain. These experiments are forced with the anomaly patterns of the Zonal, Blocking, Atlantic Ridge and NAO- regimes. They are respectively named AER-ZO, AER-BL, AER-NAO and AER-AR. The CTL experiment is forced with a monthly climatology of aerosols,

computed as the monthly mean of the 2000-2005 MOCAGE simulation presented in the paragraph 5.2.3. In the other four experiments, the aerosols fields are computed by adding the aerosol anomaly patterns shown in Figs. 5.6 to 5.9 to the 2000-2005 monthly mean used on the CTL experiment. Each of these five experiments consists of an ensemble of 50 simulations of the winter (December-February) season starting from 50 different initial conditions for the 1st of December. The greenhouse gases are fixed to the 1990 value. The monthly climatology sea surface temperature of Reynolds et al (2002) is prescribed as surface boundary conditions, with a conservative quadratic interpolation between consecutive months.

5.4.3 Impact of the aerosol distribution on the weather regimes persistence

The daily large scale atmospheric circulation from these five experiments is classified into the four weather regimes obtained from the ERA40 reanalysis. The method is the same as the one used to classify MOCAGE data. We consider as weather regime episode those lasting at least three consecutive days, as considered in Sanchez-Gomez and Terray (2005). This hypothesis is justified by the persistence properties of the weather regimes (Michelangeli et al,1995). The excitation and associated transitions of the four weather regimes are mainly controlled by internal atmospheric dynamical processes, but external forcings are expected to stabilize or destabilize the atmospheric circulation state. The potential role of aerosol concentration anomalies is assessed by evaluating their ability to influence the mean persistence of each weather regime.

First of all, no difference is detected between the experiments neither in the frequency of occurrence nor in the spatial characteristics of the weather regimes. We only detect differences in the persistence of weather regimes. From the four sensitivity test AER-ZO, AER-BL, AER-NAO and AER-AR, several impacts of aerosol distribution on weather regime persistence were pointed out. Some of them are not significant according to a two-sided bootstrap test, and therefore are not presented here. Two of them, found significant, are described in the following:

We find that the mean persistence of the NAO- regime is reduced by 1.78 days when the atmosphere is forced with the pattern of aerosol induced by the Zonal regime instead of the climatology (CTL) with a p_value equal to 0.086 according to our two-sided test. During an occurrence of the Zonal regime, the pattern of aerosol anomalies named AER-ZO will be forced by the atmosphere. Then, if due to an internal atmospheric dynamical process, a transition from the Zonal regime to the NAO- regime is produced, the AER-ZO pattern will tend to destabilize the NAO- regime.

The mean persistence of the Zonal regime is reduced by 0.88 days when the atmosphere is forced with the pattern of aerosol induced by the Blocking regime instead of the climatology (CTL) with a p_value equal to 0.116 according to a two-sided test. Similarly, during a transition from the Blocking regime to the Zonal regime, the interaction with the aerosol will tend to destabilize the Zonal regime.

5.5 Discussion

As presented in section 1.3.4, the zonal regime is associated with strong negative anomalies of sulphate and black-carbon over the whole Europe (Fig. 5.6). During the occurrence of this regime, dust burden takes negative anomalies over North Africa and positive anomalies above the Atlantic part which borders the west of Africa. The change of aerosol burden in the AER-ZO experiment has directly or indirectly - through all climate feedbacks - an impact on the radiative fluxes modelled over the NAE region as we can see on figure 5.11. This figure shows the difference between radiative fluxes simulated in the AER-ZO (made with the zonal aerosol distribution) and in the CTL (made with the standard winter average aerosol distribution) during the NAO- phase.

Radiative fluxes anomalies can not be linked easily to the pattern of the aerosol burden anomalies, because of the involvement of many climate retroactions, in particular those which concern cloud feedbacks. In our experiment, the solar radiation fluxes anomalies at the top and the bottom of the atmosphere (Fig. 5.11.a and b) have very low significance levels. However, the positive anomaly of surface solar radiation modelled over the Sahara (keep in mind that positive fluxes are oriented downward) is probably due to the negative anomaly of dust burden associated with the zonal regime (Fig. 5.6.c). On the West of North Africa, a negative anomaly of surface solar radiation may be induced by both positive dust burden anomalies (Fig. 5.6.c) and positive cloud amount anomalies over this region (Fig. 5.11.e and f). Longwave flux at the surface shows a negative anomaly over Northern Europe (Fig. 5.11.c), induced by a decrease of both high and low cloud amount over this region. It shows also a positive anomaly on the West of North Africa, certainly due to high cloud amount ((Fig. 5.11.g and h).

The radiative fluxes do not exceed anomalies from -8 to 4 W.m^{-2} (Fig. 5.11), whereas sensible and latent heat fluxes are strongly modified over the Atlantic in our AER-ZO experiment (5.12.g and h), with values from -10 to $+10 \text{ W.m}^{-2}$. We have to keep in mind that we used the same SST forcing in all our experiments. Turbulent fluxes differences originate therefore only from thermo-dynamical processes on the atmosphere. Turbulent fluxes tend to strongly warm the atmosphere in the South West of Greenland and to cool it on the Northern coast of Europe (note that positive fluxes are oriented downward). In an idealized atmosphere where the potential vorticity is uniform, a warm (cold) surface anomaly is associated with a cyclonic (anticyclonic) anomaly in the mid-troposphere downstream of the surface anomaly. This type of atmospheric response corresponds to a transient response to a surface anomaly. These baroclinic transient responses can interact with the barotropic structure of the weather regimes. In our simulation, the surface variations of the heat fluxes should destabilize the NAO- regime, characterised by an high pressure system over Greenland and low pressures over Europe and tropical Atlantic (Fig 5.1). It could be an explanation for the 1.78 days decrease of the NAO-regime persistence modelled on the AER-ZO experiment.

As we said previously, the atmospheric energy balance is quite difficult to link with aerosol distributions, due to all the interactions that occur in the climate system, and in particular through cloud feedbacks. Considering shortwave fluxes, the signature of sulphate is not pointed out between AER-ZO and CTL experiments, whereas this aerosol is known to strongly scatters solar radiation. The same conclusion is drawn for absorbing black-carbon. Further simulations conducted with on-line diagnostics of aerosol forcing could help understanding more accurately the impact of the aerosol distribution associated with the zonal regime on the NAO-persistence. An equivalent analyse could be performed to explain the decrease in the zonal

regime persistence in a winter simulation forced by the aerosol distribution associated with the Blocking regime.

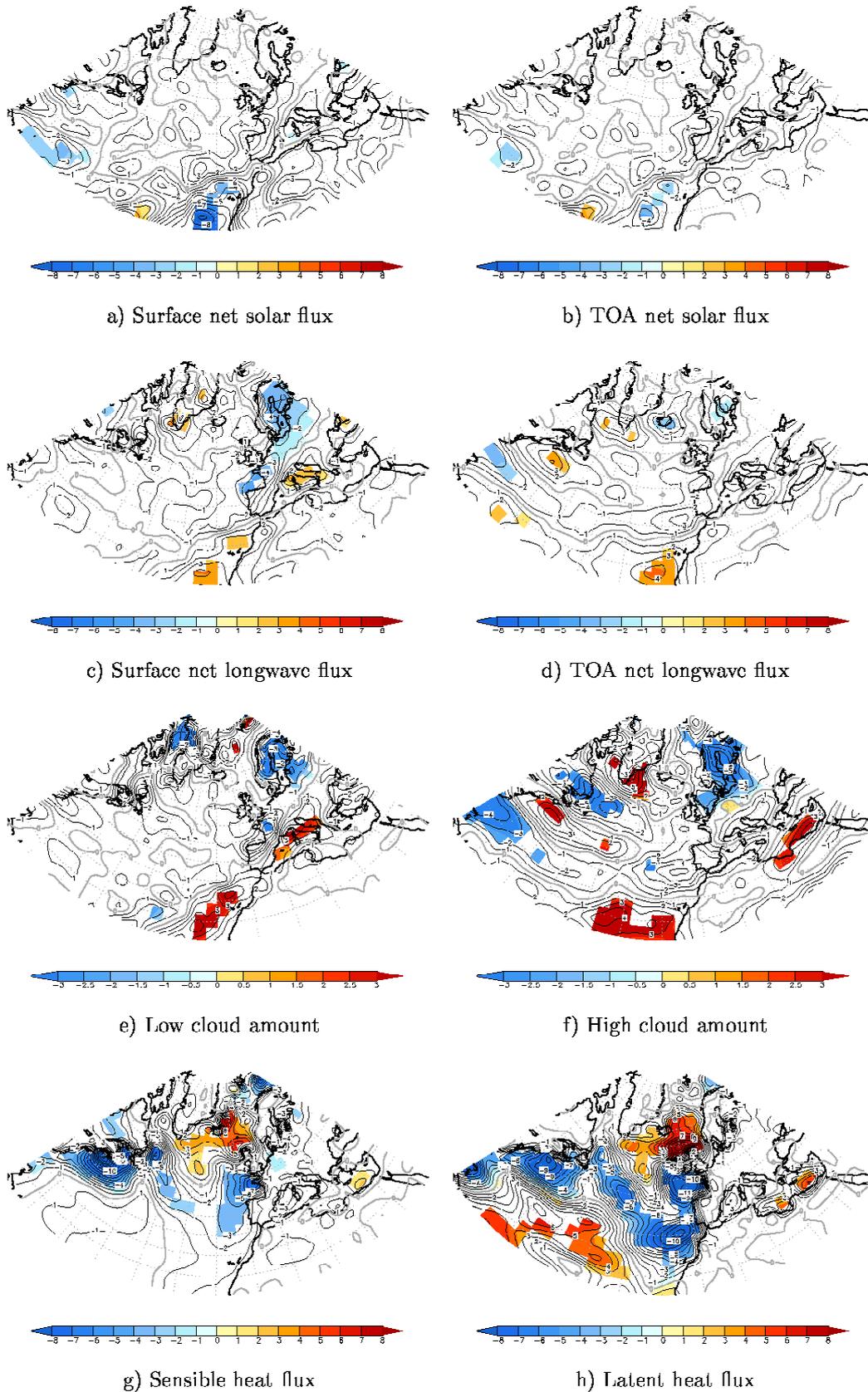


Figure 5.11 : Heat fluxes differences in $W.m^{-2}$ and low and high cloud amount differences (%) (AER-ZO – CTL) during the NAO- regime (see text). Positive fluxes are directed downward.

5.6 Conclusion

This study focuses on the interactions between aerosol atmospheric concentrations and winter weather regimes in the North Atlantic European Region (20°N-80°N,80°W-40°E). It is divided into two parts. In the first part, the Chemical-Transport Model MOCAGE is used to perform a simulation from 2000 to 2005, using the meteorological data of the ECMWF IFS model. The aerosol burden anomalies induced by each weather regime are assessed, analysing aerosol sinks and sources anomalies, and evaluating the modifications of the aerosol transport involved by wind anomalies. Atmospheric dynamical processes associated with the different weather regimes can impact by up to 20% the columns of sulphate, black-carbon and dust. In a second part, the pattern of aerosol anomalies associated with each weather regime are used to force experiments performed with the ARPEGE-Climat model. These experiments are used to discuss the role of the aerosol concentration in the atmosphere onto the weather regime persistence or their transition toward another weather regime. The mean persistence of the NAO- and the Zonal regime are reduced by 1.78 and 0.88 days respectively when the atmosphere is forced with the patterns of aerosol induced by the Zonal regime and the Blocking regime respectively. This suggests that the interaction with the atmospheric aerosol concentration could destabilize the NAO- regime which occurs after a Zonal episode. Same conclusion can be exposed for a Zonal regime which occurs after a Blocking episode.

The destabilization of the NAO- regime due to an aerosol forcing corresponding to the Zonal regime is linked to modifications in the atmospheric energy budget in our simulation. The aerosol radiative forcing associated with all the climate retroactions, and in particular with clouds feedback, induces strong modifications of turbulent fluxes over the Atlantic ocean, which destabilize the high pressure system over the Greenland characteristic of the NAO-phase. Further simulations, using an AGCM with diagnostics of the aerosol radiative forcing could help distinguish this forcing from all the climate retroactions and assess more accurately the impact of the aerosols distributions associated with each weather regime.

