THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse 3 - Paul Sabatier

Présentée et soutenue par

Thomas DRUGÉ

Le 19 novembre 2019

Contribution des aérosols aux scénarios climatiques en Méditerranée pour le XXIème siècle à l'échelle régionale

---

Ecole doctorale : **SDU2E - Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace**

Spécialité : **Océan, Atmosphère, Climat**

Unité de recherche :
CNRM - Centre National de Recherches Météorologiques

Thèse dirigée par
Marc MALLET et Pierre NABAT

Jury

M. Philippe DROBINSKI, Rapporteur
M. Matthias BEEKMANN, Rapporteur
Mme Céline MARI, Examinatrice
Mme Virginie MARECAL, Examinatrice
M. Samuel REMY, Examinateur
M. Marc MALLET, Directeur de thèse

Remerciements

Afin de clôturer au mieux ces trois années de thèse, il me reste un dernier exercice qui peut paraître banal mais qui n'est finalement pas si simple. Il s'agit bien évidemment de remercier l'ensemble des personnes, en essayant d'en oublier le moins possible, qui ont contribué de près ou de loin à cette aventure. Une épopée de 1156 jours qui m'aura permis de me développer aussi bien professionnellement que personnellement.

Mes premiers remerciements vont bien évidemment à mes encadrants, Marc Mallet et Pierre Nabat, qui tout au long de ces trois années de thèse ont su être complémentaires et ainsi m'apporter leurs connaissances, leur rigueur scientifique mais également le soutien et les encouragements nécessaires afin de réaliser ce travail. Je tiens tout particulièrement à les remercier pour leur écoute et leur grande disponibilité durant ces trois années. J'aimerais également remercier Samuel Somot qui, même sans faire officiellement partie de mes encadrants, a toujours été présent mais aussi source d'idées et de conseils.

Je remercie bien entendu Philippe Drobinski et Matthias Beekmann qui m'ont fait l'honneur d'être rapporteurs de ma thèse, mais aussi Virginie Marécal et Samuel Rémy, pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse et avoir pris de leur temps pour relire soigneusement les quelques pages de ce manuscrit. Je remercie également Fabien Solmon et Laurent Menut pour leurs conseils et l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail de thèse mais également pour leur participation aux différentes réunions du comité de thèse.

Cette thèse a été effectuée, dans le groupe GMGEC, au sein de l'équipe MOSCA, dont je tiens à remercier tous les membres pour leur accueil et leur aide technique, informatique ou scientifique. Merci également à l'ensemble des personnes avec qui j'ai pu échanger et travailler, et notamment à François Dulac, Jonathan Guth, Lola Corre et Claudia Gutiérrez mais aussi à toutes les personnes que j'ai côtoyé durant ces trois années à Météo-France.

Et parce que cette expérience n'aurait pas été la même sans eux, je veux adresser un grand merci à toutes les autres personnes qui ont partagé mon quotidien que ce soit au labo mais aussi, et heureusement, lors des nombreuses soirées ou week-ends mémorables qui ont eu lieu dans ces trois années. Pour commencer, merci à l'ensemble des thésards (et assimilés) du CNRM/Cerfacs, et notamment à Matteo, Léo, Rémy, Alexanne, César, Clément, Iris, Quentin, Maxence, Martin, Damien, Zied, ... avec qui j'ai partagé bon nombre de repas et de pauses café. Un merci spécial à

Matteo, Léo et Rémy pour toutes ces soirées, aussi nombreuses que géniales, souvent commencées sur cette inoubliable place mais avec des fins parfois inattendues !

Merci également à Bastien, Sylvain, Jean-Gael, Victoria et Johanna, pour leur amitié depuis Dijon, et pour tous les bons moments passés depuis. Je pense notamment à nos supers week-ends passés à Paris ou à Lyon. Johanna, je tiens également à te remercier pour cette fameuse première semaine à Toulouse, qui restera gravée dans nos esprits. Je tiens aussi fortement à remercier Jonathan et Marine pour les super moments passés ensemble, que ce soit en vacances, dans la magnifique ville d'Angers ou dans ces interminables escapes games (merci par ailleurs à Sonia et Flo pour nous y avoir initié) ! Jonathan, je me rappellerai ces discussions interminables où l'on a parfois passé la nuit à refaire le monde. Vivement maintenant le mois de mai pour célébrer la grande nouvelle !

Un petit mot pour remercier mes parents et toute ma famille (ainsi que Dewey et Noisette), qui même sans toujours bien comprendre ce que je faisais, ont toujours réussi à être présents et à m'encourager. Petite pensée pour Morgan et Charlotte grâce à qui la famille va bientôt s'agrandir ! Un mot également pour Maxime qui fait maintenant presque partie de la famille ainsi que pour Julie, pour son amitié de longue date.

Pour finir je tiens bien évidemment à remercier celle qui me supporte depuis maintenant dix longues années. Un grand merci à toi Jill ! Merci d'être là depuis le début, d'être venue ici à Toulouse avec moi et de m'avoir épaulé durant ces trois années de thèse (en m'obligeant notamment à aller au George & Dragon) !

Résumé

La région Euro-méditerranéenne est soumise à de fortes charges en aérosols d'origine variée et présentant une forte variabilité spatio-temporelle. Le climat de cette région va en être impacté suite à leur effet direct sur le rayonnement mais aussi à travers leurs effets semi-direct et indirects sur les nuages et la dynamique atmosphérique. Ces travaux de thèse, s'inscrivant dans les programmes de recherche Med-CORDEX et ChArMEx, vont aborder au travers de la modélisation climatique régionale la question de l'impact radiatif direct des différents aérosols sur la période historique, leur évolution entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 ainsi que celle de la sensibilité du climat futur de cette région à ces aérosols.

Afin d'avoir une prise en compte la plus complète possible des aérosols anthropiques dans le modèle climatique régional ALADIN-Climat, utilisé tout au long de ce travail de thèse, un nouveau module d'aérosols simplifié permettant de représenter les particules de nitrate et d'ammonium a été implémenté dans son schéma interactif d'aérosols TACTIC. Un ensemble de simulations, prenant en compte ou non les particules de nitrate et d'ammonium, a été réalisé sur la période 1979-2016. Les résultats ont montré l'impact important de ces particules atmosphériques sur le climat de la région Euro-Méditerranéenne avec une contribution à hauteur de 40% à l'AOD totale (à 550 nm) ainsi qu'un forçage radiatif direct supérieur à celui des particules de sulfate et de carbone organique à partir de l'année 2005.

Sur une période de temps plus longue et en utilisant différents scénarios, les résultats montrent une baisse de 35% de l'AOD totale sur l'Europe entre les périodes 1971-2000 et 2021-2050. Celle-ci est principalement due à la forte diminution de l'AOD des aérosols de sulfate compensée en partie par la hausse des nitrates. Ces derniers auront par ailleurs la contribution à l'AOD totale la plus élevée sur l'Europe, à hauteur de 45%, sur la période future. Cette évolution des différents aérosols va impacter leur forçage radiatif direct avec notamment une baisse significative de celui exercé par les particules de sulfate et une hausse de celui des aérosols de nitrate et d'ammonium. Ces changements, robustes en fonction des différents scénarios, expliquent en moyenne annuelle environ 6% du réchauffement climatique attendu sur l'Europe entre les deux périodes, principalement dû aux interactions aérosols-rayonnement mais également par une modification de l'albédo des nuages (premier effet indirect) et de la dynamique atmosphérique sur cette région.

Mots-clés : Région Euro-Méditerranéenne, modélisation climatique régionale, CMIP6, aérosols, changement climatique

Abstract

The Euro-Mediterranean region is subject to high aerosol loads of various origins and with high spatial and temporal variability. The climate of this region will be impacted by their direct effect on radiation but also by their semi-direct and indirect effects on clouds and atmospheric dynamics. This thesis work, which is part of the Med-CORDEX and ChArMEx research programmes, will address through regional climate modelling the question of the direct radiative effect of the various aerosols over the historical period, their evolution between the period 1971-2000 and the period 2021-2050 as well as the sensitivity of the future climate of this region to these aerosols.

In order to take into account as fully as possible anthropogenic aerosols in the ALADIN-Climat regional climate model, used throughout this thesis work, a new simplified aerosol module to represent nitrate and ammonium particles has been implemented in its interactive aerosol scheme TACTIC. A set of simulations, taking into account or not nitrate and ammonium particles, were carried out over the period 1979-2016. The results showed the significant impact of these atmospheric particles on the Euro-Mediterranean climate with a contribution of 40% to the total AOD (at 550 nm) and a direct radiative forcing higher than that of sulphate and organic carbon particles from 2005.

Over a longer period of time and using different scenarios, results show a decrease of total AOD of 35% over Europe between 1971-2000 and 2021-2050. This is mainly due to the decrease of the sulphate aerosols AOD, partly offset by the increase of nitrates. Nitrate particles will also have the highest total AOD contribution over Europe, of 45%, during the future period. This evolution of the various aerosols will impact their direct radiative forcing, with a significant decrease in that exerted by sulphate particles and an increase in that of nitrate and ammonium aerosols. These changes, which are robust under the different scenarios, explain on an annual average about 6% of the expected global warming over Europe between the two periods, mainly due to aerosols-radiation interactions but also to a change in cloud albedo (first indirect effect) and atmospheric dynamics over this region.

keywords : Euro-Mediterranean region, regional climate modelling, CMIP6, aerosols, climate change

Sommaire

1 Introduction générale 1

1.1 Climat et aérosols 1

1.1.1 Définition et classification des aérosols . . 1

1.1.2 Interactions aérosols-rayonnement 7

1.1.3 Effets des aérosols sur le climat 11

1.1.3.1 Effet direct 12

1.1.3.2 Effet indirect 13

1.1.3.3 Effet semi-direct 14

1.1.3.4 Autres effets 15

1.1.4 Modélisation des aérosols et de leurs interactions avec le climat 16

1.2 La région Euro-Méditerranéenne 19

1.2.1 Caractéristiques de la région Euro-Méditerranéenne 19

1.2.2 Le chantier MISTRALS 21

1.2.3 Modélisation régionale du climat et des interactions aérosols-climat sur la région Euro-Méditerranéenne 23

1.3 Projection climatique 27

1.3.1 Les scénarios climatiques 27

1.3.2 La région Euro-Méditerranéenne : un "hot-spot" du changement climatique 32

1.3.3 Prise en compte de l'évolution future des aérosols par les modèles régionaux sur la région Euro-Méditerranéenne 35

1.4 Présentation de la thèse 37

1.4.1 Objectifs principaux de la thèse 37

1.4.2 Démarche scientifique 38
1.4.3 Organisation de la thèse 39

2 Développement du schéma d'aérosols du modèle ALADIN-Climat 41
2.1 Le modèle régional ALADIN-Climat et son schéma d'aérosols TACTIC 42
2.2 Résumé de l'article 54
2.3 Simulation des aérosols de nitrate et d'ammonium sur la région méditerranéenne et étude de leurs effets radiatifs et climatiques sur la période 1979-2016 (article) 56
Abstract 57
1 Introduction 57
2 Model description 59
3 Methodology 62
4 Evaluation of the new aerosol scheme and analysis of the spatio-temporal variability and trends of A&N aerosols . . . 65
5 Impact of ammonium and nitrate aerosols on the radiative budget and regional climate 73
6 Conclusion 75
References 77
2.4 Conclusions et perspectives 82