Conclusion et perspectives

Les observations de l'atmosphère terrestre effectuées depuis le début du vingtième siècle ont permis de mettre en évidence l'impact des activités humaines sur le système climatique. A l'aide d'analyses physiques et statistiques, ainsi qu'à partir d'expériences de modélisation rendues possibles par les progrès de l'informatique, la communauté scientifique a ainsi pu montrer que le réchauffement climatique global observé était relié aux gaz à effet de serre injectés dans l'atmosphère par les hommes. Cependant, de nombreux processus, naturels et d'origine anthropique doivent encore être explorés pour permettre une meilleure compréhension de la variabilité climatique. En particulier, la présence d'aérosols dans l'atmosphère modifie significativement le flux solaire atteignant les différentes couches de l'atmosphère ainsi que la surface terrestre. De plus, les aérosols, en jouant le rôle de noyau de condensation, permettent la formation des nuages et des précipitations. Analyser les concentrations atmosphériques en aérosols et l'impact de ces particules sur le bilan radiatif de la terre est une des étapes importantes pour mieux comprendre les évolutions du climat. Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit s'inscrit dans ces thématiques.

Le premier chapitre de cet ouvrage a synthétisé les connaissances de la communauté scientifique sur la problématique du lien entre aérosols et climat, ainsi que l'ensemble des moyens utilisés par cette communauté. Le deuxième chapitre a décrit en détail l'outil qui a été utilisé pour réaliser ce travail de thèse, le modèle de Chimie-Transport « MOCAGE » du CNRM-GAME. Les troisième et quatrième chapitres ont présenté une évaluation des simulations réalisées avec MOCAGE, au travers d'analyses à la fois régionales et globales de la distribution atmosphérique en aérosol. Le cinquième chapitre a ouvert la porte de l'étude de l'interaction aérosols-climat par l'utilisation de MOCAGE, en se focalisant sur une étude des interactions atmosphère-aérosols dans l'Atlantique Nord.

MOCAGE : un modèle en perpétuelle évolution

Travailler avec un modèle d'atmosphère est synonyme de travail en équipe : le modèle MOCAGE a été mis en place par plusieurs personnes à la fois. Au fur et à mesure du déroulement de cette thèse, nous avons modifié ses objectifs en fonction de l'évolution permanente du travail de chacune de ces personnes. Plusieurs versions de ce code sont développées simultanément. Une version « opérationnelle » a pour objectif de réaliser des prévisions de l'évolution chimique de l'atmosphère, alors qu'une version « climat » est actuellement développée pour permettre la réalisation de simulations longues. Dans le cadre de cette thèse, une nouvelle version a été mise en place, hybride des deux précédentes, pour réaliser des simulations des aérosols sur plusieurs années. Historiquement, le modèle MOCAGE, limité au départ à la représentation des composés atmosphériques gazeux, a été adapté pour représenter le comportement des aérosols de carbone-suie en 2003. Cela a été ensuite le tour des poussières minérales, puis des sels marins. Enfin, la représentation du sulfate, espèce faisant intervenir la chimie du soufre, a été intégrée au modèle dans le cadre de ce travail de thèse. Modéliser le cycle du soufre nécessite la description de la distribution spatio-temporelle de plusieurs oxydants. Une climatologie de ces champs a été construite à partir d'une simulation MOCAGE réalisée avec un schéma chimique détaillé. Nous avons ensuite réalisé des simulations avec un schéma chimique simplifié, limité à la description du

cycle du soufre, et utilisant ces climatologies d'oxydants. Ce type de configuration a déjà été utilisée et validée par nombre de modélisateur des aérosols. Dans notre cas, une version de MOCAGE « allégée » et robuste, permettant de réaliser des simulations globales pluri-annuelles a ainsi été mise au point. Cette étape constitue un premier pas vers la réalisation de simulations climatiques dont l'objectif est d'étudier les rétroactions des aérosols sur le climat. A partir de cette version, nous avons mis en évidence les principaux processus pilotant les évolutions de l'aérosol et nous avons évalué la capacité du modèle à les représenter. Trois espèces ont été étudiées dans ce travail de thèse : le sulfate, le carbone-suie et les poussières minérales.

Mise en évidence des processus qui gouvernent la charge atmosphérique en aérosols

Le sulfate est principalement issu de l'oxydation du SO₂, qui peut avoir lieu à la fois en phase aqueuse et en phase gazeuse. Environ 80% des émissions de SO₂ sont issues des activités anthropiques, alors que 20% proviennent de l'oxydation du DMS, espèce émise par les océans. Le carbone-suie est majoritairement émis par les activités anthropiques et les feux de biomasse. Les émissions de poussières minérales sont essentiellement issues de l'arrachement des particules par le vent dans les déserts. Les activités humaines émettent aussi des particules minérales, mais ces sources sont peu connues et n'ont pas été prises en compte dans nos simulations.

Nous avons pu relever dans nos expérience les principaux puits associés à chaque aérosols : le dépôt humide constitue le puits largement majoritaire pour le sulfate. Le carbone-suie est éliminé de l'atmosphère principalement par lessivage, mais le dépôt sec joue aussi un rôle important pour cet aérosol. Le dépôt sec est le puits principal pour les poussières minérales, suivi par le dépôt humide et la sédimentation. Au travers des analyses régionales et globales des différentes simulations réalisées dans le cadre de cette thèse, nous avons évalué la capacité du modèle MOCAGE à représenter l'ensemble des principaux puits et sources de ces aérosols.

Modéliser le sulfate... et optimiser le lessivage des aérosols dans les simulations

Le cycle du soufre a été analysé dans trois régions différentes : l'Europe, où les émissions anthropiques de SO₂ sont très fortes, l'Antarctique, région où les composés soufrés sont exclusivement d'origine naturelle, et l'Arctique, région où les émissions de SO₂ sont faibles, mais où l'on relève un transport important de SO₂ et de sulfate depuis les régions anthropisées situées plus au sud. Le modèle que nous avons utilisé représente de manière réaliste les distributions géographiques de sulfate dans les trois régions qui concernent notre étude. Cependant, les concentrations de sulfate sont généralement surestimées en surface. Cette surestimation a été reliée à une sous-estimation du dépôt humide dans le modèle. A partir d'une expérience de sensibilité, nous avons proposé une nouvelle version de la paramétrisation du lessivage, qui semble plus réaliste. Cependant, elle devra encore être optimisée, notamment en prenant en compte la représentation du lessivage par les précipitations solides. Celle-ci s'est avérée essentielle dans notre analyse, notamment aux hautes latitudes. On trouvera à ce propos en annexe la description d'une simulation prenant en compte le lessivage par les précipitations solides, simulation qui nous a permis de décrire de manière optimale l'évolution de la concentration atmosphérique en sulfate. La paramétrisation du lessivage utilisée dans le modèle est basée sur une relation empirique, dont certains coefficients sont calés sur des observations de l'efficacité de transfert des aérosols vers le milieu précipitant. Le calage de ce paramètre nécessitera peut-être des observations supplémentaires pour ce qui concerne les nuages en phase glace.

Modéliser le bilan global d'aérosols, sensibilité aux champs météorologiques

Dans les trois régions concernées par nos analyses, la charge en aérosol présente un cycle saisonnier très marqué, fortement liée à l'évolution saisonnière des conditions météorologiques, qui pilotent l'efficacité de la production chimique de sulfate et celle des différents puits d'aérosols. Etant donné la forte dépendance de la concentration atmosphérique en aérosols aux variables météorologiques, nous avons souhaité évaluer les différences entre des expériences de modélisation réalisées avec différents forçages météorologiques. La même simulation a été réalisée avec les forçages météorologiques issus des analyses du modèle de prévision ARPEGE de Météo France, et celles du modèle IFS du CEPMMT. Un dernier test a été réalisé avec les forçages issus du MCG ARPEGE-Climat. Dans le même temps, ces simulations ont été comparées avec les simulations de quatre modèles ayant participé au projet AEROCOM. La variabilité de la charge en sulfate associée à l'utilisation de différents forçages météorologiques est du même ordre de grandeur que celle relevée entre les différentes simulations réalisées par les modèles AEROCOM. Les simulations MOCAGE réalisées avec les forçages météorologiques issus du modèle de prévision ARPEGE ou du MCG ARPEGE-Climat surestiment le temps de résidence et la charge des aérosols de sulfate et de carbone-suie. Cela est relié à une sous-estimation du flux de précipitation, qui induit elle-même une sous-estimation des flux de lessivage. Ce biais est nettement diminué dans les simulations réalisées à partir des forçages météorologiques issus du CEPMMT. Dans cette simulation, des précipitations plus intenses induisent des flux de lessivage plus efficaces, et une charge de sulfate et de carbone-suie alors comparable à celle simulée en moyenne par les modèles AEROCOM. De manière générale, les flux de précipitations relevés dans nos simulations sont apparus très éloignés des observations. Le CTM MOCAGE – comme nombre d'autres CTM – calcule lui-même la partie convective des précipitations à partir des variables thermodynamiques du modèle dont il utilise les champs météorologiques. L'architecture entre le CTM MOCAGE et le modèle ARPEGE lui fournissant les variables météorologiques a largement été validée en ce qui concerne la représentation du transport et du lessivage des espèces gazeuses solubles, comme l'acide nitrique (HNO_3). Cependant, le lessivage des aérosols est dépendant du taux de formation des précipitations dans le modèle MOCAGE. Une amélioration de la représentation des précipitations dans les expériences réalisées à partir de MOCAGE allié à un MCG paraît essentielle pour simuler la concentration atmosphérique en aérosols. De plus, il semble délicat de réaliser des simulations pluriannuelles à partir de forçages issus d'analyses de modèles de prévisions. En effet, ces modèles étant régulièrement améliorés, leur diagnostic des précipitations évolue en fonction des évolutions techniques de ces modèles, induisant des variations inter-annuelles parfois irréalistes. Pour cette raison, les simulations pluriannuelles devront être réalisées à partir de réanalyses, ou de modèles de climat, ceux-ci pouvant éventuellement être rappelés vers des analyses ou des observations. Ces aspects qui concernent la qualité de la représentation des précipitations sont fondamentaux pour les aérosols solubles comme le sulfate, les sels marins ou encore le carbone-suie.

Un transport de soufre anthropique vers la stratosphère

Le bilan de la quantité d'aérosols a été étudié en détail au cours de cette thèse : nous avons vu qu'une période de trois mois suffisait largement à atteindre une situation d'équilibre des sources et des puits d'aérosols dans nos simulations. Par ailleurs, le bilan de la quantité d'aérosols est apparu correctement fermé dans les hautes couches de l'atmosphère, c'est à dire qu'il n'y a pas d'accumulation irréaliste d'aérosols en altitude dans nos expériences. Grâce à la grille du modèle MOCAGE qui décrit relativement précisément la haute troposphère et la basse stratosphère, nous avons pu évaluer dans quelle mesure le sulfate anthropique contribue à alimenter la couche d'aérosols stratosphériques. Le mode de transport d'aérosols

troposphériques vers la stratosphère diffère selon le forçage météorologique utilisé dans les simulations. Cependant, quel que soit ce forçage météorologique utilisé, la charge de sulfate stratosphérique d'origine anthropique atteint des valeurs de l'ordre de 0.05 Tg[S]. Cette estimation est comparable à d'autres évaluations basées à la fois sur des observations et des expériences de modélisation.