3 Évolution des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne entre la période 1971-2000 et 2021-2050 85
3.1 Méthodologie 85
3.2 Émissions CMIP6 88

3.3 Étude de l'évolution des aérosols avec le modèle régional ALADIN-Climat 94
3.3.1 Les aérosols naturels 94
3.3.1.1 Les poussières désertiques . . . 94
3.3.1.2 Les sels marins primaires 102
3.3.2 Les aérosols anthropiques 106
3.3.2.1 Le couplage ammonium-nitrate-sulfate 106
3.3.2.2 Le carbone suie et le carbone organique 112
3.3.3 Récapitulatif 115
3.4 Comparaison de l'évolution de l'AOD entre le modèle CNRM-ESM2-1 et ALADIN-Climat . . 120

4 Impact des aérosols sur le rayonnement et sensibilité du climat futur de la région Euro-Méditerranéenne aux aérosols anthropiques 127
4.1 Évolution du forçage radiatif direct des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne 128
4.2 Sensibilité du climat Euro-Méditerranéen futur aux aérosols 137
4.2.1 Projections climatiques sur la région Euro-Méditerranéenne 137
4.2.2 Impact de l'évolution des aérosols sur le climat européen 140
4.2.2.1 Cas particulier de la péninsule Ibérique 145
4.2.2.2 Cas particulier de l'ouest de la France 148
4.2.3 Récapitulatif 149

4.3 Comparaison entre deux méthodes : schéma interactif versus AOD climatologiques 150

5 Conclusions et perspectives 157

5.1 Développement du schéma interactif d'aérosols TACTIC 157

5.2 Conclusions scientifiques 158

5.3 Perspectives 161

Références 164

Glossaire 195

Liste des tableaux

1.1 Estimation des émissions annuelles (en Tg an^{-1}) des principales sources d'aérosols primaires (bleu) et d'aérosols secondaires (rouge). D'après le chapitre 7 (Clouds and aerosols) du 5ème rapport de l'IPCC (2013). 8

1.2 Paramètre d'asymétrie des principaux aérosols atmosphériques. D'après la thèse de F. Malavelle (2011). 10

1.3 Albédo de Simple Diffusion des principaux aérosols atmosphériques. D'après la thèse de F. Malavelle (2011). 11

1.4 Méthode de prise en compte des aérosols et leur variabilité temporelle dans les différents modèles régionaux participant au projet Euro/Med-CORDEX. Le nom complet des différents centres est indiqué dans le glossaire. 24

1.5 Méthode de prise en compte des aérosols dans les différents modèles régionaux participant au FPS aérosol. Le nom complet des différents centres est indiqué dans le glossaire. 26

1.6 Relations possibles entre les différents RCPs et SSPs du projet ScenarioMIP (Scenario Model Intercomparison Project) qui fait partie du projet CMIP6 (Gidden et al., 2019). 31

2.1 Vitesses (en m s^{-1}) de dépôt sec (Vit. dép. sec), de sédimentation (Eff. sédim.) mais aussi d'efficacité en terme de dépôt humide dans (Eff. ic.) et sous (Eff. bc. r. pour la pluie et Eff. bc. s. pour la neige) le nuage pour les différents aérosols ainsi que pour le dioxyde de souffre (SO_2) et l'ammoniac (NH_3) présents dans le schéma d'aérosols TACTIC. NA = non appliqué, DD = poussières désertiques, SS = sels marins, BC = carbone suie, OM = carbone organique, SO_4 = sulfate, NO_3 = nitrate et NH_4 = ammonium. 48

2.2 Efficacité d'extinction (k_{ext}, m^2 g^{-1}), paramètre d'asymétrie (g) et albédo de simple diffusion (SSA) des différents aérosols présents dans le schéma d'aérosols TACTIC à 550 nm pour trois valeurs d'humidité relative : 0% (bleu), 50% (rouge) et 90% (vert). Les valeurs concernant les espèces non dépendantes de l'humidité relative (poussières désertiques et carbone suie) sont en noir. DD = poussières désertiques, SS = sels marins, BC = carbone suie, OM = carbone organique, SO_4 = sulfate, NO_3 = nitrate et NH_4 = ammonium. 52

3.1 Présentation des principales caractéristiques des cinq simulations utilisées au cours des chapitres 3 et 4 de la thèse. 86

3.2 Évolution de l'AOD (550 nm) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur la partie ouest et est de la mer Méditerranée et de l'Afrique. 101

3.3 Évolution de l'AOD (550 nm) des sels marins entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur la mer Méditerranée, l'océan Atlantique, la mer Rouge, la mer Noire et la mer du Nord. 106

3.4 Évolution de l'AOD (550 nm) des sulfates, des nitrates et de l'ammonium entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur l'Europe (en rouge) et la mer Méditerranée (en bleu). 111

3.5 Évolution de l'AOD (550 nm) du carbone organique et du carbone suie entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur l'Europe. . . 113

3.6 Contribution relative (en %) des différents aérosols à l'AOD totale (550 nm) sur la période historique (1971-2000) et sur la période future (2021-2050) selon les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5. 119

4.1 DRF moyen (W m^{-2}) en fonction des différentes saisons, dans les courtes et grandes longueurs d'onde, de l'ensemble des aérosols sur la période 1971-2000 en surface et au TOA sur l'Europe, la mer Méditerranée et l'Afrique. 130

4.2 Différences moyennes entre les simulations SSP585 et Hist montrant la hausse de température (°C) sur l'Europe et l'Afrique entre la période 1971-2000 et 2021-2050 et entre les simulations SSP585 et SSP585cst montrant la contribution (en °C et en %) des différents aérosols à ce réchauffement. 142
4.3 Caractéristiques des différentes simulations (TACTIC et CLIM). . . . 152
4.4 Réchauffement observé sur l'Europe (°C), en moyenne saisonnière et annuelle, entre la période historique (1971-2000) et future (2021-2050) ainsi que la part de celui-ci (°C et %) expliquée par l'évolution des aérosols pour les simulations TACTIC et CLIM. 154
4.5 Différences annuelles moyennes, sur l'Europe, de l'AOD des aérosols de sulfate, de carbone organique, de carbone suie, de nitrate et d'ammonium entre les simulations RCP85 et RCP85cst (CLIM) ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst (TACTIC). 156

Liste des figures

1.1 Aérosols visibles lors d'une tempête de sable à Phoenix (gauche, 21/08/2016, photo de Tyler Herrick) ou lors d'un épisode de pollution aux particules fines à Paris (droite, 12/12/2013, photo de Duclos/GAMMA). 1

1.2 Représentation des effets directs (A), indirects (B.1 et B.2) et semi-directs (C) des aérosols. D'après le chapitre 2 (Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing) du 4ème rapport de l'IPCC (2007). CDNC = concentration en nombre des gouttelettes nuageuses (cloud droplet number concentration) et LWC = contenu intégré en eau liquide (liquid water content). 12

1.3 Lien entre la nouvelle terminologie utilisée dans le 5ème rapport de l'IPCC (AR5) concernant les interactions aérosols-rayonnement (ERFari) et aérosols-nuages (ERFaci) et celle utilisée dans le 4ème rapport (AR4). Les flèches bleues représentent le rayonnement solaire, les flèches grises le rayonnement terrestre et la flèche marron symbolise l'importance des couplages entre la surface et la couche nuageuse pour des ajustements rapides. (IPCC, 2013). 14

1.4 Forçage radiatif semi-direct en fonction du type de nuage (cumulus ou stratocumulus) et de sa position par rapport à la couche d'aérosols (AA : Absorption du rayonnement solaire par la couche d'Aérosols). D'après Péré (2010) 16

1.5 Localisation des principales sources d'aérosols de la région Euro-Méditerranéenne. 20

1.6 Comparaison de l'évolution du forçage radiatif des scénarios RCP (traits pleins) et des anciens scénarios SRES (tirets). D'après le site du DRIAS (http ://www.drias-climat.fr/accompagnement/sections/175) 28

1.7 Les cinq SSP types, répartis selon le défi socio-économique pour l'adaptation et pour l'atténuation (Adapté de O'Neill et al. 2014). 29

1.8 Projection future (2071-2100) de la température annuelle moyenne comparée à la période 1971-2000 pour les scénarios RCP 4.5 et RCP 8.5. Les changements sont significatifs sur tout le continent européen. D'après Jacob et al. (2014). 33

1.9 Projection future (2071-2100) des précipitations annuelles moyennes comparée à la période 1971-2000 pour les scénarios RCP 4.5 et RCP 8.5. Les zones hachurées indiquent les régions avec un changement robuste (\) et/ou statistiquement significatif (/). D'après Jacob et al. (2014). 34

2.1 Modèle climatique régional ALADIN-Climat et ses principales composantes. 43
2.2 Émission (ou tendances de formation pour les nitrates et l'ammonium) mensuelle moyenne (kg m^{-2} s^{-1}) sur la période 1971-2000 pour chacune des seize variables pronostiques du schéma d'aérosols d'ALADIN-Climat. 49
2.3 Schéma des différentes espèces et des processus inclus dans le schéma interactif d'aérosols TACTIC. 54

3.1 Le modèle global CNRM-ESM2-1 et ses différentes composantes. . . . 87
3.2 Émissions ($kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) CEDS et CMIP6 (droite), sur l'Europe, provenant des principaux secteurs d'activité humaine (résidentiel, agriculture, énergie, industriel, transport terrestre et maritime, déchets, solvant, aérien) comparées aux émissions CMIP5 (gauche) pour le dioxyde de soufre, l'ammoniac, le carbone suie et le carbone organique. Les croix symbolisent les 3 scénarios choisis pour ce travail de thèse (SSP 1-1.9, SSP 3-7.0 et SSP 5-8.5). Les barres grisées mettent en évidence la période passée et future des simulations. 89
3.2 Suite. 90
3.3 Émissions ($kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) CEDS et CMIP6 (droite), sur l'Europe, provenant des feux (naturels et anthropiques) comparées aux émissions CMIP5 (gauche) pour le dioxyde de soufre, l'ammoniac, le carbone suie et le carbone organique. Les croix symbolisent les 3 scénarios choisis pour ce travail de thèse (SSP 1-1.9, SSP 3-7.0 et SSP 5-8.5). Les barres grisées mettent en évidence la période passée et future des simulations. 91
3.3 Suite. 92
3.4 Évolution des émissions (gauche, $kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) et de la concentration de surface (droite, $\mu g\,m^{-3}$) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), moyennées sur l'année, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 95

3.5 Évolution des émissions ($kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), saison par saison, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 97

3.6 Différence de vitesse de vent ($m\ s^{-1}$) entre la période future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 et la période passée (1971-2000) moyennée saison par saison. Les zones non hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 98

3.7 Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) en surface des poussières désertiques en fonction de leur taille (bin 1 en rouge, bin 2 en vert et bin 3 en bleu) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 sur la Libye. 99

3.8 Évolution de l'AOD (550 nm) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 (haut à gauche), le SSP 3-7.0 (haut à droite) et le SSP 1-1.9 (bas) moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 100

3.9 Évolution des émissions (gauche, $kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) et de la concentration de surface (droite, $\mu g\,m^{-3}$) des sels marins entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), moyennées sur l'année, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 102

3.10 Évolution des émissions des sels marins ($kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) saison par saison entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 103

3.11 Dépendance du coefficient T_W à la SST (°C), dont dépendent les émissions de sels marins entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) avec le SSP 5-8.5 sur la zone de la Méditerranée avec la plus forte hausse des émissions. 104

3.12 Évolution de l'AOD (550 nm) des sels marins entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), moyennées sur l'année, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%. 105

3.13 Concentrations (molécules cm^{-2}) en ammoniac mesurée par l'instrument IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge) équipé sur les satellites météorologiques européens. Les régions sources sont délimitées par les cadres blancs. Les cercles noirs identifient les points sources les plus importants et leur taille quantifie le flux d'émissions ($kg\,s^{-1}$). D'après Van Damme et al. (2018). 107

3.14 Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) en surface des sulfates (haut à gauche), des nitrates (haut à droite) et de l'ammonium (bas) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 et moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 108

3.15 Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) en surface des sulfates (rouge), des nitrates (gris) et de l'ammonium (noir) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 sur l'Europe. . 109

3.16 Évolution de l'AOD (550 nm) des sulfates (gauche), des nitrates (milieu) et de l'ammonium (droite) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 (haut), le SSP 3-7.0 (milieu) et le SSP 1-1.9 (bas) moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 110

3.17 Évolution de la concentration de surface ($\mu g\,m^{-3}$) du carbone organique et du carbone suie entre la période 1971-2000 et 2021-2050 suivant le SSP 5-8.5 et moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 112

3.18 Évolution de l'AOD (550 nm) du carbone organique (gauche) et du carbone suie (droite) entre la période 1971-2000 et 2021-2050 suivant le SSP 5-8.5 (haut), le SSP 3-7.0 (milieu) et le SSP 1-1.9 (bas) moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 114

3.19 Évolution de l'AOD totale entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5. . . 116

3.20 Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) et de l'AOD des différents aérosols entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5 sur l'Europe et la mer Méditerranée. 117

3.21 Évolution de l'AOD totale (A) et de l'AOD totale sans les particules de nitrate et d'ammonium (B) sur la période 1950-2100 suivant le modèle global CNRM-ESM2-1 (trait plein) et le modèle régional ALADIN-Climat (trait pointillé) pour différents SSPs sur l'Europe, la mer Méditerranée et l'Afrique. Les barres grisées mettent en évidence la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) des simulations réalisées avec le modèle régional ALADIN-Climat. 121

3.22 Évolution de l'AOD des sulfates sur l'Europe suivant le modèle global CNRM-ESM2-1 (trait plein) et le modèle régional ALADIN-Climat (trait pointillé) pour différents SSPs sur la période 1950-2100. Les barres grisées mettent en évidence la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) des simulations réalisées avec le modèle régional ALADIN-Climat. 122

3.23 Évolution, sur l'Afrique, de l'AOD des poussières désertiques (A), de la vitesse du vent (m s^{-1}, B) et de la fraction de sol nu (%, C) sur la période 1950-2100 suivant le modèle global CNRM-ESM2-1 (trait plein) et le modèle régional ALADIN-Climat (trait pointillé) pour différents SSPs. Les barres grisées mettent en évidence la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) des simulations réalisées avec le modèle régional ALADIN-Climat. 124

4.1 DRF moyen (W m^{-2}), dans les courtes (a) et grandes (b) longueurs d'onde, de l'ensemble des aérosols sur la période 1971-2000 en surface et au TOA. 128

4.2 Évolution du forçage radiatif (W m^{-2}) direct moyen, dans les courtes longueurs d'onde en surface et au TOA, de l'ensemble des aérosols entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 en fonction du SSP 5-8.5 (a), du SSP 3-7.0 (b) et du SSP 1-1.9 (c). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 132

4.3 Idem Figure 4.2 pour les grandes longueurs d'onde. 134

4.4 Évolution du DRF (W m^{-2}) des sulfates et du carbone organique (en rouge), des sels marins (en bleu), des poussières désertiques (en marron), du carbone suie (en jaune) et des nitrates et de l'ammonium (en gris), dans les courtes longueurs d'onde en surface, entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050) en fonction des SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5. 136

4.5 Différences moyennes, saison par saison, entre les simulations SSP585 et Hist pour la température de surface (°C, a), les précipitations (mm jour^{-1}, b), la nébulosité (%, c) et l'humidité spécifique en surface (g kg^{-1}, d). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 139

4.6 Idem Figure 4.5 avec les simulations SSP585 et SSP585cst. 141

4.7 Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour l'AOD totale des aérosols (a), pour le forçage radiatif dû aux interactions aérosols-rayonnement (ERFari, W m^{-2}) en surface et au TOA et aux interactions aérosols-nuages (ERFaci, W m^{-2}, b) ainsi que pour la température de surface (°C, c). Le cadre marron représente l'Europe centrale et les deux cadres bleus localisent l'ouest de la France et la péninsule Ibérique (cas particuliers). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 144

4.8 Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour le rayonnement à la surface (W m^{-2}). La péninsule Ibérique est localisée par le cadre bleu. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 145

4.9 Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour le rayon effectif des gouttelettes nuageuses à 850 hPa (haut à gauche, µm), le contenu atmosphérique en vapeur d'eau (haut à droite, g m^{-2}), l'épaisseur optique des nuages (bas à gauche) ainsi que sur la nébulosité (bas à droite, %). La péninsule Ibérique est localisée par le cadre bleu. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 146

4.10 Profil vertical, obtenu par différence entre la simulation SSP585 et la simulation SSP585cst, de la température (°C), du coefficient d'extinction total (10^4 m^{-1}), du vent méridien et zonal (m s^{-1}) ainsi que de l'humidité spécifique (10^3 Kg Kg^{-1}) sur la péninsule Ibérique durant les mois de juin, juillet et août. 147

4.11 Idem Figure 4.10 sur la zone "Ouest de la France". 148

4.12 Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour la pression au niveau de la mer (hPa). La région de l'ouest de la France est localisée par le cadre bleu. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 149
4.13 Différences annuelles moyennes entre les simulations RCP85 et Histclim (gauche) ainsi que entre les simulations SSP585 et Hist (droite) pour la température de surface (°C). 151
4.14 Différences moyennes, sur l'année, entre les simulations RCP85 et RCP85cst (gauche) ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst (droite) pour la température de surface (°C). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 153
4.15 Différences moyennes, sur l'année, entre les simulations RCP85 et RCP85cst (gauche) ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst (droite) pour l'AOD totale des aérosols (haut) et le rayonnement en surface (bas, W m^{-2}). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%. 155

5.1 Concentration (molécules cm^{-2}) en ammoniac mesurée par l'instrument IASI équipé sur les satellites météorologiques européens. D'après Van Damme et al. (2018). 163

Chapitre 1

Introduction générale

Sommaire

1.1 Climat et aérosols 1

1.2 La région Euro-Méditerranéenne 19

1.3 Projection climatique 27

1.4 Présentation de la thèse 37

1.1 Climat et aérosols

1.1.1 Définition et classification des aérosols

Les aérosols atmosphériques correspondent à toutes les particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère. Les hydrométéores comme les particules nuageuses (gouttelettes d'eau nuageuse, cristaux de glace) ou les précipitations solides (flocons de neige, grêlons) et liquides (gouttes de pluie) sont exclus de cette définition.

FIGURE 1.1 – Aérosols visibles lors d'une tempête de sable à Phoenix (gauche, 21/08/2016, photo de Tyler Herrick) ou lors d'un épisode de pollution aux particules fines à Paris (droite, 12/12/2013, photo de Duclos/GAMMA).

Malgré leur petite taille, allant de quelques nanomètres à plusieurs micromètres de diamètre, les aérosols peuvent parfois être visibles notamment lors de tempêtes de sable (Figure 1.1, gauche) ou lors d'épisodes de pollution aux particules fines (Figure 1.1, droite). La distribution en taille de ces particules, qui représente la répartition des aérosols en fonction de leur diamètre, fait apparaître plusieurs maxima relatifs qualifiés de modes (Junge, 1955; Whitby, 1978).

- **Mode nucléation ou Aitken :** Il s'agit des particules les plus fines dont le diamètre est compris entre 0.001 µm et 0.1 µm. Ces particules sont formées par un processus de conversion gaz-particules, appelé nucléation (Whitby, 1978). Ces particules très fines ont un temps de vie assez court (quelques minutes au maximum) car elles vont rapidement s'agréger entre elles pour former des particules de taille plus importante. Il s'agit ici du processus de coagulation.
- **Mode accumulation :** Les aérosols présents dans ce mode ont un diamètre variant de 0.1 à 2 µm et résultent principalement de la coagulation des particules du mode nucléation. Ces particules ont le temps de résidence dans l'atmosphère le plus élevé, pouvant aller jusqu'à plusieurs jours. Les modes nucléation et accumulation correspondent à la partie fine des aérosols.
- **Mode grossier :** Ce mode comprend les particules avec un diamètre supérieur à 2 µm. Il s'agit essentiellement des aérosols émis directement depuis la surface par des processus mécaniques (action du vent). Ces particules grossières sont généralement inférieures en nombre par rapport aux particules fines mais représentent la part la plus importante de la concentration massique des aérosols.