Ouverture d'une perspective sur les interactions atmosphère-aérosols : tenter d'évaluer l'impact des aérosols sur les régimes de temps en Atlantique Nord

A partir de la configuration estimée la plus pertinente pour nos simulations globales, nous avons établi une climatologie des champs d'aérosols pour la période 2000-2005. Cette climatologie peut être utilisée dans des simulations climatiques globales et ouvre donc de nombreuses perspectives. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons mené une étude particulière de l'interaction entre atmosphère et aérosols. Celle-ci concerne la région Atlantique Nord, dans laquelle nous avons étudié les interactions entre l'atmosphère et les champs d'aérosols en hiver. Dans cette région, l'atmosphère tend, par des processus de dynamique interne, vers 4 états préférentiels : les « régimes de temps ». A chacun de ces régimes correspondent des anomalies de charge en sulfate, en carbone-suie et en poussières minérales. Ces anomalies, très significatives dans nos simulations, ont été expliquées grâce à l'analyse des variations des divers puits et sources d'aérosols associées à chaque régime. Nous avons ensuite réalisé 5 simulations avec le modèle ARPEGE-Climat, chacune prenant en compte les champs d'aérosols caractéristiques d'un régime de temps particulier. Une nouvelle analyse de ces régimes de temps a été réalisée dans chacune de ces simulations, montrant que leur occurrence n'était pas affectée par la modification du forçage des aérosols. En revanche, la persistance de certains régimes de temps s'est trouvée réduite dans certaines de nos expériences. Nous avons pu alors estimer que les interactions entre atmosphère et aérosols pouvaient déstabiliser une phase « NAO- » qui se produirait après le passage de l'atmosphère par un régime « Zonal ». De la même manière, une phase « Zonale » serait déstabilisée en se produisant après un régime de « Blocage ».

Cette étude mériterait d'être approfondie au travers de deux approches. Tout d'abord, les simulations climatiques ont été réalisées avec des températures de surface des océans fixées à des valeurs climatologiques. De fortes variations des flux turbulents ont constitué la principale réponse de l'atmosphère dans nos expériences où l'on a modifié les champs d'aérosols. Cette réponse aurait vraisemblablement été très différente dans un modèle couplé océan-atmosphère, les flux turbulents étant très dépendants de la température de surface des océans. Par ailleurs, il serait intéressant de réaliser ce même type de simulations avec un diagnostic « en ligne » du forçage radiatif des aérosols. On pourrait alors estimer séparément l'impact des aérosols sur le bilan radiatif de celui de l'ensemble des rétroactions climatiques en jeu, et notamment des rétroactions nuageuses. Ce type de rétroaction peut en effet influencer le bilan radiatif de manière plus prononcée que le forçage des aérosols lui-même.

Les principales conclusions de ce travail de thèse ont été présentées dans les paragraphes précédents. Certaines pistes à suivre pour améliorer la représentation des aérosols dans le modèle MOCAGE ont été mises en avant. Les paragraphes suivants exposent des perspectives plus larges encore, concernant des projets de long terme.

Perspectives ou encore du travail pour des doctorants...

Au cours de ce travail de thèse, une version optimisée du modèle MOCAGE a été mise en place pour réaliser des simulations globales pluriannuelles de l'aérosol atmosphérique. Cependant, ce type de représentation étant simplifié, de nombreux processus, pourtant essentiels dans l'évolution de la concentration atmosphérique en aérosol n'ont pas été pris en compte, ce qui nuit nécessairement au réalisme de nos simulations.

La représentation de plusieurs aérosols a été intégrée dans le modèle MOCAGE. Dans le futur, MOCAGE pourrait être utilisé pour décrire la concentration atmosphérique en carbone organique et en nitrate. Les simulations réalisées tiendraient alors compte de la majeure partie des espèces aérosols. On pourra alors étudier les évolutions du rayonnement solaire à la surface de la Terre liées aux évolutions de la concentration atmosphérique en aérosols. L'épaisseur optique des aérosols simulée seraient directement comparable à des observations réalisées à l'aide de satellites et de Lidars. Cette confrontation devrait permettre de mieux comprendre les processus pilotant l'épaisseur optique des aérosols dans l'atmosphère. Une fois cette étape validée, il serait pertinent de représenter dans le modèle des « classes » d'aérosols (i.e. urbains, marins, continentaux, etc.) et non plus des « types » d'aérosols (i.e. du sulfate, du carbone-suie, etc.). Ces classes d'aérosols seraient alors composées de mélanges entre les différentes espèces chimiques, pouvant varier à la fois dans l'espace et le temps selon les émissions de chaque composé et les différents processus physico-chimiques en jeu. Les processus de coagulation et de condensation entre les différents composés atmosphériques, ainsi que le comportement hygroscopique des particules en suspension pourraient alors être pris en compte dans le modèle. Ce type de représentation existe déjà dans certains modèles globaux ainsi que dans nombreux modèles de méso-échelle. Le comportement physico-chimique ainsi que l'impact radiatif des aérosols peuvent être significativement différents dans ce type de configuration et dans celle que nous avons utilisée pour nos simulations. Par ailleurs, il serait utile de réaliser des simulations globales avec un schéma chimique détaillé, pour étudier les interactions entre la chimie des aérosols et la capacité oxydante de l'atmosphère. Celle-ci pouvant varier au cours du temps, le cycle du soufre peut être affecté, modifiant alors la production chimique de sulfate.

Dans d'autres simulations, les réactions chimiques concernant le soufre stratosphérique pourront aussi être prises en compte, en intégrant notamment la représentation du COS, ainsi que la description des grandes éruptions volcaniques. Ce type d'étude permettra de préciser le rôle des sources anthropiques dans la formation de la couche d'aérosols stratosphériques. On pourra alors analyser l'influence de cette couche d'aérosols stratosphériques sur le bilan radiatif terrestre à partir de simulations climatiques réalisées avec un MCG.

Une perspective majeure de ce travail de thèse réside dans l'élaboration d'un système couplant le modèle de chimie-transport MOCAGE avec le modèle de circulation générale ARPEGE-Climat. Nous avons réalisé une première ébauche de cet ensemble, permettant de lancer simultanément les deux modèles, chacun réalisant 6 heures de simulation tour à tour. Cependant, ce système n'a pas encore été utilisé en mode « couplé », mais seulement en mode « forcé » : MOCAGE utilise les variables thermodynamiques simulées par ARPEGE-Climat, alors que ARPEGE-Climat fonctionne encore indépendamment de MOCAGE dans cette configuration. A l'heure actuelle, ARPEGE-Climat représente le forçage radiatif des aérosols à

partir d'une climatologie de l'épaisseur optique des aérosols, verticalisée selon un profil homogène sur tout le globe. Cette représentation devra être adaptée pour prendre en compte directement les distributions 3D fournies par le modèle MOCAGE. Par ailleurs, les simulations réalisées à l'aide de MOCAGE sur plusieurs années devront être validées de manière approfondie avant d'entrevoir un tel couplage. Sur ces aspects, une version « climat » de MOCAGE est en cours de développement au CNRM/GAME. Munis d'un système couplé performant, permettant d'étudier les interactions aérosols-climat, on devra toutefois garder à l'esprit les incertitudes qui persistent sur les émissions, les processus physico-chimiques en jeux et les propriétés radiatives des aérosols.

De nombreuses améliorations doivent être apportées aux modèles globaux pour mieux estimer l'impact climatique des aérosols. Les effets indirects sont notamment très mal représentés dans les modèles climatiques à l'heure actuelle. Sur cette thématique, les études réalisées aujourd'hui à partir de modèles méso-échelle ont permis de mieux comprendre les interactions aérosols-nuages-rayonnement. Ce type de modèle a notamment permis une meilleure évaluation des changements de durée de vie des nuages dans une atmosphère polluée par des aérosols anthropiques : le signe du forçage radiatif induit par la présence des aérosols dans la couche limite atmosphérique est variable selon les conditions thermodynamiques de l'atmosphère. La prise en compte des processus mis à jour grâce à ce type d'étude de petite échelle permettrait de préciser la représentation des effets indirects de l'aérosol dans les modèles globaux. Par ailleurs, les observations satellite sont utilisées aujourd'hui pour étudier le bilan radiatif des différentes couches de l'atmosphère, et mettre au point des nouvelles représentations des effets indirects des aérosols sur le climat. L'embarquement de Lidars à bord de satellites, comme cela est réalisé actuellement dans le cadre du projet « CALIPSO » est un moyen très efficace pour valider les simulations des aérosols. Cet outil devrait permettre d'analyser finement les interactions nuages-aérosols, il devrait donc permettre d'améliorer notre compréhension des effets indirects des aérosols.

Bibliographie

Abel, S.J., E.J. Highwood, J.M. Haywood, and M.A. Stringer, 2005: The direct radiative effect of biomass burning aerosol over southern Africa. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5, 1165–1211.

Ackermann et al., 1998 : Modal aerosol Dynamics model for Europe : Development and first applications, *Atmospheric Environment*, 32, 2981-2999.

Aguirre-Michoux, M., 2005 : *Modélisation du dépôt sec et des émissions d'espèces chimiques d'intérêt pour la qualité de l'air et pour la composition de la troposphère*, thèse de doctorat de l'université de Toulouse III, 229 p.

Aymoz, G., 2005 : *Etude de la fraction carbonée de l'aérosol atmosphérique à Chamonix et Saint-Jean de Maurienne : évolution saisonnières, sources et caractéristiques chimiques*, thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier (Grenoble – 1).

Atkinson et al., 2006 : Summary of evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry – Section I – Ox, HO_x, No_x and So_x reactions, <http://www.iupac-kinetic.ch.cam.ac.uk/>

Atkinson et al., 1997 : Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry : supplement V, *J. Phys. Chem Ref Data* 23, 521-1011.

Atkinson et al., 1989 : Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry : supplement III, *J. Phys. Chem Ref Data* 18, 881-897.

Bardouki, H. et al., 2003 : Gaseous (DMS, MSA, SO₂, H₂SO₄ and DMSO) and particulate (sulphate and methanesulfonate) sulphur species over the northern coast of Crete, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 3, 3869-3906.

Barrie, L. A. et al., 2001 : A comparison of large-scale atmospheric sulphate aerosol models (COSAM) : overview and highlights, *Tellus*, 53B, 615.

Bechtold et al., 2001: A mass flux convection scheme for regional and global models, Bechtold P., E. Bazile, F. Guichard, P. Mascart and E. Richard, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 127, 869-886.

Benkovitz, C. M., M. T. Scholtz, J. Pacyna, L. Tarrasòn, J. Dignon, E. C. Voldner, P. A. Spiro, J. A. Logan, et T. E. Graedel, 1996, Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulphur and nitrogen, *J. Geophys. Res.*, doi :10.1029/29239-29253.

Berglen, Tore F. et al., 2004 : A global model of the coupled sulphur/oxidant chemistry in the troposphere : the sulphur cycle, *Journal of Geophysical Research*, Vol.109, D19310, doi:10.1029/2003JD003948.

Binkowski ands Shankar, 1995 : The Regional Particulate Matter Model, 1, Moedl description and preliminary results, *Journal of Geophysical Research*, 100, 26191-26-209.

Bonnaveira, H., 2004 : *Etude des phénomènes de dépôt et de post-dépôt de la neige andine sur un site tropical d'altitude (Illimani-Bolivie – 6340 m) en vue de l'interprétation d'une carotte de glace*, thèse de doctorat de l'Université Joseph Fourier (Grenoble – 1).

Bond, T.C. et al., 2004 : A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 109, D14203, doi:10.1029/2003JD003697.