Au cours du transport atmosphérique, ces différents types d'aérosols vont se mélanger. On considère trois types de mélange possible. Près des sources d'émissions, les aérosols sont généralement séparés les uns des autres. Ce type de mélange est appelé mélange externe (Chow et al., 2004; Mallet et al., 2004). Au cours du temps, les aérosols vont interagir entre eux ou avec une phase gazeuse et ainsi former un mélange de différents constituants chimiques appelé mélange interne. Ce mélange interne est dit homogène lorsque les espèces chimiques sont bien mélangées entre elles. Dans le cas inverse il s'agit d'un mélange interne hétérogène, aussi appelé mélange core-shell. Toujours au cours de leur transport atmosphérique, les aérosols vont aussi être soumis à des phénomènes de dépôt pouvant les éliminer de l'atmosphère en les faisant retomber à la surface. Deux types de dépôts existent, le premier étant le dépôt sec qui a lieu en l'absence de précipitations. Ce type de dépôt dépend de la taille des particules, les aérosols grossiers étant éliminés par la sédimentation

gravitationnelle et les aérosols fins par diffusion brownienne (mouvement turbulent des aérosols aboutissant parfois à leur dépôt sur un obstacle ou une surface). Le dépôt humide, quant à lui, correspond au processus de lessivage par la pluie. Il peut avoir lieu soit directement dans le nuage où l'aérosol est utilisé comme noyau de condensation, soit dans les précipitations sous le nuage si l'aérosol se fait incorporer par une gouttelette d'eau (Seinfeld and Pandis, 2006). Ces différents types de dépôts étant plus efficaces sur les aérosols grossiers, ceux-ci vont avoir un temps de résidence dans l'atmosphère inférieur à celui des aérosols du mode accumulation, se situant entre quelques heures et quelques jours.

Afin de décrire plus précisément les différents aérosols, il est nécessaire de les classer. Une première façon de le faire est selon leur mode de formation (primaire ou secondaire). Un aérosol primaire est émis tel quel dans l'atmosphère depuis la surface tandis que les aérosols secondaires résultent de transformations chimiques. Une deuxième manière de classer les aérosols est de les regrouper par taille, comme le font les organismes de surveillance de la qualité de l'air. En effet ceux-ci font référence aux particules dont le diamètre est inférieur à 2.5 µm (PM 2.5, PM : «Particulate Matter») et 10 µm (PM 10) en raison de leur impact sanitaire, les PM 10 pouvant pénétrer dans les bronches et les PM 2.5 dans les alvéoles pulmonaires. Une autre classification possible, que nous allons détailler ici, est de regrouper les aérosols selon leur origine naturelle ou anthropique.

Les aérosols naturels

À l'échelle du globe, les aérosols d'origine naturelle constituent jusqu'à 90% du flux massique alors que ceux d'origine anthropique ne représentent que 10% (Satheesh and Moorthy, 2005). Cependant, la taille et la composition chimique de chaque type d'aérosol sont différentes selon son origine. Les aérosols d'origine naturelle, regroupant les sels marins, les poussières désertiques, les aérosols biogéniques ainsi que les aérosols volcaniques sont présentés ci-dessous.

Issus des océans, mers (sels marins)

Les sels marins sont produits et émis dans l'atmosphère à partir de l'action du vent sur des surfaces océaniques. Ce mode d'émission fait donc de ces particules des aérosols primaires. La vitesse du vent est ainsi l'élément principal concernant la formation d'aérosols marins. Néanmoins, la SST (Sea Surface Temperature) ou d'autres paramètres comme la salinité ou l'état de la mer, liés au déferlement des vagues, agissent aussi sur les émissions de sels marins (Lewis et al., 2004; Sellegri

et al., 2006; Jaeglé et al., 2011; Sofiev et al., 2011; Grythe et al., 2014). Les océans, recouvrant plus de 70% de la surface du globe, induisent la présence de ces aérosols sur une grande partie de la planète. À plus fine échelle, les conditions météorologiques régionales et locales génèrent une forte variabilité spatiale et temporelle. Ces aérosols marins sont constitués à plus de 85% de chlorure de sodium (NaCl) mais certains ions chimiques présents dans l'eau de mer comme le sulfate, le potassium, le calcium ou encore le magnésium peuvent aussi être observés (Piazzola et al., 2012). Ces aérosols peuvent également contenir de la matière organique dont la concentration varie en fonction de l'activité biologique (Cavalli et al., 2004). Les sels marins sont aussi fortement réactifs avec d'autres espèces présentes dans l'atmosphère comme les acides nitriques ou sulfuriques, et leur composition chimique peut être modifiée durant leur transport (Sturges and Shaw, 1993; Johansen et al., 1999; Kumar et al., 2008). Ces particules, de tailles très variées allant de la fraction fine à la fraction grossière, soit de quelques nanomètres à quelques dizaines de micromètres, représentent la majeure partie des flux d'émissions d'aérosols naturels, allant de 1000 à 10 000 Tg an^{-1} avec une moyenne de 3000 Tg an^{-1} (Delmas et al., 2005).

Issus de la surface terrestre (poussières désertiques)

La présence de poussières désertiques dans l'atmosphère est principalement liée à l'action du vent sur la surface terrestre, au travers du processus d'érosion éolienne, dans les régions arides ou semi-arides de la planète. Tout comme les sels marins, les poussières désertiques sont donc des aérosols primaires. La mise en suspension de ces particules dans l'atmosphère se déroule en deux étapes successives. La première consiste au soulèvement des particules les plus grossières du sol lorsque la vitesse du vent dépasse un certain seuil. Ces particules grossières vont alors être déplacées à la surface du sol par "sauts successifs". Il s'agit du processus de saltation. Ces particules grossières, en retombant sur le sol, vont à leur tour envoyer dans l'atmosphère des particules plus fines. Il s'agit cette fois du processus dit de "sandblasting". C'est donc la vitesse du vent mais aussi les caractéristiques du sol comme sa rugosité, son humidité ou encore sa composition chimique qui conditionnent la mise en mouvement de ces particules (Gillette, 1979; Laurent et al., 2008). Par la suite, les particules les plus grossières retombent rapidement au sol tandis que les particules les plus fines peuvent rester en suspension dans l'atmosphère pendant plusieurs semaines et donc se déplacer sur plusieurs milliers de kilomètres (Uno et al., 2009). À l'échelle globale, les émissions de poussières désertiques sont estimées entre 1000 et 4000 Tg an^{-1} (IPCC, 2013) et proviennent en grande partie de l'hémisphère nord où se

trouvent de nombreuses zones désertiques. Par exemple, le désert du Sahara constitue la plus importante source de particules désertiques pouvant être transportées jusqu'en Europe (Bègue et al., 2012). Les poussières désertiques appartiennent en grande majorité au mode grossier de la distribution des aérosols. Les compositions minéralogiques des poussières désertiques sont fortement dépendantes de leur région d'origine. Ces aérosols sont essentiellement composés d'alumino-silicates comme du quartz ou de l'argile (Schütz and Sebert, 1986) et d'évaporites (calcite, gypse, etc.). La proportion d'argile est largement prédominante par rapport aux autres minéraux (entre 80 et 90% du volume). Des oxydes métalliques comme le fer ou l'aluminium ont également été mis en évidence (Lafon et al., 2006). Ces particules sont donc majoritairement constitués de silicium (Si), d'aluminium (Al), de fer (Fe), de calcium (Ca), de potassium (K) et de titane (Ti).

Issus des organismes vivants (aérosols biogéniques)

Ces aérosols, pouvant être primaire ou secondaire, sont émis par les organismes vivants et sont de natures et de tailles très variées. Les aérosols biogéniques primaires, essentiellement émis par la végétation sous forme de particules, de pollens ou de spores regroupent aussi les virus et les bactéries. Les processus sources et de quantification de ces particules sont donc complexes.

Les aérosols biogéniques secondaires, quant à eux, peuvent être formés à partir de composés organiques émis par les végétaux, appelés composés organiques volatiles (COV). Ces COV, résultant du mélange d'un grand nombre de molécules organiques différentes, vont ensuite s'oxyder dans l'atmosphère et former des aérosols organiques secondaires (SOA). Les aérosols biogéniques secondaires peuvent aussi se former à partir de composés gazeux, notamment produits par le phytoplancton, qui après son oxydation dans l'atmosphère va former des sulfates.

Issus des volcans (aérosols volcaniques)

Les volcans, au cours des éruptions, émettent des particules minérales de taille allant du micromètre à quelques millimètres appelées cendres volcaniques. Les volcans émettent aussi certains gaz comme le dioxyde de soufre qui, après oxydation dans l'atmosphère, formeront des aérosols soufrés. Lors d'éruptions importantes, ces cendre volcaniques et ces aérosols soufrés peuvent se déplacer sur plusieurs milliers de kilomètres et atteindre la stratosphère, engendrant ainsi un refroidissement de l'atmosphère sur des périodes de temps assez longues pouvant aller jusqu'à plusieurs années. Ce fut le cas avec l'éruption du Tambora situé en Indonésie et ayant eu lieu en 1815, ou encore avec celle du Pinatubo situé dans l'archipel des Philippines et ayant

eu lieu en 1991, engendrant un refroidissement global de l'ordre de 0.5°C au cours de l'année suivante (Parker et al., 1996). À l'inverse des volcans cités précédemment et qui sont de type explosif (émission de laves fragmentées dans l'atmosphère), les volcans de type effusif (coulées de laves fluides à la surface du volcan) tel que l'Etna, sont une source continue de gaz soufré (Allard et al., 1991; Oppenheimer et al., 2003).

Issus de la combustion de biomasse (aérosols carbonés)

Une autre source d'aérosols naturels est la combustion de biomasse (feux de foret, de savane, etc), lorsque celle-ci se produit naturellement, formant des aérosols carbonés. Ces feux étant dorénavant très souvent d'origine anthropique, ces aérosols seront décris ci-après dans le paragraphe consacré aux aérosols anthropiques.

Issus d'autres aérosols (aérosols nitrés)

Pour finir, certains aérosols naturels peuvent également être source d'autres particules comme c'est le cas avec les sels marins et les poussières désertiques qui, combinés à l'oxyde d'azote, peuvent former des aérosols nitrés du mode grossier (Harrison and Kitto, 1990; Wakamatsu et al., 1996).

Les aérosols anthropiques

Comme vu précédemment, la proportion en masse d'aérosols d'origine naturelle peut aller jusqu'à 90% mais les propriétés des aérosols anthropiques, qui ne représente que 10%, modifient le bilan radiatif de la Terre et créent des perturbations importantes sur le climat. Les aérosols d'origine anthropique proviennent généralement de la combustion de biomasse ou de matière fossile ou alors de l'utilisation d'engrais pour l'agriculture.

Issus de la combustion de biomasse ou de matière fossile (aérosols carbonés)

Les aérosols carbonés sont issus de la combustion de biomasse ou de matière fossile. Ils peuvent par exemple provenir de rejets d'usines, de l'utilisation des combustibles fossiles (transport, énergie) ou encore d'incendies volontaires comme la culture sur brûlis, la déforestation ou le chauffage à l'aide de biomasse. Les aérosols carbonés présentent par conséquent une grande diversité en matière de source et de composition. Ils peuvent se diviser en deux groupes, les aérosols carbonés primaires d'un coté et les aérosols carbonés secondaires de l'autre.