- Bond, T.C.**, 2001: Spectral dependence of visible light absorption by carbonaceous particles emitted from coal combustion. *Geophys. Res. Lett.*, 28(21), 4075–4078.
- Boucher, O. et Pham, M.**, 2002 : History of sulfate aerosol radiative forcings, *Geophysical research letters*, vol. 29, NO. 9, 10.1029/2001GL014048.
- Boucher, O.**, Pham, M., Venkataraman, C., 2002: Simulation of the atmospheric sulfur cycle in the Laboratoire de Météorologie Dynamique General Circulation Model. Model Description, Model Evaluation, and Global and European Budgets, Note n°23, IPSL.
- Boucher, O. et al.**, 1998 : Intercomparison of models representing direct shortwave radiative forcing by sulphate aerosols, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 103, NO. D14, PAGES 16,979-16,998, JULY 27.
- Boucher, O., and U. Lohmann**, 1995: The sulfate-CCN-cloud albedo effect: a sensitivity study using two general circulation models. *Tellus*, 47B, 281–300.
- Boucher, O.**, and T. L. Anderson., 1995: GCM assessment of the sensitivity of direct climate forcing by anthropogenic sulfate aerosols to aerosol size and chemistry, *J. Geophys. Res.*, 100, 26117-26134.
- Boucher, O.**, 1995 : *Etude de quelques interactions aérosol-nuage-rayonnement : modélisation et simulations avec un modèle de circulation générale*, thèse de doctorat, Université Paris 6, 223 p.
- Brasseur, G. P.**, Hauglustaine, D. A., Walters, S., Rasch, P. J., Muller, J. F., Granier, C., and Tie, X. X., 1998 : MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers, 1. Model description, *J. Geophys. Res. A.*, 103(D21), 28 265– 28 289.
- Brenguier, J.L.**, H. Pawlowska, and L. Schuller, 2003: Cloud microphysical and radiative properties for parametrization and satellite monitoring of the indirect effect of aerosol on climate. *J. Geophys. Res.*, 108(D15), 8632, doi:10.1029/2002JD002682.
- Brenguier, J.L., et al.**, 2000a: Radiative properties of boundary layer clouds: droplet effective radius versus number concentration. *J. Atmos. Sci.*, 57, 803–821.
- Cassou, C.**, 2008 : Intraseasonal interaction between the Madden-Julian Oscillation and the North Atlantic Oscillation. *Nature*, 455, 523-527.
- Castebrenet, H.**, 2007, *Modélisation des interactions climat-aérosols-chimie du soufre atmosphérique aux hautes latitudes Sud*, thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, Grenoble, 192 pages.
- Chatfield, R. B., Crutzen, P.**, 1990 : are there interactions of iodine and sulphur species in marine air photochemistry ?, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 95, PAGES 22,319-22,341.
- Chaumerliac, N.**, 1984 : Evaluation des dépôts humides des polluants atmosphériques dans un modèle météorologique à méso-échelle. 1- Captation dynamique, Chaumerliac N. Note IOPG n°74.
- Chung, C. E. et al.**, 2005 : Global anthropogenic aerosol/A direct forcing derived from satellite and ground-based observations, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 110, D24207, doi:10.1029/2005JD006356.
- Chung, S.H., and J.H. Seinfeld**, 2002: Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols. *J. Geophys. Res.*, 107, doi:10.1029/ 2001JD001397.

- Chylek, P., and J. Wong**, 1995: Effect of absorbing aerosols on global radiation budget. *Geophys. Res. Lett.*, 22(8), 929–931.
- Cosme, E.**, 2002, Cycle du soufre des moyennes et hautes latitudes Sud dans un modèle de circulation générale atmosphérique, Ph.D. thesis, Univ. Joseph Fourier -Grenoble 1-, 198 p.
- Crassier, V. et al**, 2000 : Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models, *Atmos. Environ.*, 34, 2633-2644.
- Crutzen, P. J.** 1976 : The possible importance of OCS for the sulfate layer of the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 3, 73–76.
- Dandin, P., et Morcrette, J. J.**, 1996 : The ECMWF FMR scheme in the Meteo-France climate model Arpege-climat Note de centre, 74 pages.
- De Angelis, M.**, J. P. Steffensen, M. Legrand, H. Clausen, and C. Hammer, 1997, Primary aerosol (sea salt and soil dust) deposited in Greenland ice during the last climatic cycle: Comparison with east Antarctic records, *J. Geophys. Res.*, 102(C12), 26,681–26,698.
- Delmas, R, Mégie, G., Peuch, V.-H.**, 2005 : *Physique et Chimie de l'Atmosphère*, éditions Belin, 640 pages.
- Demore, W. B. et al.**, 1997 : Chemical kinetics and photochemical data for use in stratospheric modelling. Evaluation Number 12., vol 97-4, Jet Propulsion Lab., Pasadena, CA.
- Dentener, F.**, Kinne, S., Bond, T., Boucher, O., Cofala, J., Generoso, S., Ginoux, P., Gong, S., Hoelzemann, J. J., Ito, A., Marelli, L., Penner, J. E., Putaud, J.-P., Textor, C., Schulz, M., van der Werf, G. R., and Wilson, J.: Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750, prescribed data-sets for AeroCom, 2005 : *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 6, 2703-2763. <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/6/2703/2006/>.
- Déqué M.**, Braun A., Piedelievre J.-P., Marquet P., Dandin P., Guérémy J.-F., Geleyn J.-F., Bazile E., Piriou J.-M., Yessad K., Courtierand P., Rochas P., 1999 : ARPEGE version 3, *documentation algorithmique et mode d'emploi* (in French, available from CNRM/GMGEC, Météo-France, 42 avenue G. Coriolis, 31057 Toulouse, France).
- Deshler, T.**, R. Anderson-Sprecher, H. Jäger, J. Barnes, D. J. Hofmann, B. Clemesha, D. Simonich, M. Osborn, R. G., Grainger, and S. Godin-Beekmann, 2006 : Trends in the non-volcanic component of stratospheric aerosol over the period 1971–2004, *J. Geophys. Res.*, 111, D01201, doi:10.1029/2005JD006089.
- Douville H.**, Royer J.-F., Mahfouf J.-F., 1995a : A new snow parametrization for the Météo-France climate model. Part I: Validation in stand-alone experiments. *Clim. Dyn.*, 12 : 21-35.
- Douville H.**, Royer J.-F., Mahfouf J.-F., 1995b : A new snow parametrization for the Météo-France climate model. Part II: Validation in a 3-D GCM experiments. *Clim. Dyn.*, 12 : 37-52.
- Dubovik, O. et al.**, 2004 : Inversion of global distribution of aerosol sources using MODIS and AERONET data, *Optica Pura y Aplicada* - Vol.37, num. 3.
- Dusek, U., et al.**, 2006: Size matters more than chemistry for cloudnucleating ability of aerosol particles. *Science*, 312, 1375–1378.
- Dombrowski-Etchevers, I.**, 2008 : *Etude de l'aérosol atmosphérique en Europe : observations et modélisation en sites d'altitude*, thèse de doctorat, université de Toulouse 3, 164 pages.
- Dombrowski-Etchevers, I.**, 2002 : *Etude des aérosols minéraux et organiques dans une carotte prélevée au Mont-Blanc : Implications pour le changement de la charge atmosphérique*

en aérosols au dessus de l'Europe depuis la période pré-industrielle, rapport de stage de fin d'études n° 814 à l'ENM.

Fagerli, H., et al., 2007, Modeling historical long-term trends of sulfate, ammonium, and elemental carbon over Europe: A comparison with ice core records in the Alps, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S13, doi:10.1029/2006JD008044.

Folland, C.K., T.R. Karl, J.R. Christy, R.A. Clarke, G.V. Gruza, J. Jouzel, M.E. Mann, J. Oerlemans, M.J. Salinger, S.-W. Wang, 2001, Observed Climate Variability and Change, in *Climate change 2001: The Scientific Basis*, edited by J.T. Houghton et al., pp. 99–181, Cambridge Univ. Press, New York.

Formenti, P., et al., 2003: Inorganic and carbonaceous aerosols during the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000) experiment: Chemical characteristics, physical properties, and emission data of smoke from African biomass burning. *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8488, doi:10.1029/2002JD002408.

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

Fouquart, Y. and B. Bonnel, 1980 : Computations of solar heating of the earth's atmosphere: A new parameterization. *Beitr. Phys. Atmos.*, 53, 35-62.

Genthon, C., 1992 : Simulations of desert dust and sea-salt aerosols in Antarctica with a general circulation model of the atmosphere, *Tellus*, 44B, 371-389.

Giard et Bazile, 2000, Implementation of a new assimilation scheme for soil and surface variables in a global NWP model, Giard D. and E. Bazile, *MON. Weather Rev.*, 128, 997-1015.

Gibelin A.L., Déqué M., 2003 : Anthropogenic climate change over the Mediterranean region simulated by a global variable resolution model. *Climate Dynamics*, 20 : 327-339.

Gibson J.K., Kallberg P., Uppala S., Hernandez A., Nomura A., Serrano E., 1997 : ERA description. ECMWF Reanalysis Project Report Series No.1, European Centre for Medium-range Weather Forecasts, Reading, UK, 66 pp

Ginoux, P. et al., 2003 : Long-term simulation of global dust distribution with the GOCART model: correlation with North Atlantic Oscillation, *Environmental modelling & software*, 19, 113-128.

Giorgi et Chameides, 1986 : Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model, *J. Geophys. Res.*, 91, (D31), 14,367-14,376.

Gong, S.L. et al., 2002 : Canadian Aerosol Module (CAM): A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models. 2. Global sea-salt aerosol and its budgets, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 107, NO. D24, 4779, doi:10.1029/2001JD002004.

Gong, S.L. and Barrie, L.A., 1997 : Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere; 1. Model development, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 102, NO. D3, PAGES 3805-3818, FEBRUARY 20.

Gong, S.L. et al., L.A., 1997 : Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere; 2. Atmospheric concentrations and fluxes, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 102, NO. D3, PAGES 3805-3818, FEBRUARY 20.

Greenaway, K. R., 1950: Experiences with Arctic flying weather, report, Royal Meteorol. Soc. Can. Branch, Toronto, Ont., Canada.

Gruber, A. et Levizzani, V., 2008 : Assessment of Global Precipitation Products ; A project of the World Climate Research Programme Global Energy and Water Cycle Experiment (GEWEX) Radiation Panel, WCRP-128 WMO/TD-No. 1430, report, 57 pages.

Halmer, M. M. et al., 2002 : The annual volcanic gas input into the atmosphere, in particular into the stratosphere: a global data set for the past 100 years, *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 115, 511-528.

Hansen, J. et al., Dangerous human-made interference with climate: a GISS modelE study, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 2287–2312

Hansen, J. et al., 1997 : Radiative forcing and climate response, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 102, NO. D6, PAGES 6831-6864, MARCH 27.

Hass et al., 2003 : Aerosol Modeling: Results and Intercomparison from European Regional-scale Modeling Systems, a contribution to the EUROTRAC-2 subproject GLOREAM, technical report, EUROTRAC ISS, Munich, Germany.

Hasselmann, K., 1997: Climate change: Are we seeing global warming?, *Science*, 276, 914-915.

Hatzianastassiou, N. et al., 2004 : Sensitivity analysis of aerosol direct radiative forcing in ultra-violet-visible wavelengths and consequences for the heat budget., *Tellus*, 56B, 368-381.

Hatzianastassiou, N. et al., 2004 : Global distribution of aerosol direct radiative forcing in the ultraviolet and visible arising under clear skies, *Tellus*, 56B, 51-71.

Hauglustaine, D. A., Hourdin, F., Jourdain, L., Filiberti, M.-A., Walters, S., Lamarque, J.-F., and Holland, E. A.: Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model, 2004 : Description and background tropospheric chemistry evaluation, *J. Geophys. Res.*, 109, D04314, doi:10.1029/2003JD003957.

Haywood, J et Boucher, O., 2000 : Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols : a review, *Review of Geophysics*, 38, 4 / November; pages 513-543, paper number 1999RG000078.

Hegerl, G. C., K. Hasselmann, U. Cubasch, J. F. B. Mitchell, E. Roeckner, R. Voss, and J. Waskewitz, 1997: On multi-fingerprint detection and attribution of greenhouse gas and aerosol forced climatic change, *Climate Dynamics*, 13, 613-634.

Heintzenberg, J. and Charlson, R., 2008 : *Clouds in the Perturbed Climate System Their Relationship to Energy Balance, Atmospheric Dynamics, and Precipitation*. Edited by Jost Heintzenberg and Robert Charlson. Strüngmann Forum Reports.

Hjellbrekke, A.-G., 2004 : Data report 2002, acidifying and eutrophying compounds, Tech. Rep. EMEP/CCC Rep. 1/2004, EMEP, Oslo, Norway.

Hess, M. et al., 1998 : Optical properties of aerosols and clouds : the software package OPAC, *Bulletin of the American Meteorological Society*.

Henzing, J.S. et al., 2006 : A parameterisation of size resolved below cloud scavenging of aerosols by rain, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3363-3375

Hofmann, D. J., 1990 : Increase in the stratospheric background sulphuric acid aerosol mass in the past 10 years. *Science* 248, 996–1000.

Hohenegger, C., and P. L. Vidale, 2005 : Sensitivity of the European climate to aerosol forcing as simulated with a regional climate model, *J. Geophys. Res.*, 110, D06201, doi:10.1029/2004JD005335.

Hongisto, M., M. Sofiev, and S. Joffre, 2003 : Hilatar, a limited area simulation model of acid contaminants, part II, *Atmos. Environ.*, 37, 1535–1547.