Les aérosols carbonés primaires, de taille submicronique, correspondent aux aérosols de carbone suie (ou black carbon) ainsi qu'aux aérosols de carbone organique primaire. Les aérosols de carbone suie proviennent de combustions vives qui gé-

nèrent des particules riches en carbone et sont donc essentiellement constitués de cet élément. En revanche, les aérosols de carbone organique proviennent en majorité de combustions sans flammes et sont constitués à la fois de carbone, d'oxygène et d'hydrogène. En termes d'émissions, celles des aérosols de carbone suie sont estimées à environ 7.7 Tg an^{-1} et celles de carbone organique à 66.1 Tg an^{-1} (Dentener et al., 2006).

Les aérosols carbonés secondaires, de taille submicronique, proviennent eux aussi de la combustion de biomasse et de matière fossile. En effet, la combustion de biomasse va émettre dans l'atmosphère de nombreux composés gazeux comme le dioxyde de soufre ou des COV qui serviront de précurseurs dans la formation d'aérosols secondaires. Quant à la combustion de matière fossile, elle va elle aussi émettre des précurseurs d'aérosols sulfatés (dioxyde de soufre) mais aussi d'aérosols nitrés (oxydes d'azote) (Charlson et al., 1992).

Issus de l'élevage et des engrais utilisés en agriculture (aérosols nitrés)

D'autres sources, notamment l'élevage et l'utilisation d'engrais dans l'agriculture, sont des émetteurs importants de précurseurs d'aérosols secondaires nitrés. En effet, ces pratiques conduisent à des pertes d'ammoniac gazeux dans l'atmosphère qui est un précurseur d'aérosols nitrés du mode fin. Plus précisément, les oxydes d'azote présents dans l'atmosphère vont réagir avec différentes espèces oxydantes pour former de l'acide nitrique (HNO_3). Cet acide nitrique va ensuite réagir avec l'ammoniac disponible dans l'atmosphère et former des aérosols de nitrate d'ammonium.

Récapitulatif

Le Tableau 1.1 résume les estimations des émissions massiques des principales sources des aérosols présents dans l'atmosphère. La masse des aérosols d'origine naturelle, qui représentent 90% de la totalité des aérosols, est principalement constituée de sels marins et de poussières désertiques. Quant aux sources anthropiques, elles sont en grande majorité dominées par les émissions de composés organiques volatils.

1.1.2 Interactions aérosols-rayonnement

Les interactions aérosols-rayonnement vont être fonction des propriétés optiques des aérosols. Ces dernières dépendent de la composition chimique de l'aérosol, de sa taille ainsi que de la longueur d'onde considérée. Dans cette section, nous présentons les principales interactions des particules avec le rayonnement solaire ainsi que la

Origine de la source	Sources	Flux global (Tg an^{-1})
Naturelle ($\simeq$ 90%)	Sels marins	1400 - 6800
	Poussières désertiques	1000 - 4000
	Aérosols biogéniques primaires	50 - 1000
	Aérosols organiques secondaires	20 - 380
	Composés organiques volatils biogéniques	440 - 720
	Sulfure de diméthyle (DMS)	10 - 40
Anthropique ($\simeq$ 10%)	Carbone suie	3.6 - 6
	Aérosols organiques primaires	6.3 - 15.3
	Composés organiques volatils	98.2 - 157.9
	Dioxyde de soufre (SO_2)	43.3 - 77.9
	Ammoniac (NH_3)	34.5 - 49.6

Table 1.1 – Estimation des émissions annuelles (en Tg an^{-1}) des principales sources d'aérosols primaires (bleu) et d'aérosols secondaires (rouge). D'après le chapitre 7 (Clouds and aerosols) du 5ème rapport de l'IPCC (2013).

théorie de Mie qui permet de les calculer.

Théorie de Mie

Les interactions entre les aérosols et le rayonnement sont de nature électromagnétique. Elles sont régies par les équations de Maxwell (1865) qui distinguent différents cas de figure en fonction de la taille des particules. Étant donné les tailles des aérosols, le calcul des propriétés optiques des aérosols peut se faire grâce à la théorie de Mie (1908). Ici, la particule est assimilée à un dipôle électrique et la théorie de Mie considère un grand nombre de dipôles qui interfèrent entre eux. Cette théorie nécessite l'hypothèse que les particules considérées sont homogènes et de forme sphérique. Elle nécessite également de connaître le paramètre de taille ainsi que l'indice de réfraction d'un aérosol pour déterminer son extinction. Cet indice de réfraction, noté N, est un nombre complexe qui retranscrit les propriétés diélectriques de la matière. Il est notamment dépendant de la longueur d'onde λ du rayonnement et se note $N(\lambda) = n(\lambda) - ik(\lambda)$. La partie réelle $n(\lambda)$ correspond à la capacité de diffusion de la particule et la partie imaginaire $k(\lambda)$ à sa capacité d'absorption. Ces différents termes (extinction, diffusion et absorption) seront expliqués ci-dessous dans le paragraphe consacré aux propriétés optiques des aérosols.

L'hypothèse que les particules sont de forme sphérique n'est pas toujours justifiée, notamment pour les poussières désertiques (Haywood et al., 2003; Chou et al.,

2008). Cette erreur reste cependant raisonnable pour des applications de modélisation climatique (Miller and Tegen, 1998). D'autres théories plus complexes existent, comme la méthode de T-Matrix (Mishchenko et al., 1996) qui prend en compte la non sphéricité des particules, mais elles sont très coûteuses en temps de calcul.

Propriétés optiques des aérosols

Lorsqu'un rayon incident rencontre une particule d'aérosol, il peut être diffusé (effet de diffusion) ou absorbé (effet d'absorption). Pour quantifier ces deux effets, on définit le coefficient d'extinction, noté σ_{ext} (m^{-1}) comme la somme des coefficients de diffusion (σ_{diff}) et d'absorption (σ_{abs}) :

$$\sigma_{ext} = \sigma_{diff} + \sigma_{abs}$$

Premièrement, le coefficient de diffusion correspond à la déviation du rayonnement incident lors de sa rencontre avec une particule. L'énergie reçue par la particule va alors être renvoyée dans toutes les directions sous forme d'onde électromagnétique. Le paramètre d'asymétrie, noté g et compris entre -1 et 1, indique la direction vers laquelle le rayonnement sera diffusé. Il équivaut à :

$$g = \int_{-1}^{1} P(\gamma).\gamma.\,\mathrm{d}\gamma$$

Avec γ le cosinus de l'angle de diffusion (angle entre les directions des rayonnements incident et diffusé) et P la fonction de phase correspondant à la distribution angulaire de l'intensité diffusée par la particule.

Si g est supérieur à 0, le rayonnement incident est majoritairement diffusé vers l'avant, et inversement si g est inférieur à 0. Le tableau 1.2 montre que les valeurs du paramètre d'asymétrie des principaux aérosols sont supérieures à 0, ce qui signifie que la diffusion se fait majoritairement dans le prolongement de la direction d'incidence.

Les valeurs les plus fortes sont observées pour les aérosols les plus grands comme les poussières désertiques ou les sels marins, ce qui est cohérent avec la théorie de la diffusion qui stipule que plus la taille d'une particule est grande, plus la diffusion se fera dans la direction incidente du rayonnement.

Deuxièmement, le coefficient d'absorption correspond à l'absorption d'une partie de l'énergie reçue par la particule lors de sa rencontre avec le rayonnement incident. Cette énergie absorbée va alors être convertie en énergie thermique et entraîner une

Espèce	$\mathbf{g}_{550nm}$	**Références**
Sels marins	0.84	Osborne and Haywood (2005)
Poussières désertiques	0.70 - 0.77	Pandithurai et al. (2008) ; McConnell et al. (2010)
Carbone organique	0.70	Barnard et al. (2008)
Carbone suie	0.33	D'Almeida et al. (1991)
Sulfate	0.66	Kiehl et al. (2000)
Nitrate	0.70	Mallet et al. (2003)

Table 1.2 – Paramètre d'asymétrie des principaux aérosols atmosphériques. D'après la thèse de F. Malavelle (2011).

hausse de la température de la particule.

L'albédo de simple diffusion, appelé SSA (single scattering albedo) et compris entre 0 et 1, permet de savoir si un aérosol est plutôt diffusant (proche de 1) ou à l'inverse plutôt absorbant (proche de 0). L'albédo de simple diffusion correspond au rapport entre les facteurs de diffusion (Q_{diff}) et d'extinction (Q_{ext}) :

$$\text{SSA} = \frac{Q_{diff}}{Q_{ext}}$$

Physiquement, si le SSA est supérieur à 0.5, la particule est plus diffusante qu'absorbante et inversement si il est inférieur à 0.5. Cependant, les aérosols ayant un SSA inférieur à 0.85-0.90 ont un pouvoir réchauffant tandis que ceux avec un SSA supérieur à ces valeurs ont un pouvoir refroidissant (Hansen et al., 1997). L'albédo de simple diffusion est donc une grandeur importante dans l'évaluation du forçage radiatif d'une population d'aérosols dans l'atmosphère. Le tableau 1.3 présente une estimation du SSA pour les principaux aérosols atmosphériques à 550 nm.

On remarque que les carbones suies sont les particules avec l'albédo de simple diffusion le plus bas, avec une moyenne de 0.25 à 550 nm, ce qui en fait les aérosols les plus absorbants. À l'inverse, les autres aérosols, et particulièrement les sulfates, le carbone organique ou encore les sels marins, sont très diffusants. Les poussières désertiques présentent un SSA avec une forte variation, ce qui est en partie du aux propriétés propres de leurs différentes zones d'émission et en particulier à la présence ou non d'oxyde de fer (Alfaro et al., 2004; Lafon et al., 2006).

En plus du paramètre d'asymétrie et de l'albédo de simple diffusion, l'épaisseur optique des aérosols, notée AOD et sans dimension, est le troisième paramètre important pour l'étude de l'effet radiatif des aérosols. Mathématiquement, l'AOD

Espèce	**SSA**$_{550nm}$	**Références**
Sels marins	0.99	Krekov (1993) ; Hess et al. (1998)
Poussières désertiques	0.75 - 0.99	D'Almeida et al. (1991) ; Hess et al. (1998) Tanré et al. (2001) ; Dubovik et al. (2002) Haywood et al. (2003) ; Osborne et al. (2008) Otto et al. (2007) ; Mallet et al. (2008)
Carbone organique	0.98 - 0.99	Cooke et al. (1999) ; Mallet et al. (2003) Dinar et al. (2008)
Carbone suie	0.15 - 0.35	Hess et al. (1998) ; Mallet et al. (2003) Bond and Bergstrom (2006)
Sulfate	0.97 - 1	Krekov (1993) ; Kiehl et al. (2000) ; Mallet et al. (2003)
Nitrate	0.93	Krekov (1993) ; Mallet et al. (2003)

Table 1.3 – Albédo de Simple Diffusion des principaux aérosols atmosphériques. D'après la thèse de F. Malavelle (2011).

correspond à l'intégrale du coefficient d'extinction sur la verticale depuis la surface jusqu'au sommet de l'atmosphère (TOA) :

$$AOD = \int_0^{TOA} \sigma_{ext}(z)\,\mathrm{d}z$$

Cette AOD correspond à la quantité de lumière incidente qui est soit diffusée soit absorbée, elle représente donc le contenu atmosphérique en aérosols.

1.1.3 Effets des aérosols sur le climat

Étant issus de sources diverses et ayant une durée de vie assez courte (quelques jours en moyenne), les aérosols ont une grande variabilité spatio-temporelle. Ces aérosols ont des effets importants sur la visibilité et la santé, notamment lors des pics de pollution par l'inhalation des particules.

Outre ces effets, nous nous intéresserons surtout ici à l'impact des aérosols sur le climat dus notamment à leurs interactions avec le rayonnement et les nuages. Ces effets peuvent être classés en trois catégories distinctes. Tout d'abord, les aérosols vont avoir un impact sur le rayonnement solaire et tellurique (effet radiatif direct) ce qui va modifier le bilan radiatif, la dynamique atmosphérique et par conséquent la formation et le maintien des nuages (effet radiatif semi-direct). Enfin, les aérosols peuvent servir de noyau de condensation dans les nuages et avoir un impact sur la microphysique nuageuse (effet radiatif indirect). Ces trois effets radiatifs sont sché-

matisés sur la Figure 1.2 et sont décrits plus en détails ensuite. Avant cela il est utile de noter que dans le dernier rapport de l'IPCC, les auteurs ont utilisé une terminologie différente (IPCC, 2013). En effet, ils ont choisi de considérer, d'une part, le forçage radiatif dû aux interactions aérosols-nuages (ERFaci) correspondant aux effets indirects (effet albédo du nuage = RFaci et autres effets indirects = ajustements) et d'autre part le forçage radiatif dû aux interactions aérosols-rayonnement (ERFari) comprenant l'effet direct (RFari) et semi-direct (ajustements). Ces différences de terminologie entre les deux derniers rapports de l'IPCC sont résumées sur la Figure 1.3.

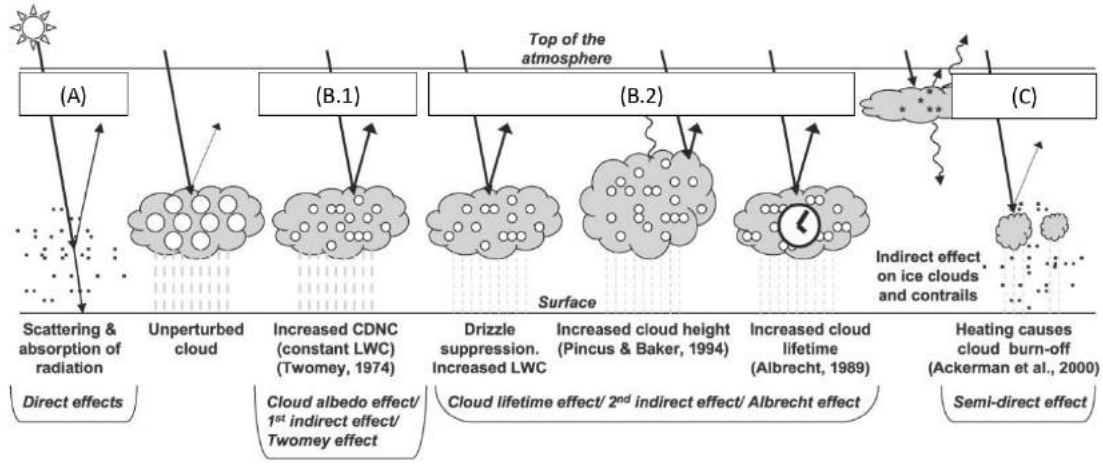

Figure 1.2 – Représentation des effets directs (A), indirects (B.1 et B.2) et semi-directs (C) des aérosols. D'après le chapitre 2 (Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing) du 4ème rapport de l'IPCC (2007). CDNC = concentration en nombre des gouttelettes nuageuses (cloud droplet number concentration) et LWC = contenu intégré en eau liquide (liquid water content).

1.1.3.1 Effet direct

L'effet radiatif direct (Figure 1.2 A) correspond à l'interaction directe (diffusion et absorption) des particules avec le rayonnement. Cet effet radiatif direct va être dépendant des propriétés optiques des aérosols, responsables du caractère diffusant ou absorbant d'une particule, mais aussi de l'albédo de la surface, de la présence de nuages ou non et de la longueur d'onde du rayonnement.

On peut définir ici la notion de forçage radiatif direct (DRF, Direct Radiative Forcing) des aérosols, généralement quantifié en surface ou au TOA, qui correspond à la différence du flux radiatif net dans l'atmosphère résultant de la présence d'aérosols. En surface, que l'aérosol soit diffusant ou absorbant, le forçage radiatif est

toujours négatif car l'aérosol empêche une partie du rayonnement d'atteindre la surface (Charlson et al., 1992; Kaufman et al., 2002). Au TOA, un aérosol diffusant exerce un forçage radiatif négatif. En revanche un aérosol partiellement absorbant peut y exercer un forçage radiatif qui est positif ou négatif selon l'albédo de la surface située en dessous. Si l'aérosol est au-dessus d'une surface sombre comme un océan ou une forêt, le forçage radiatif au TOA sera négatif. Dans le cas contraire, si l'aérosol se situe au dessus d'une surface très réfléchissante comme de la neige, un désert ou une couche de nuage alors le forçage radiatif au TOA sera positif (Haywood and Shine, 1995).

Quant au rayonnement thermique, certains aérosols grossiers comme les poussières désertiques ou le carbone suie peuvent absorber une partie du rayonnement reçu et la réémettre vers la surface, engendrant ainsi un réchauffement (Slingo et al., 2006).

1.1.3.2 Effet indirect

Les aérosols ont aussi un effet radiatif indirect sur le climat dû à leurs interactions avec la microphysique nuageuse. Deux types d'effets indirects peuvent se distinguer. Les aérosols peuvent jouer le rôle de noyau de condensation dans un nuage et ainsi augmenter la concentration en gouttelettes d'eau nuageuse. A quantité d'eau disponible constante, ce phénomène engendre une diminution de la taille de ces gouttelettes, ce qui aura pour conséquence d'augmenter l'albédo du nuage et donc de produire un refroidissement en surface. Il s'agit du premier effet indirect (Figure 1.2 B.1), montré pour la première fois par Twomey (1974). La diminution de la taille des gouttelettes du nuage va modifier l'évolution et la durée de vie du nuage mais aussi entraîner un effet refroidissant et réduire les précipitations (Albrecht, 1989). Il s'agit ici du second effet indirect des aérosols (Figure 1.2 B.2).

Ces hypothèses ont récemment été remises en cause, certains auteurs ayant montré que la réponse de la dynamique nuageuse pouvait compenser la réponse liée aux perturbations microphysiques provoquées par les aérosols. Concernant le premier effet indirect, Twohy et al. (2005) n'ont pas pu mettre en évidence un impact de la charge en aérosols sur l'albédo du nuage malgré une anti-corrélation entre le nombre de particules et la taille des gouttelettes d'eau. Concernant le deuxième effet indirect, dans le cas des nuages de type cumulus, le refroidissement associé à la baisse des précipitations déstabilise l'environnement en favorisant le développement d'une convection plus profonde. Celle-ci va entraîner plus de pluies, pouvant potentiellement compenser la réduction initiale de précipitation (Lohmann and Feichter, 2005;

Rosenfeld et al., 2008; Stevens and Feingold, 2009)

De plus, l'effet indirect des aérosols est très dépendant du régime de nuage considéré (Stevens and Feingold, 2009). Celui-ci reste donc mal estimé car les modèles de grandes échelles ont des paramétrisations encore très simplifiées et ont de grandes difficultés à représenter correctement les distributions des nuages et les processus microphysiques nuageux (Bony et al., 2006).

1.1.3.3 Effet semi-direct

Pour finir, l'effet semi-direct des aérosols (Figure 1.2 C) correspond à l'impact des variations de température et d'humidité, suite à l'effet direct des aérosols sur les nuages.

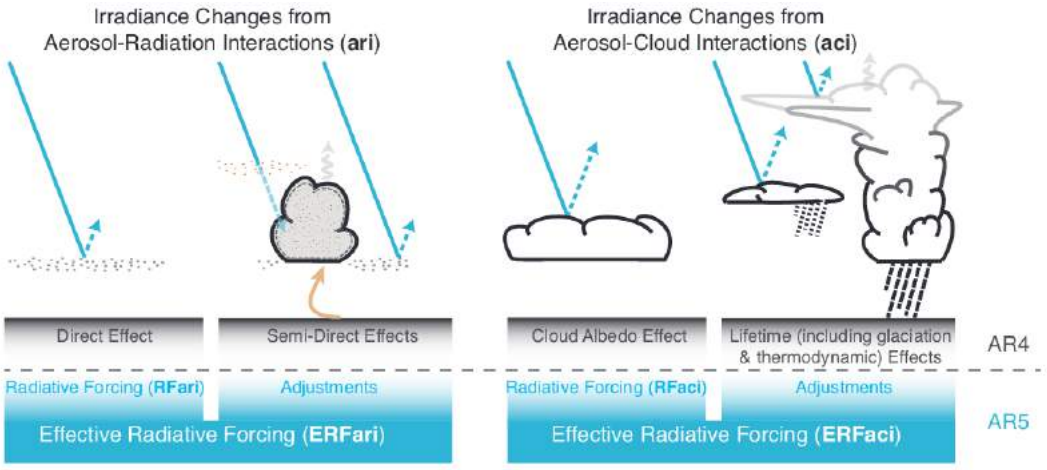

Figure 1.3 – Lien entre la nouvelle terminologie utilisée dans le 5ème rapport de l'IPCC (AR5) concernant les interactions aérosols-rayonnement (ERFari) et aérosols-nuages (ERFaci) et celle utilisée dans le 4ème rapport (AR4). Les flèches bleues représentent le rayonnement solaire, les flèches grises le rayonnement terrestre et la flèche marron symbolise l'importance des couplages entre la surface et la couche nuageuse pour des ajustements rapides. (IPCC, 2013).