Horowitz, L. W., Walters, S. M., Mauzerall, D. L., Emmons, L. K., Rasch, P. J., Granier, C., Tie, X., Lamarque, J.-F., Schultz, M. G., and Brasseur, G. P., 2003 : A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.*, 108, 4784, doi:10.1029/2002JD002853.

Houghton, J. T., L. G. M. Filho, J. Bruce, H. Lee, B. A. Callander, E. Haites, N. Harris, and K. Maskell, 1995 : Radiative forcing of climate change. In *Climate Change 1994*, pp. 231, Cambridge University Press, Cambridge.

Hsu, N.C., J.R. Herman, and S.C. Tsay, 2003: Radiative impacts from biomass burning in the presence of clouds during boreal spring in southeast Asia. *Geophys. Res. Lett.*, 30(5), 28, doi:10.1029/2002GL016485.

Hurrell, J.W., Y. Kushnir, G. Ottersen, and M. Visbeck, 2003: An overview of the North Atlantic Oscillation. *The North Atlantic Simulation: Climate Significance and Environmental Impacts*, *Geophys. Monogr.*, No. 134, Amer. Geophys. Union, 1-22.

Intergovernmental Panel on Climate Change, 2007, *Climate Change 2007 : The scientific Basis*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, U. K.

Intergovernmental Panel on Climate Change, 2001 : *The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 881 pp, 2001.

Ito, A., and J.E. Penner, 2005: Historical emissions of carbonaceous aerosols from biomass and fossil fuel burning for the period 1870–2000. *Global Biogeochem. Cycles*, 19, GB2028, doi:10.1029/2004GB002374.

Jacobson, M.Z., 2004: Climate response of fossil fuel and biofuel soot, accounting for soot's feedback to snow and sea ice albedo and emissivity. *J. Geophys. Res.*, 109, D21201, doi:10.1029/2004JD004945.

Jacobson, M.Z., 1997 : Development and application of a new air pollution modelling system, part II, Aerosol module structure and design, *Atmospheric Environment*, 31, 131-144.

Jaenicke, R., 1993 : *Tropospheric aerosols, in Aerosol-Cloud-Climate interactions*, Academic Press, edited by P. V. Hobbs, pp. 1-31.

Jeuken, A. B. M., Veeffkind, J. P., Dentener, F., Metzger, S., and Gonzalez, C. R., 2001 : Simulation of the aerosol optical depth over Europe for August 1997 and a comparison with observations, *J. Geophys. Res. A.*, 106(D22), 28 295–28 311.

Josse B., 2004a, *Représentation des processus de transport et de lessivage pour la modélisation de la composition chimique de l'atmosphère à l'échelle planétaire*, Thèse de Doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, 195p.

Josse, B. et al., 2004b : Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE, *Tellus*, 56B, 339-356.

- Junge, C. E.**, C.W. Chagnon, et J. E.Manson, 1961, Stratospheric aerosols, *J. Meteorol.*, 18, 81–108.
- Kain and Fritsch**, 1990 : A one-dimensional entraining-detraining plume model and its application in convective parametrization, Kain J. S. and J. M. Fritsch, *J. of Atmos. Chemistry*, 47, 5953-5970.
- Kanakidou, M. et al.**, 2005 : Organic aerosol and global climate modelling : a review. *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1053-1123.
- Kasibhatla, P. et al.**, 1997 : A three-dimensionnal global model investigation of seasonal variations in the atmospheric burden of anthropogenic sulphate aerosols, *J. Geophys. Res.*, 102, no D3., 3737-3759.
- Kasper-Giebl, A.**, 2000, Scavenging Efficiency of “Aerosols Carbon” and Sulfate in Supercooled Clouds at MT Soonblick (3106 m a.s.l., Austria), *Journal of Atmospheric Chemistry*, 35 : 33-46.
- Kattenberg, A.**, F. Giorgi, H. Grassl, G. A. Meehl, J. F. B. Mitchell, R. J. Stouffer, T. Tokioka, A. J. Weaver, and T. M. L. Wigley, 1996: Climate models - projections of future climate, in *Climate Change 1995: The Science of Climate Change*, edited by J. T. Houghton, L. G. M. Filho, B. A. Callander, N. Harris, A. Kattenberg, and K. Maskell, pp. 285-357, Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Kaufman Y.J., et al.**, 2005a: Aerosol anthropogenic component estimated from satellite data. *Geophys. Res. Lett.*, 32, L17804, doi:10.1029/2005GL023125.
- Kaufman, Y. J. et al.**, 2002 : A satellite view of aerosols in the climate system, *Nature*, VOL. 419, SEPTEMBER 12.
- Kettle, A. J. and Andreae, M. O.**, 2000 : Flux of dimethylsulfide from the oceans: A comparison of updated data set and flux models, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 105, NO. D22, PAGES 26,793-26,808, NOVEMBER 27.
- Kettle, A.**, M. Andreae, D. Amouroux, T. Andreae, T. Bates, H. Berresheim, H. Bingemer, R. Boniforti, M. Curran, G. DiTullio, G. Helas, G. Jones, M. Keller, R. Kiene, C. Leck, D. Lévassieur, G. Malin, M. Maspero, P. Matrai, A. McTaggart, N. Mihalopoulos, B. Nguyen, A. Novo, J.-P. Putaud, S. Rapsomanikis, G. Roberts, G. Schebeske, S. Sharma, R. Simó, R. Staubes, S. Turner, et G. Uher, 1999, A global database of sea surface dimethylsulfide (DMS) measurements and a procedure to predict sea surface DMS as function of latitude, longitude and month, *Global Biogeochemical Cycle*, 13, 399–444.
- King, M. D. et al.**, 1999 : Remote sensing of tropospheric Aerosols from Space : Past, Present and Future, *Bulletin of the American Meteorological Society*.
- Kjellström, E.** 1998. A three dimensional global model study of carbonyl sulfide in the troposphere and the lower stratosphere, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 29, 151–177.
- Kleefeld, S. et al.**, 2002 : Importance of organic and black carbon in atmospheric aerosols at Mace Head, on the West Coast of Ireland (53°19'N, 9°54'W), *Atmospheric Environment*, 36, 4479-4490.
- Klonecki, A.**, P. Hess, L. Emmons, L. Smith, J. Orlando, and D. Blake, 2003: Seasonal changes in the transport of pollutants into the Arctic troposphere—Model study, *J. Geophys. Res.*, 108(D4), 8367, doi:10.1029/2002JD002199.
- Koch, D. et al.**, 2006: Sulfur, sea salt and radionuclide aerosols in GISS ModelE. *J. Geophys. Res.*, 111, D06206, doi:10.1029/2004JD005550.

- Koch, D. et al.**, 2003: Clouds and sulfate are anticorrelated: A new diagnostic for global sulfur models. *J. Geophys. Res.*, 108, no. D24, 4781, doi:10.1029/2003JD003621
- Koch, D.**, 2001: Transport and direct radiative forcing of carbonaceous and sulfate aerosols in the GISS GCM. *J. Geophys. Res.*, 106(D17), 20311–20332.
- Koch, D. et al.**, 1999 : Tropospheric sulfur simulation and sulfate direct radiative forcing in the Goddard Institute for Space Studies general circulation model. *J. Geophys. Res.*, 104, 23799–23822, doi:10.1029/1999JD900248.
- Krol, M.**, Houweling, S., Bregman, B., Broek, M. v. d., Segers, A., Velthoven, P. V., Peters, W., Dentener, F., and Bergamaschi, P., 2005 : The two-way nested global chemistry-transport zoom model TM5:algorithm and applications, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 417– 432.
- Krinner G.**, O. Boucher, Y. Balkanski, 2006: Ice-free glacial northern Asia due to dust deposition on snow, *Climate Dynamics*, 27 (6): 613-625.
- Krinner, G. and Genthon, C.**, 2002 : Tropospheric transport of continental tracers towards Antarctica under varying climatic conditions, *Tellus*, 55B, 54-70.
- Langner and Rodhe**, 1991 : A global three-dimensional model of the tropospheric sulphur cycle, *J. of Atmospheric Chemistry*, 13, 225-263.
- Lefèvre, F. et al.**, 1994 : Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter : three-dimensional simulations, *Journal of Geophysical Research*, Vol 99, 8183-8195.
- Legrand, M. and Puxbaum, H.**, 2007 : Summary of the CARBOSOL project : Present and retrospective state of organic versus inorganic aerosol over Europe, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 112, D23S01, doi : 10.1029/2006JD008271.
- Legrand, M. and Preunkert, S.** et al., 2005 : Atmospheric year-round records of dicarboxylic acids and sulphate at the French sites located between 630 and 4360 m elevation, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 110, D13302, doi :10.1029/2004JD005515.
- Legrand, M.**, C. Hammer, M. De Angelis, J. Savarino, R. Delmas, H. Clausen, and S. J. Johnsen, 1997, Sulfur-containing species (methanesulfonate and SO₄) over the last climatic cycle in the Greenland Ice Core Project (central Greenland) ice core, *J. Geophys. Res.*, 102(C12), 26,663–201326,680.
- Legrand, M.**, De Angelis, Martine; Maupetit, F, 1993 : Field investigation of major and minor ions along the Summit (central Greenland) ice cores using ion chromatography, *Journal of Chromatography*, 640, 251-258.
- Lelieveld, J.**, P. J. Crutzen, and F. J. Dentener, 1998 : Changing concentration, lifetime, and climate forcing of atmospheric methane, *Tellus*, 50B, 128 – 150.
- Liao, H., and Seinfeld, J.H.**, 2005: Global impacts of gas-phase chemistry-aerosol interactions on direct radiative forcing by anthropogenic aerosols and ozone. *J. Geophys. Res.*, 110, D18208, doi:10.1029/ 2005JD005907.
- Liao, H.**, J.H. Seinfeld, P.J. Adams, and L.J. Mickley, 2004: Global radiative forcing of coupled tropospheric ozone and aerosols in a unified general circulation model. *J. Geophys. Res.*, 109, D16207, doi:10.1029/ 2003JD004456.
- Lide, D. R.**, et H. P. R. Frederikse (1995), *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 76th edition, CRC Press., Inc., Boca Raton, FL.
- Liousse, C., et al.**, 1996: A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols. *J. Geophys. Res.*, 101(D14), 19411–19432.

- Liu, X. et al.**, 2007 : Uncertainties in global aerosol simulations : Assessment using three meteorological data sets, *Journal of Geophysical Research*, 112, D11212, doi:10.1029/2006JD008216.
- Liu, Y., and P.H. Daum**, 2002: Indirect warming effect from dispersion forcing. *Nature*, 419, 580–581.
- Liu, H., D.J. Jacob, I. Bey et R. M. Yantosca**, 2001: Constraints from 210pb and 7be on wet deposition and transport in a global three-dimensional chemical tracer model driven by assimilated meteorological fields, *Journal of Geophysical Research*, 106, D11, 12,109–12,128.
- Lohmann, U. and Feichter, J.**, 2005 : Global indirect effects: a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 715-737.
- Lohmann, U. et al.**, 2001 : Vertical distributions of sulfur species simulated by large scale atmospheric models in COSAM : Comparison with observations, *Tellus*, 53B, 646-672.
- Louis, 1979** : A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, J. F. Louis, *Bound.-Layer Meteor.*, 17, 182-202.
- Lunt, D. J., and P. J. Valdes**, 2002 : The modern dust cycle: Comparison of model results with observations and study of sensitivities, *J. Geophys. Res.*, 107(D23), 4669, doi:10.1029/2002JD002316.
- Maahs, Howard G.**, 1983 : Kinetic and mechanism of the oxidation of S(IV) by ozone in aqueous solution with particular reference to SO₂ conversion in non-urban tropospheric clouds, *Journal of Geophysical Research*, Vol.88, NO. C15, pages 10,721 – 10,732.
- Mahfouf et al.**, 1995: The land surface scheme ISBA within the Météo-France climate modele ARPEGE. Part I : Implementation and Preliminary results, Mahfouf J.-F., A. O. Manzi, J. Noilhan, H. Giordani et M. D'equ'e, *J. Climat.*, 8, 2039-2057.
- Makiko, S. et al.**, 2003 : Global atmospheric black carbon inferred from AERONET,
- Malardel, S.**, 2005 : *Fondamentaux de Météorologie ; à l'école du temps*, Cépaduès éditions, 708 pages.
- Mari, C., Jacob D.J. et P. Betchold**, 2000: Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *Journal of Geophysical Research*, 105, D17, 22,255–22,267.
- Marmer, E., and Langmann, B.**, 2007 : Aerosol modeling over Europe: 1. Interannual variability of aerosol distribution, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S15, doi:10.1029/2006JD008113.
- Marmer, E. et al.**, 2007 : Aerosol modeling over Europe: 2. Interannual variability of aerosol shortwave direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S16, doi:10.1029/2006JD008040.
- Marmer, E. et al.**, 2007 : Direct shortwave radiative forcing of sulfate aerosol over Europe from 1900 to 2000, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S17, doi:10.1029/2006JD008037.
- Marmer, E. and Langmann, B.**, 2005, *Carbosol Final Report*.
- Martet, M.**, 2008 : Introduction des différentes composantes de l'aérosol dans le modèle MOCAGE, thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, Toulouse, 212 pages.
- Martet, M.**, 2004 : Introduction des différentes composantes de l'aérosol dans le modèle MOCAGE, rapport de stage de fin d'études à l'ENM n° 942, 47 pages.

- Martcorena and Bergametti**, 1995: Modeling the atmospheric dust cycle : 1-Design of a soil derived dust production scheme, B. Martcorena and G. Bergametti, *J. Geophys. Res.*, 100, 16415-16430,.
- Martcorena et al.**, 1997 : Modeling the atmospheric dust cycle : 2-Simulations of Saharan dust sources, B. Martcorena, G. Bergametti, B. Aumont, Y. Callot, C. N'Doum'é and M. Legrand, *J. Geophys. Res.*, 102, 4387-4404.
- Masson V**, Champeaux JL, Chauvin F, Meriguet C, Lacaze R, 2003 : A global database of land surface parameters at 1km resolution in meteorological and climate models, *J Clim* 16: 1261-1282
- McFiggans, G., et al.**, 2006: The effect of aerosol composition and properties on warm cloud droplet activation. *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2593–2649.
- McFiggans, G. et al.** , 2005, The effect of physical and chemical aerosol properties on warm cloud droplet activation, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5, 8507 – 8646.
- Ménégoz, M.**, D. Salas y Melia, M. Legrand, H. Teyssède, M. Michou, V-H. Peuch, M. Martet, B. Josse, and I. Dombrowski-Etchevers, 2009 : Equilibrium of sinks and sources of sulphate over Europe: comparison between a six-year simulation and EMEP observations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 4381-4415
- Meng et al.**, 1998 : Size-resolved and chemically resolved model of atmospheric aerosol dynamics, *J. Geophys. Res.*, 103, 3419-3435.
- Michelangeli, P.A.**, R. Vautard, and B. Legras, 1995: Weather Regimes: Recurrence and Quasi Stationarity. *J. Atmos. Sci.*, 52, 1237-1256.
- Michou et al**, 2004: Measured and modeled dry deposition velocities over the ESCOMPTE area, Michou M., P. Laville, D. Serca, A. Fotiadi, P. Bouchou and V.-H. Peuch, *Atmos. Res.*, in press.
- Michou, M. and Peuch, V-H.**, 2002 : Surface exchanges in the MOCAGE multiscale Chemistry and Transport Model, *Journal of Water Science*, 15/no special, 173-203.
- Ming, Y. et al.**, 2005, A New Parameterization of Cloud Droplet Activation Applicable to General Circulation Models, *Journal of the atmospheric sciences*, Vol. 63, 1348-1356.
- Ming, Y.**, 2005, Geophysical Fluid Dynamics Laboratory general circulation model investigation of the indirect radiative effects of anthropogenic sulphate aerosol, *J. Geophys. Res.*, Vol. 110, D22206, doi:10.1029/2005JD006161.
- Ming, Y., and L.M. Russell**, 2002: Thermodynamic equilibrium of organic-electrolyte mixtures in aerosol particles. *Am. Inst. Chem. Eng. J.*, 48, 1331–1348.
- Meij, A.** et al., 2007, The sensitivity of aerosol in Europe to two different emission inventories and temporal distribution of emissions, *Geophysical Research Abstract*, Vol. 9, 01516
- Mitchell J.F.B.**, D.J. Karoly, G.C. Hegerl, F.W. Zwiers, M.R. Allen, J. Marengo, 2001, Detection of Climate Change and Attribution of Causes, in *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, edited by J.T. Houghton et al., pp. 99–181, Cambridge Univ. Press, New York.
- Mitchell, J.F.B.**, T. C. Johns, J. M. Gregory, and S. F. B. Tett, 1995: Climate response to increasing greenhouse gases and sulphate aerosols, *Nature*, 376, 501-504.
- Myhre, G., et al.**, 2004a: Intercomparison of satellite retrieved aerosol optical depth over ocean. *J. Atmos. Sci.*, 61, 499–513.

- Myhre, G., et al.**, 2004b: Uncertainties in the radiative forcing due to sulfate aerosols. *J. Atmos. Sci.*, 61, 485–498.
- Myhre, G., et al.**, 2003: Modelling the solar radiative impact of aerosols from biomass burning during the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000) experiment. *J. Geophys. Res.*, 108, 8501, doi:10.1029/2002JD002313.
- Nakajima, T.**, A. Higurashi, K. Kawamoto, and J. Penner, 2001: A possible correlation between satellite-derived cloud and aerosol microphysical parameters. *Geophys. Res. Lett.*, 28, 1171–1174
- Nho-Kim, E.-Y. et al.**, 2004 : Parameterization of size-dependent particle dry deposition velocities for global modelling, *Atmospheric Environment*, 38, 1933-1942.
- Nho-Kim, E.Y.**, Peuch, A., Plu, M., and Peuch, V.-H., 2003: Development of the MOCAGE Atmospheric Chemistry and Transport Model, Rep. Météo-France.
- Nightingale, P. D.**, G. Malin, C. S. Law, A. J. Watson, P. S. Liss, M. I. Liddicoat, J. Boutin, et R. C. Upstill-Goddart, 2000, In situ evaluation of air-sea gas exchange parametrizations using novel conservative and volatile tracers, *Global Biogeochemical Cycles*, 14, 373–387.
- Novakov, T. et al.**, 2003 : Large historical changes of fossil-fuel black carbon aerosols, *Geophysical research letters*, vol. 30, NO. 6, 1324, doi:10.1029/2002GL016345.
- Novakov, T. et al.**, 2005 : Aerosol organic carbon to black carbon ratios : Analysis of published data and implications for climate forcing, *Journal of Geophysical Research*, Vol.110, D21205, doi: 10.1029/2005JD005977.
- Pacyna, J. M.**, Ottar, B., Tamza, U. & Maenhaut, W. *Atmos. Envir.* 19, 857–865 (1986).
- Penner, J.E.**, et al., 2001: Aerosols, their direct and indirect effects. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 289–348.
- Pham, M. et al.**, 1995 : A three-dimensional study of the tropospheric sulphur cycle, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 100, NO. D12, PAGES 26,061-26,092, DECEMBER 20.
- Pitari, G.**, Mancini, E., Rizi, V. and Shindell, D. T., 2002 : Impact of future climate and emission changes on stratospheric aerosols and ozone. *J. Atmos. Sci.* 59, 414–440.
- Prandtl L.**, 1942, *Fuhrerfur die Strömungslehre* , Braunschweig, F. Vieweg & Son.
- Preunkert, S.**, M. Legrand, B. Jourdain, C. Moulin, S. Belviso, N. Kasamatsu, M. Fukuchi, et T. Hirawake (2007), Interannual variability of dimethylsulfide in air and seawater and its atmospheric oxidation by-products (methanesulfonate and sulfate) at Dumont d’Urville, coastal Antarctica (1999-2003), *J. Geophys. Res.*, 112(D6), doi :10.1029/2006JD007585.
- Preunkert, S. et al.** : Sulfate Trends in a col du Dôme (French Alps) Ice Core: A record of anthropogenic Sulfate Levels in the European Mid-troposphere over the 20th Century, in press.
- Preunkert, S.**, 2001 : *L’histoire de la pollution atmosphérique Européenne reconstituée à partir des carottes de glace Alpine*, thèse de doctorat de l’université Joseph Fourier – Grenoble 1, 240 p.
- Prospero, J.M., et al.**, 2002: Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the Nimbus 7 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) absorbing aerosol product. *Rev. Geophys.*, 40(1), doi:10.1029/2000RG000095.

- Putaud, J-P et al.**, 2004, A European aerosol phenomenology-2 : chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe, *Atmospheric Environment*, 38, 2579-2595.
- Quaas, J., and O. Boucher**, 2005: Constraining the first aerosol indirect radiative forcing in the LMDZ GCM using POLDER and MODIS satellite data. *Geophys. Res. Lett.*, 32, L17814, doi:10.1029/2005GL023850.
- Quaas, J., O. Boucher, and U. Lohmann**, 2005: Constraining the total aerosol indirect effect in the LMDZ and ECHAM4 GCMs using MODIS satellite data. *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 9669–9690.
- Ramanathan, V., P.J. Crutzen, J.T. Kiehl, and D. Rosenfeld**, 2001a : Atmosphere: aerosols, climate, and the hydrological cycle. *Science*, 294, 2119–2124.
- Ramanathan, V., et al.**, 2001b: Indian Ocean experiment: An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze, *J. Geophys. Res.*, 106(D22), 28371–28398.
- Ramaswamy, V., et al.**, 2001: Radiative forcing of climate change. In: *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Houghton, J.T., et al. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 349–416.
- Rasch, P.J. et al.**, 2000 : A comparison of scavenging and deposition processes in global models : results from the WCRP Cambridge Workshop of 1995, *Tellus*, 52B, 1025-1056.
- Roeckner, E., J. M. Oberhuber, A. Bacher, M. Christoph, and I. Kirchner**, 1996 : ENSO variability and atmospheric response in a global coupled atmosphere-ocean GCM, *Climate Dynamics*, 12, 737-754.
- Ronald, J. et al.**, 1995 : Dimethyl sulphide in the arctic atmosphere, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 100, NO. D12, PAGES 26,093-26,104, DECEMBER 20.
- Reddy, M. S. and Boucher, O. et al.**, 2005 : Aerosol optical depths and direct radiative perturbations by species and source type, *Geophysical research letters*, vol. 32, L12803, doi:10.1029/2004GL021743.
- Reddy, M. S. et al.**, 2005 : Estimates of global multicomponent aerosol optical depth and direct radiative perturbation in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 110, D10S16, doi:10.1029/2004JD004757.
- Reynolds, R.W., Rayner N.A., Smith T.M., Stokes D.C., Wang W.**, 2002 ; An Improved In Situ and Satellite SST Analysis for Climate. *J. Climate*, 15, 1609-1625.
- Remer, L. A., et al.** : 2008, Global aerosol climatology from the MODIS satellite sensors, *J. Geophys. Res.*, 113, D14S07, doi:10.1029/2007JD009661.
- Ricard, V.**, 2001, Aerosols dans l'arctique européen : Sources, Transformations et propriétés optiques, thèse de doctorat, université Joseph Fourier – Grenoble 1-, 358 p..
- Rongming, H. et al.**, 2001 : Why is the climate forcing of sulfate aerosols so uncertain?, *Advances in Atmospheric Sciences*, Vol. 18, Num 6, pages 1103-1120.
- Sagnik Dey, S.N., et al.**, 2005 : Retrieval of black carbon and specific absorption over Kanpur city, northern India during 2001-2003 using AERONET data, *Atmospheric Environment*, 40, 445-456.

Salas Y Melia, D. et al., 2005 : Description and validation of the CNRM-CM3 Global Coupled Model, note de centre n°103 du Groupe de Météorologie de Grande Echelle et Climat, Décembre.

SanchezGomez, E., and L. Terray, 2005 : Large-scale atmospheric dynamics and local intense precipitation episodes, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L24711, doi:10.1029/2005GL023990.