Ces changements peuvent entraîner la formation ou l'évaporation de nuages et ont donc aussi un impact sur les précipitations. Cet effet semi-direct, introduit pour la première fois par Hansen et al. (1997), est d'autant plus important lorsqu'il s'agit de particules fortement absorbantes comme le carbone suie (Ackerman et al., 2000). Koch and Del Genio (2010) ont proposé une revue complète de l'effet radiatif semi-direct en distinguant l'évolution (augmentation ou réduction) du couvert nuageux en fonction du type de nuage (stratocumulus ou cumulus) et de l'altitude relative des aérosols par rapport aux nuages (Figure 1.4) :

- **Aérosols en dessous du nuage :** un échauffement sous le nuage va renforcer les mouvements convectifs et la condensation d'eau, favorisant ainsi le développement de nuages stratiformes (Johnson et al., 2004) et cumuliformes (Feingold et al., 2005).
- **Aérosols à l'intérieur du nuage :** un échauffement dans le nuage va favoriser la baisse de l'humidité relative et du contenu en eau liquide, réduisant ainsi le couvert nuageux que ce soit dans le cas de cumulus (Ackerman et al., 2000) ou de stratocumulus (Hill and Dobbie, 2008).
- **Aérosols au dessus du nuage :** un échauffement au dessus du nuage va entraîner une augmentation du gradient de température au-dessus de l'inversion et par conséquent une stabilisation de la couche limite. Dans le cas d'un stratocumulus, cette stabilisation se traduit par une diminution de l'entraînement d'air sec, ce qui va avoir pour conséquence d'humidifier la couche limite et de favoriser le développement du couvert nuageux (Johnson et al., 2004; Brioude et al., 2009). Dans le cas d'un cumulus, l'effet engendré va dépendre de l'épaisseur du nuage. Si le nuage est peu épais, la stabilisation de la couche limite et la réduction de l'activité convective vont avoir tendance à inhiber le développement du couvert nuageux (Koren et al., 2008). A l'inverse si l'épaisseur du nuage est importante, un échauffement au sommet du nuage va favoriser la convection profonde créant alors un flux convergent en basse couche qui va alimenter la base du nuage en air humide et ainsi favoriser son développement (Koren et al., 2008).

1.1.3.4 Autres effets

Les aérosols peuvent aussi avoir d'autres effets qui sont dus à leur dépôt sur les différentes surfaces ou sur la végétation. Par exemple, si des aérosols et en particulier des aérosols absorbants se déposent sur de la neige, cela va diminuer son albédo, augmenter sa fonte et donc modifier le climat (Hadley and Kirchstetter, 2012; Ménégoz et al., 2014).

Les aérosols, étant des sources de nutriments, ont aussi un effet sur la biogéochimie marine lorsque ceux-ci se déposent à la surface des océans. Cela est particulièrement le cas avec les poussières désertiques qui sont riches en fer (Guieu et al., 1997; Guerzoni et al., 1999).

Pour finir, le dépôt des aérosols peut aussi avoir un impact sur l'activité photosynthétique des végétaux. Il peut s'agir d'un impact positif par l'apport de nitrate et de phosphate mais aussi d'un impact négatif dans le cas des pluies acides (Ty-

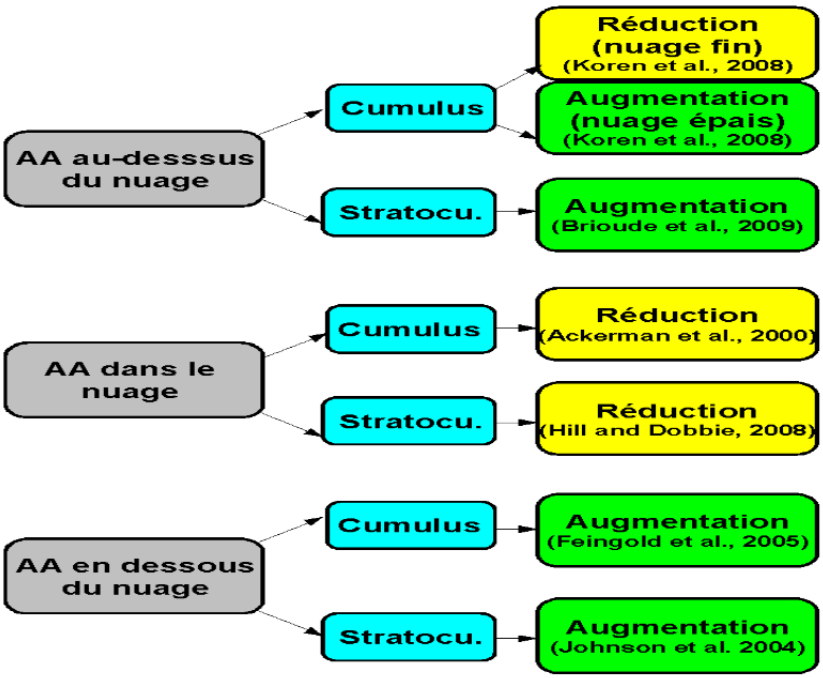

Figure 1.4 – Forçage radiatif semi-direct en fonction du type de nuage (cumulus ou stratocumulus) et de sa position par rapport à la couche d'aérosols (AA : Absorption du rayonnement solaire par la couche d'Aérosols). D'après Péré (2010)

son et al., 2002). De plus, en bloquant une partie du rayonnement solaire ou en se déposant sur le feuillage de la végétation, les aérosols réduisent la photosynthèse des plantes. En revanche, la diffusion du rayonnement solaire par les aérosols a un effet positif sur la photosynthèse des plantes car celle-ci permet au rayonnement d'atteindre un plus grand nombre de plantes ainsi qu'une plus grande surface de feuille. Une concentration modérée d'aérosols va donc avoir un effet bénéfique pour la végétation, à l'inverse, une concentration trop élevée des aérosols entraînera une baisse de la photosynthèse et donc de la productivité des plantes (Mercado et al., 2009; Boucher, 2012)

1.1.4 Modélisation des aérosols et de leurs interactions avec le climat

À l'échelle globale, les effets des aérosols sur le climat sont vraiment étudiés et quantifiés à partir de la fin des années 1990 lorsque les modèles climatiques deviennent capables de représenter ces processus. Ces nouvelles informations apparaissent donc avec le troisième rapport de l'IPCC en 2001. Au début de la modélisation des aérosols par les modèles climatiques, la seule façon de les représenter était à

travers des climatologies globales d'épaisseur optique, comme celles construites par Tanré et al. (1984) et Tegen et al. (1997) qui permettent une représentation simple du forçage radiatif en aérosols. Ensuite une deuxième approche est apparue, il s'agit des schémas interactifs d'aérosols. Il s'agit d'une approche "en-ligne" dans laquelle les aérosols sont des variables pronostiques du modèle climatique. Dans la plupart des cas, les modèles globaux incluant un schéma pronostique d'aérosols intègrent les principaux types d'aérosols comme les poussières désertiques, les sels marins, les aérosols carbonés, les sulfates et pour certains les nitrates et même d'autres aérosols secondaires. Par exemple, Hauglustaine et al. (2014) ont récemment introduit les aérosols de nitrate et d'ammonium dans le modèle global LMDz-INCA (Laboratoire de Météorologie Dynamique-INteraction with Chemistry and Aerosols). Ils ont montré que ces aérosols représentaient 18% du forçage radiatif des sulfates en climat présent, ce qui fait des nitrates une espèce importante à prendre en compte dans les modèles de climat. Néanmoins il est important de noter que le forçage des aérosols présente encore de grandes incertitudes (IPCC, 2013).

Afin de réduire ces incertitudes et de comparer la façon dont chaque modèle prend en compte les différents aérosols, plusieurs exercices d'intercomparaison de modèles incluant les aérosols ont été mis en oeuvre. La première phase de l'exercice AeroCom (Aerosol Comparisons between Observations and Models), lancée en 2003, a comparé les propriétés simulées par une vingtaine de modèles globaux à deux périodes (1750 et 2000) et les a évaluées grâce aux différentes données existantes. Ces différentes propriétés étudiées sont la concentration, les propriétés optiques ainsi que les forçages radiatifs des aérosols. Cette expérience a montré que, malgré un inventaire d'émissions imposé à tous les modèles participants, des différences importantes ont lieu à l'échelle régionale en ce qui concerne les charges et les épaisseurs optiques simulées, expliquant les différences observées au niveau du forçage radiatif direct entre les différents modèles (Schulz et al., 2006; Myhre et al., 2013). Ces différences sont donc dues à la structure interne de chaque modèle, c'est à dire à leur façon de prendre en compte les différents aérosols (Kinne et al., 2006; Textor et al., 2006). Concernant le premier effet indirect, c'est à dire l'impact des aérosols hydrophiles sur la concentration en gouttelettes nuageuses, il est cohérent avec les données satellites pour la plupart des modèles. En revanche, le deuxième effet indirect concernant la relation entre aérosols et contenu en eau liquide est souvent surestimée (Quaas et al., 2009). Plus récemment, Bian et al. (2017) ont comparé 9 modèles globaux en se focalisant sur les aérosols de nitrate et d'ammonium. Ces différents modèles ont montré des résultats similaires concernant les principales régions à forte concentration de ces types d'aérosols (Chine, sud de l'Asie, Europe et Amé-

rique du nord). Néanmoins, les quantités de nitrate et d'ammonium simulées sont très différentes et peuvent varier du simple au triple selon le modèle considéré. Ces différences sont dues ici aussi aux paramétrisations différentes entre chaque modèle et notamment à leur façon de prendre en compte ou non la production de nitrate à partir des poussières désertiques et des sels marins. Une autre intercomparaison de modèle globaux, ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project), qui est centré sur la troposphère, a participé à la réalisation du 5ème rapport de l'IPCC (Lamarque et al., 2013). Cet exercice consiste à étudier l'évolution des forçages des aérosols d'une dizaine de modèles globaux ayant des aérosols interactifs sur une période allant de 1850 à 2100. Dans cet exercice, la plupart des modèles sont capables de reproduire l'épaisseur optique observée en climat présent malgré quelques sous-estimations dans l'est de l'Asie (Shindell et al., 2013). Pour finir, l'exercice AerChemMIP (Aerosol Chemistry Model Intercomparison Project) lancé récemment, a pour objectif de quantifier l'impact des aérosols et de la chimie sur le climat et la qualité de l'air en climat passé et futur (Collins et al., 2017). Malgré tous ces exercices d'intercomparaison de modèles, les effets radiatifs des aérosols (direct, semi-direct et indirect) restent toujours une importante source d'incertitudes dans les simulations climatiques. Pour finir, même si le premier effet indirect est maintenant souvent pris en compte par les modèles de climat (Lohmann and Feichter, 2005), ce n'est pas toujours le cas pour les autres effets indirects. De plus, les incertitudes liées aux interactions aérosols-nuages restent fortes dû au manque d'observations (McComiskey and Feingold, 2012; Wall et al., 2014).