Sander, R. et al., 1999, Compilation of Henry's Law Constants for inorganic and inorganic species of potential importance in environmental chemistry (version 3), *Tech. rep.* available at <http://www.mpch-mainz.mpg.de/~sander/res/henry.html>

Sandu, I., 2007 : Impact de l'aérosol sur le cycle de vie des nuages de couche limite, thèse de doctorat, université UPS de Toulouse, 175 pages.

Sato, M. et al., 2003: Global atmospheric black carbon inferred from AERONET. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 100, 6319-6324, doi:10.1073/pnas.0731897100.

Scheuer, E., R. W. Talbot, J. E. Dibb, G. K. Seid, L. DeBell, and B. Lefer, Seasonal distributions of fine aerosol sulfate in the North American Arctic basin during TOPSE, 2003 : *J. Geophys. Res.*, 108(D4), 8370, doi:10.1029/2001JD001364.

Schmidt, G.A. et al., 2006: Present day atmospheric simulations using GISS ModelE: Comparison to in-situ, satellite and reanalysis data. *J. Climate*, 19, 153-192, doi:10.1175/JCLI3612.1.

Schulz, M., C. Textor, S. Kinne, Y. Balkanski, S. Bauer, T. Berntsen, T. Berglen, O. Boucher, F. Dentener, A. Grini, S. Guibert, T. Iversen, D. Koch, A. Kirkeveg, X. Liu, V. Montanaro, G. Myhre, J. Penner, G. Pitari, S. Reddy, X. Seland, P. Stier, and T. Takemura., 2006 : Radiative forcing by aerosols as derived from the AeroCom present-day and pre-industrial simulations. *Atmos Chem Phys*, 6, 5225-5246.

Schultz, M., 2002, *Reanalysis of the TROpospheric chemical composition over the past 40 years ; WORK DESCRIPTION.*

Shaw, G. E., 1995: The Arctic Haze phenomenon, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 76, 2403–2412.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N., 2006 : *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change, second edition*, 1203 pp., John Wiley, New York.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N., 1998 : *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*, 1360 pp., John Wiley, New York.

Sekiguchi, M., et al., 2003: A study of the direct and indirect effects of aerosols using global satellite datasets of aerosol and cloud parameters. *J. Geophys. Res.*, 108(D22), 4699, doi:10.1029/2002JD003359.

Simmons et Burridge, 1980 : An energy and angular-momentum conserving vertical finite-difference scheme and hybrid vertical coordinates, *Mon. Weather Rev.*, 109.

Simpson, D. et al., 2007 : Modeling carbonaceous aerosol over Europe: Analysis of the CARBOSOL and EMEP EC/OC campaigns, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S14, doi:10.1029/2006JD008158.

Slinn, 1982 : Predictions for particle deposition to vegetative canopies. *Atmospheric Environment*, 16, 1785-1794.

Soden, B. J., Wetherald, R. T., Stenchikov, G. L. and Robock, A., 2002 : Global cooling after the eruption of Mount Pinatubo: a test of climate feedback by water vapor. *Science* 296, 727–730.

- Spiro, P. A.**, D. J. Jacob, and J. A. Logan, 1992, Global Inventory of Sulfur Emissions With $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ Resolution, *J. Geophys. Res.*, 97(D5), 6023-6036.
- Stern, D.I.**, 2005 : Global sulfur emissions from 1850 to 2000. *Chemosphere*, 58, 163–175.
- Stern, D. I.**, 2003 : Global sulfur emissions in the 1990s, Rensselaer Working Pap. Econ. 0311, 33 pp., Rensselaer Polytech. Inst., Troy, N. Y.
- Stier, P., et al.**, 2006a: Impact of nonabsorbing anthropogenic aerosols on clear-sky atmospheric absorption. *J. Geophys. Res.*, 111, D18201, doi:10.1029/2006JD007147.
- Stier, P., et al.**, 2006b: Emission-induced nonlinearities in the global aerosol system: results from the ECHAM5-HAM aerosol-climate model. *J. Clim.*, 19, 3845–3862.
- Stier, P. et al.**, 2005, The aerosol-climate model ECHAM5-HAM, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1125-1156.
- Stockwell, W.R.**, F. Kirchner, M. Khun et S. Seefeld, 1997 : A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling, *Journal of Geophysical Research*, 102, 25847–25879.
- Stohl, A.**, 2006 : Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere, *J. Geophys. Res.*, VOL. 111, D11306, doi:10.1029/2005JD006888.
- Tanré, D.**, J.F. Geleyn and J. Slingo, 1984 : First results of the introduction of an advanced aerosol-radiation interaction in the ECMWF low resolution global model, *Aerosol and their climatic effects*, H.E. Gerber and A. Deepack, Eds., A. Deepak Publishing, Hampton, Va., 133-177.
- Tegen, I. Et al.**, 2000 : Trends in tropospheric aerosol loads and corresponding impact on direct radiative forcing between 1950 and 1990: A model study, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 105, NO. D22, PAGES 26,971-26,989, NOVEMBER 27.
- Tegen, I.**, P. Hollrig, M. Chin, I. Fung, D. Jacob, and J. Penner, 1997: Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness: Estimates from model results. *J. Geophys. Res.*, 102, 23895-23915, doi:10.1029/97JD01864.
- Teyssèdre et al., 2007** : A new tropospheric and stratospheric Chemistry and Transport Model MOCAGE-Climat for multi-year studies: evaluation of the present-day climatology and sensitivity to surface processes, 2007 : *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 5815-5860.
- Textor, C. et al.**, 2007 : The effect of harmonized emissions on aerosol properties in global models – an AeroCom experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4489-4501.
- Textor, C. et al.**, 2006 : Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1777-1813.
- Tost, H. et al.**, Technical note : A new comprehensive scavenging submodel for global atmospheric chemistry modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 565-574
- Tsyro, S. et al.**, 2007 : Modeling of elemental carbon over Europe, *J. Geophys. Res.*, 112, D23S19, doi:10.1029/2006JD008164
- Turco, R. P.**, Whitten, R. C., Toon, O. B., Pollack, J. B. and Hamill, P., 1980 : Stratospheric aerosols and climate. *Nature* 283, 283–286.
- Twohy, C.H., et al.**, 2005: Evaluation of the aerosol indirect effect in marine stratocumulus clouds: droplet number, size, liquid water path, and radiative impact. *J. Geophys. Res.*, 110, D08203, doi:10.1029/2004JD005116.

- Twomey, S.**, 1977 : The influence of pollution on the short wave albedo of clouds, *J. atmosph. Sci.*, 34, 1149-1152
- Uppala, S.**, P. Kallberg, A. Hernandez, S. Saarinen, M. Fiorino, X. Li, K. Onogi, N. Sokka, U. Andrae, and V. da Costa Bechtol, 2004 : ERA-40: ECMWF 45-year reanalysis of the global atmosphere and surface conditions 1957-2000, *ECMWF Newsl.*, 101, 2-21.
- Van Aardenne, J.A. et al.**, 2001: A 1 x 1 degree resolution dataset of historical anthropogenic trace gas emissions for the period 1890-1990, *Global Biogeochem. Cycles*, 15, 909–928.
- Van Aardenne, J.A. et al.**, *The EDGAR 3.2 Fast Track 2000 dataset (32FT2000)*.
- Vautard, R.**, 1990 : Multiple weather regimes over the North Atlantic: Analysis of precursors and successors, *Mon. Wea. Rev.*, 118, 2056-2081.
- Vestreng, V.**, M. Adams, and J. Goodwin, 2004: Inventory Review 2004: Emission Data Reported to CLRTAP and the NEC Directive. EMEP/ EEA Joint Review Report, Norwegian Meteorological Institute, Norway, 120 pp.
- Watts, S. F.**, 2000, The mass budgets of carbonyl sulfide, dimethyl sulfide, carbon disulfide and hydrogen sulfide, *Atm. Env.*, 34, 761–779.
- Weissenböck, R. H. et al.**, 2000 : Accelerator mass spectrometry analysis of non-soluble carbon in aerosol particles from high-alpine snow (Mt. Sonnblich, Austria), *Radiocarbon*, Vol 42, Nr 2, p 285-294.
- Wesely**, 1989 : Parametrisation of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale models, *Atmospheric Environment*, 23, 1293–1304.
- Wexler et al.**, 1994 : Modelling urban and regional aerosols, I, Model development, *Atmospheric environment*, 28, 531-546.
- Wigley T.M.L.**, 1989: Possible climate change due to SO₂ derived cloud condensation nuclei, *Nature*, 339, 365-367, 1989.
- Williamson and Rasch**, 1989 Two-dimensional semi-lagrangian transport with shapepreserving interpolation, Williamson, D. L. and P. J. Rash, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 102-129.
- World Health Organization**, World health report 2002, technical report, Geneva, Switzerland.
- Yamagata, S.**, Kobayashi, D., Ohta, S., Murao, N., Shiobara, M., Wada, M., Yabuki, M., Konishi, H., and Yamanouchi, T., 2009: Properties of aerosols and their wet deposition in the arctic spring during ASTAR2004 at Ny-Alesund, Svalbard, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 261-270.
- Yu, H. et al.**, 2006 : A review of measurement-based assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 613-666.
- Zender, C.S.**, 2004: Quantifying mineral dust mass budgets: terminology, constraints, and current estimates. *Eos*, 85, 509–512.

Annexe

Simulation de l'aérosol sulfaté avec la version optimale de MOCAGE

Le lessivage du sulfate par les précipitations solides n'était pas pris en compte dans les simulations réalisées avant l'écriture de ce manuscrit (excepté dans la configuration de lessivage C, où c'est la paramétrisation adaptée aux espèces gazeuses qui a été utilisée pour lessiver le sulfate). J'ai réalisé un dernier test juste avant ma soutenance de thèse, en utilisant la paramétrisation de lessivage adaptée aux espèces aérosol, mais en considérant aussi le lessivage par les précipitations solides (test D). Le tableau suivant présente la charge de sulfate simulée avec les forçages du CEPMMT pour l'année 2000 pour les quatre versions de lessivage A, B, C et D (cf. partie 3.3).

Configuration	Charge	Dépôt humide	Dépôt sec	Temps de résidence
A	1.15	37.19	6.64	9.5
B	0.85	37.68	6.17	7
C	0.63	38.57	5.32	5.2
D	0.6	38.70	5.19	5.0

Tableau A.1 : Charge (Tg[S]), Flux de dépôt (Tg[S].an⁻¹) pour quatre simulations réalisées avec des configurations de lessivage différentes.

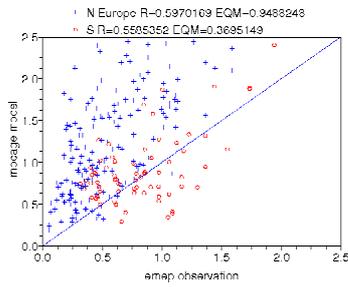
La concentration de sulfate en surface est comparée aux observations en Europe et en Antarctique pour les 4 simulations différentes dans les figures A.1 et A.2. la simulation réalisée avec la version D du lessivage permet d'obtenir la concentration de sulfate en surface la plus réaliste, que ce soit en Europe ou en Antarctique. En revanche, le dépôt humide simulé reste très différent de celui observé aux stations du réseau EMEP, quel que soit la version du lessivage utilisée. Pour les simulations futures, c'est la configuration de lessivage D qui est retenue.

La figure A.3 expose la moyenne annuelle de colonne de sulfate simulée avec cette version du lessivage, avec les forçages du CEP pour l'année 2000. Celle-ci est significativement modifiée par rapport à celle qui était présentée dans le chapitre 4 de cette thèse, notamment aux hautes latitudes, où les concentrations de sulfate sont nettement diminuées par rapport aux anciennes simulations. La moyenne zonale de la concentration en sulfate, ainsi que les cartes des différents puits et sources de sulfate sont représentés dans la même figure.

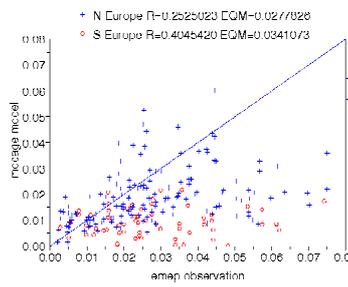
Concentration en surface

Dépôt humide

R=0.578

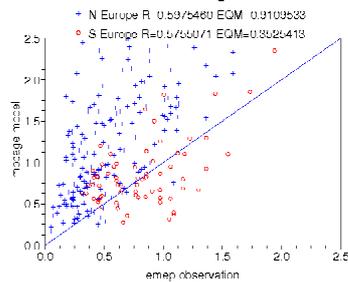


R=0.328

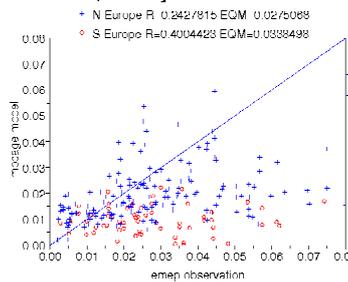


**Lessivage A, selon [Langner and Rodhe, 1991]
Epsilon selon [Kasper-Giebl, 2000]**

R=0.586

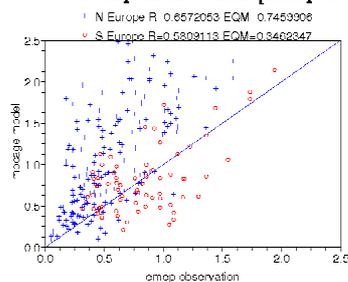


R=0.321

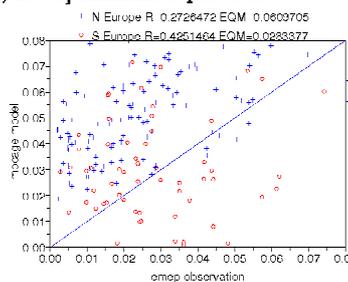


**Lessivage B, selon [Langner and Rodhe, 1991]
Epsilon selon [Kasper-Giebl, 2000] minimisé par 0.2**

R=0.619

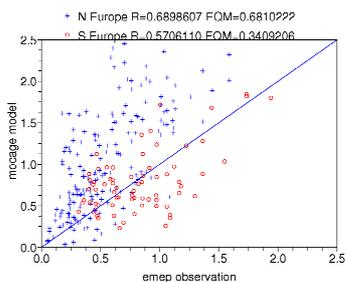


R=0.349

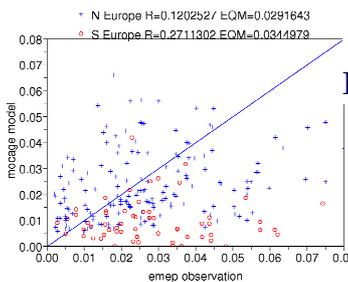


Lessivage C, avec les paramétrisations utilisées pour les épèces en phase gazeuse

R=0.630



R=0.195



Lessivage D (prise en compte du lessivage en phase glace)

Figure A.1 : Concentration de sulfate en surface et dépôt humide aux stations du réseau européen EMEP et valeurs simulées par MOCAGE pour 4 versions de lessivage différentes comparé aux observations réalisées aux stations du réseau européen EMEP.

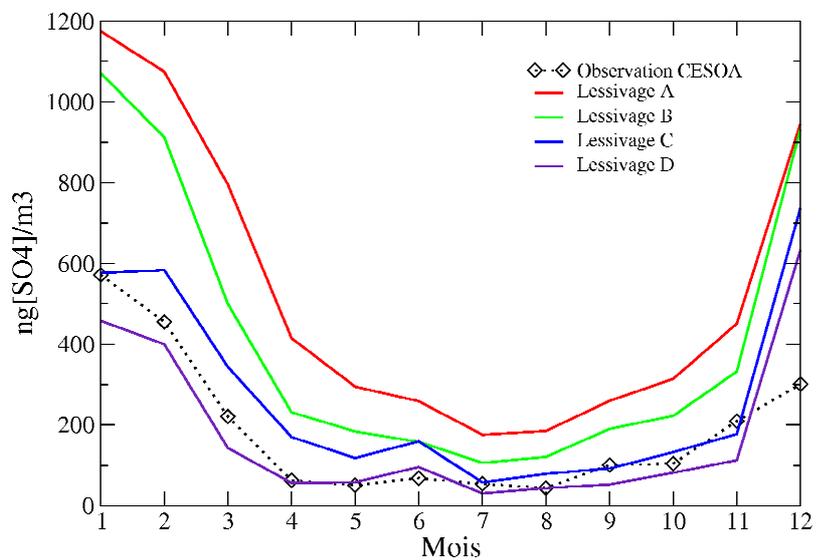


Figure A.2 : Concentration de sulfate simulée par MOCAGE à Dumont d'Urville (Antarctique) pour 4 versions de lessivage différentes et observé (réseau CESOA).

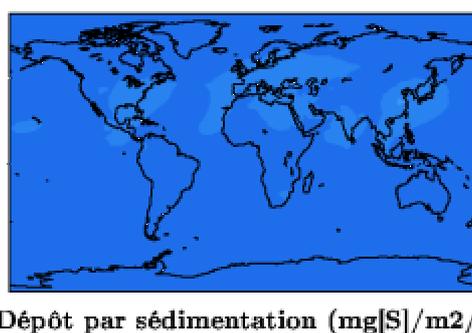
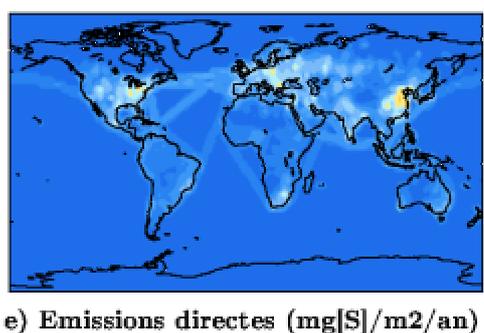
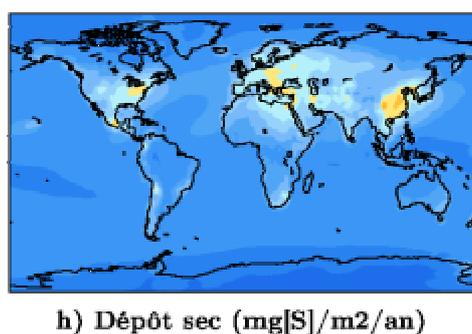
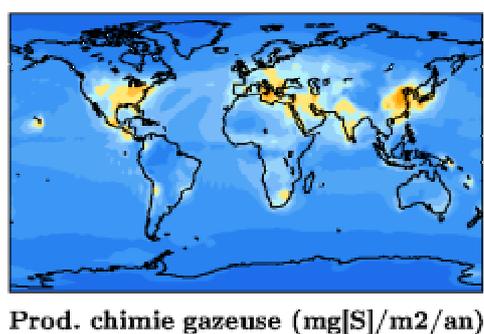
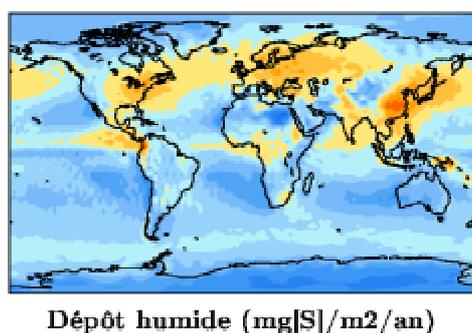
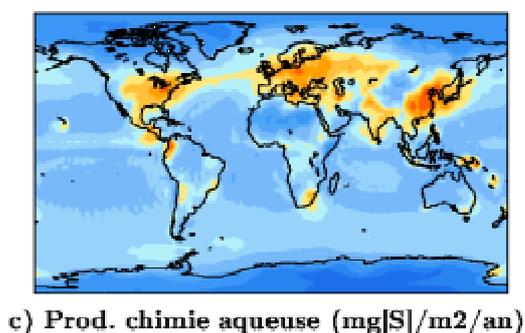
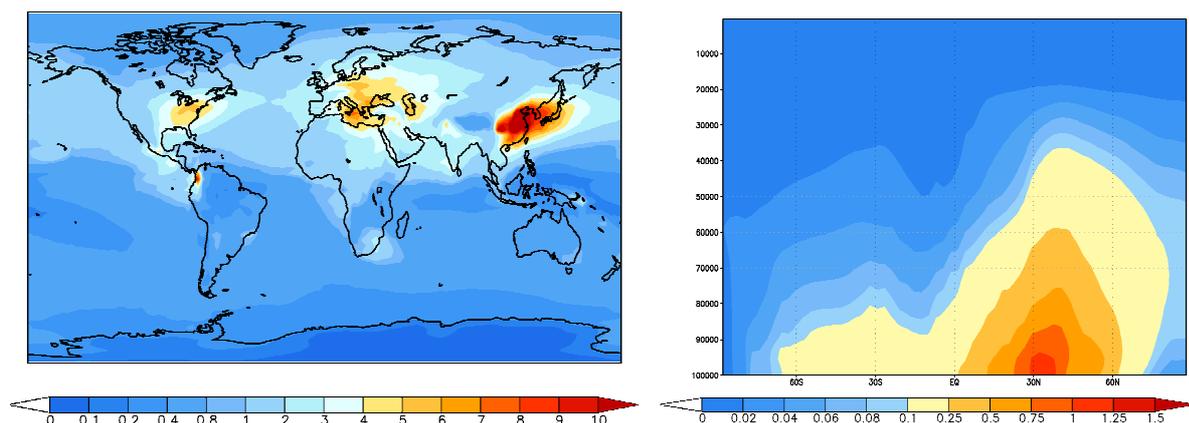


Figure A.3: Moyenne annuelle des champs de sulfate (colonne en $\text{mg[S]}\cdot\text{m}^{-2}$ et moyenne zonale de la concentration en $\mu\text{g[S]}\cdot\text{m}^{-3}$) ainsi que des différents puits (sédimentation, dépôt sec et dépôt humide) et sources (chimie par voies aqueuse et gazeuse, émissions directes) simulés par MOCAGE sur l'année 2000.

Global modeling of atmosphere-aerosols interactions

Martin MENEGOZ

Aerosols influence the Earth radiative budget, both scattering and absorbing solar radiation and through their interactions with clouds. Before quantifying the impact of aerosols on climate, it is necessary to evaluate their concentration in the atmosphere. This is the topic of this work. In particular, three aerosols are studied : sulphate, black-carbon and desert dust. Multi-year simulations are analysed over Europe and high latitudes as a first step and at the global scale as a second step. They are compared with observations and with simulations performed by other models. Our model describe the atmospheric concentration of aerosols quite well. Mains sinks and sources are put forward for each aerosol, which allows to identify ways to better simulate their atmospheric distribution.

KEY-WORDS: Aerosol, Sulphate, Chemical-Transport Model, Scavenging, Climate

AUTEUR : Martin MENEGOZ
TITRE : Modélisation globale des interactions atmosphère-aérosols
DIRECTEUR DE THESE : Daniel Cariolle
LIEU ET DATE : Centre National de Recherches Météorologiques
DE SOUTENANCE : Météo-France, 3 Juillet 2009

RÉSUMÉ :

Les aérosols agissent sur l'équilibre radiatif de la Terre en diffusant et en absorbant le rayonnement solaire et en interagissant avec les nuages. Une première étape pour quantifier l'impact des aérosols sur le climat est l'évaluation de la composition atmosphérique en aérosols. C'est l'objectif de ce travail de thèse. Trois espèces sont étudiées en particulier : le sulfate, le carbone-suie et les poussières désertiques. Des simulations pluriannuelles de l'évolution de ces trois espèces sont analysées d'abord en Europe et aux hautes latitudes, puis globalement. Elles sont confrontées à des observations et à des simulations réalisées par d'autres centres de recherche. Le modèle décrit correctement la concentration atmosphérique de ces trois aérosols. Leurs principaux puits et sources ont été mis en évidence, ce qui permet de proposer les principales clés nécessaires pour modéliser la concentration atmosphérique en aérosols.

MOTS-CLÉS : Aérosol, Sulfate, Modèle de Chimie-Transport, Lessivage, Climat

DISCIPLINE : Physique et chimie de l'atmosphère

INTITULE ET ADRESSE : Centre National de Recherches Météorologiques,
DU LABORATOIRE : Météo-France, 42, Avenue Gaspard Coriolis
31057, TOULOUSE Cedex 1, France