Comme nous avons pu voir précédemment, les aérosols présentent une grande variabilité spatio-temporelle ce qui fait que la modélisation régionale, utilisant une résolution plus fine de l'ordre de 10 à 50 km (contre environ 150 km pour les modèles globaux), est bien adaptée pour ce type d'étude. Tout comme les modèles globaux, les modèles régionaux peuvent inclure les aérosols sous forme de climatologies ou à travers un schéma pronostique comme c'est le cas pour le modèle qui sera utilisé tout au long de ce travail. Hohenegger and Vidale (2005) ont démontré, sur l'Europe, que les modèles régionaux de climat étaient dépendants des aérosols et particulièrement de la climatologie utilisée pour représenter le forçage radiatif de ces aérosols. Néanmoins, la plupart des modèles régionaux utilisent toujours une représentation simplifiée des aérosols notamment à travers des climatologies constantes. La plupart des études réalisées avec des modèles régionaux sont faites sur des périodes de temps assez courtes. Par exemple, le forçage radiatif direct des aérosols a été abordé par Zanis (2009) sur le sud de l'Europe. Concernant l'effet indirect des aérosols sur l'Eu-

rope, il a été étudié par Vogel et al. (2009) et Bangert et al. (2011). En parallèle, quelques études multi-annuelles ont aussi été réalisées sur des régions où les aérosols ont un impact fort sur le climat comme par exemple en Asie (Giorgi et al., 2002), en Afrique (Tummon et al., 2010; Solmon et al., 2012) ou encore en Europe (Zubler et al., 2011; Zanis et al., 2012; Nabat et al., 2014). Ajouté à cela, il est important de noter qu'il existe aussi des modèles régionaux de prévision de la qualité de l'air comme le modèle CHIMERE (Bessagnet et al., 2004; Menut et al., 2014) ou encore le modèle MOCAGE (Peuch et al., 1999) qui incluent des processus chimiques complexes, permettant de représenter au mieux la chimie, la granulométrie et la formation d'aérosols secondaires organiques et inorganiques. Cependant ces modèles de prévision de la qualité de l'air ne sont pas couplés avec le rayonnement. En revanche, il est possible de le faire en "off-line" sans rétroaction des aérosols sur le climat (Pere et al., 2011).

1.2 La région Euro-Méditerranéenne

1.2.1 Caractéristiques de la région Euro-Méditerranéenne

Le climat de la région Euro-Méditerranéenne est complexe, notamment car il est influencé par de nombreux processus. À grande échelle, il est influencé par la NAO (North Atlantic Oscillation) qui, en phase positive, entraîne les dépressions sur le nord de l'Europe et par conséquent un climat froid et sec sur les côtes méditerranéennes tandis que la phase négative de la NAO se traduit par un climat plus chaud et plus humide autour de la Méditerranée (Ulbrich et al., 1999; Xoplaki et al., 2003). Le climat sur cette région est aussi influencé par les dépressions venues de l'océan Atlantique qui sont à l'origine d'une grande part des précipitations de l'automne au printemps (Alpert et al., 1990; Maheras et al., 2001). À plus fine échelle, le relief autour de la Méditerranée joue un rôle important sur le climat du bassin méditerranéen car il est générateur de forts vents régionaux. On retrouve le Mistral et la Tramontane en France, la Bora en Italie, les Étésiens en mer Égée et le Sirocco dans le nord de l'Afrique. En plus de ces différents forçages, la région Euro-Méditerranéenne est située au carrefour de nombreuses sources d'aérosols, naturels et anthropiques, ce qui confère au climat de cette région une forte variabilité temporelle et spatiale.

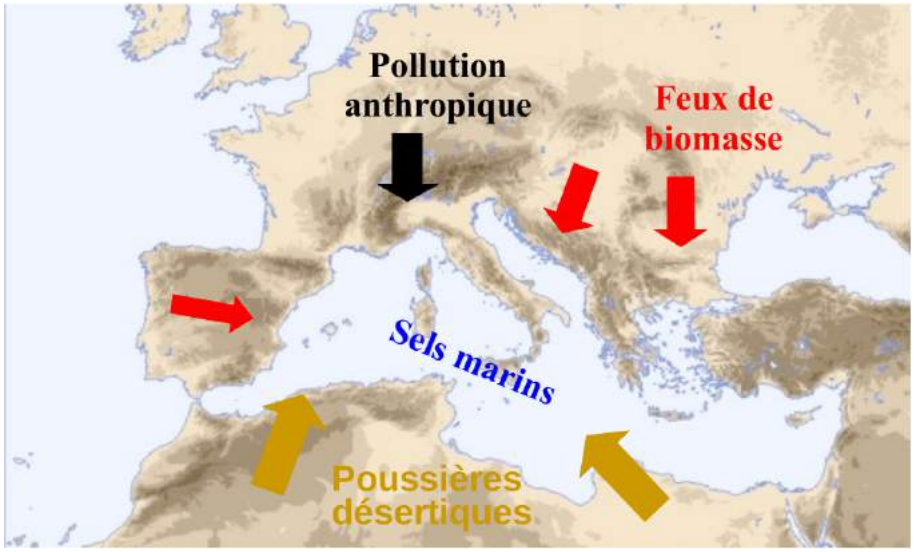

Figure 1.5 – Localisation des principales sources d'aérosols de la région Euro-Méditerranéenne.

La région méditerranéenne est en effet caractérisée par une forte diversité de types de surface (désert, mer, ville, forêt) conduisant à une forte hétérogénéité en terme de sources d'aérosols comme le montre la Figure 1.5. Au sud du bassin, le désert du Sahara est la source d'aérosols la plus importante en émettant des poussières désertiques qui sont ensuite transportées sur la région Euro-Méditerranéenne (Roda et al., 1993; Moulin et al., 1998; Israelevich et al., 2012; Gkikas et al., 2013). Une deuxième source importante d'aérosols est la Méditerranée elle même car elle émet de nombreux sels marins (Despiau et al., 1996) suite à l'action du vent, et notamment des vents régionaux forts durant l'hiver. La mer Méditerranée va aussi contribuer à émettre des précurseurs d'aérosols sulfatés comme le DMS, qui provient du phytoplancton. Au nord du bassin, les côtes espagnoles, françaises et italiennes sont fortement anthropisées, avec par exemple la vallée du Pô (Mallet et al., 2005; Pérez et al., 2008; Pey et al., 2010). Ces régions vont être émettrices d'aérosols primaires et secondaires liés à la pollution comme les aérosols provenant de la combustion de matière fossile, certains précurseurs d'aérosols organiques secondaires ou encore des précurseurs d'aérosols sulfatés comme le dioxyde de souffre. La région du Benelux (Belgique, Pays-Bas et Luxembourg) ainsi que l'Angleterre ou encore la vallée du Pô sont des zones très émettrices d'ammoniac, qui émane principalement de l'épandage intensif au printemps de fertilisants agricoles azotés. Outre les aérosols liés à la pollution, certains pays comme l'Espagne, le Portugal ou encore la Grèce sont à l'origine de nombreux aérosols carbonés issus de feux de biomasse car ces pays sont régulièrement sujets à de violents incendies, notamment pendant l'été. Pour finir, certains volcans comme l'Etna peuvent affecter la région méditerra-

néenne par un rejet continu de précurseurs d'aérosols sulfatés (Oppenheimer et al., 2003). Plus ponctuellement, des volcans explosifs comme l'Eyjafjallajoküll en Islande peuvent aussi impacter cette région en éjectant des gaz soufrés directement dans la stratosphère (Gislason et al., 2011).

La région méditerranéenne est donc soumise à de fortes charges en aérosols, d'origines très variées, et présentant une forte variabilité spatio-temporelle (Prospero, 1979; Pace et al., 2006; Kallos et al., 2007; Gkikas et al., 2012). Ces différents éléments font de cette région une zone particulièrement intéressante pour étudier les interactions aérosols-climat.

1.2.2 Le chantier MISTRALS

Afin d'améliorer les connaissances du fonctionnement environnemental du bassin méditerranéen et de prédire son évolution future dans le cadre du changement climatique, le chantier MISTRALS (Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales, http ://www.mistrals-home.org) a été mis en place. Il s'agit d'un programme international de recherches interdisciplinaires lancé en 2010 pour une durée de 10 ans. Ce chantier, soutenu par l'Institut National des Sciences de l'Univers (INSU) et l'Alliance nationale de recherche pour l'Environnement (AllEnvi), a pour objectif de donner une vision complète du système méditerranéen aux décideurs pour les aider à répondre aux enjeux sociétaux, environnementaux et économiques de la région méditerranéenne. Les différents programmes de MISTRALS, au nombre de huit, sont les suivants :

- HyMeX (Hydrological cycle in the Mediterranean eXperiment, http ://www.hymex.org) qui a pour but d'améliorer la compréhension du cycle de l'eau en Méditerranée et notamment l'évolution de la variabilité climatique pour la prévisibilité des évènements intenses (fortes pluies, sécheresses) associés au cycle de l'eau.
- ChArMEx (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment, http ://charmex.lsce.ipsl.fr) qui vise à dresser le bilan actuel de la composition atmosphérique (constituants chimiques et aérosols) de la région méditerranéenne mais aussi à anticiper son évolution future ainsi que ses impacts sur le climat régional, la qualité de l'air et les différents écosystèmes.
- MERMEx (Marine Ecosystems Response in the Mediterranean Experiment, http ://mermex.pytheas.univ-amu.fr) qui étudie les évolutions biogéochimiques de la mer Méditerranée ainsi que leurs impacts sur les écosystèmes marins.

- SocMed (Sociétés en Méditerranée) qui a pour but de soutenir l'effort de compréhension du fonctionnement des sociétés méditerranéennes par toutes les sciences humaines et sociales.
- TerMEx (Terra Mediterranean earth science Experiment) qui cherche à mieux comprendre les processus dynamiques de la lithosphère agissant à différentes échelles de temps.
- SICMED (Surfaces et Interfaces Continentales Méditerranéennes, http ://www.sicmed.net/) qui étudie des éco-anthropo-systèmes ruraux et périurbains sous contrainte climatique, sociale et économique afin d'optimiser leurs modes de gestion.
- PaleoMEx (Paleo Mediterranean Experiment, https ://paleomex.lsce.ipsl.fr/) qui se concentre sur le changement climatique de la région au cours de l'holocène, soit depuis environ 10 000 ans.
- BioDivMex (BioDiversity of the Mediterranean experiment, http ://biodivmex.imbe.fr/spip.php ?article31) qui s'intéresse au suivi de la biodiversité spécifique à la région méditerranéenne.

Le travail réalisé durant cette thèse s'inscrit à la fois dans les programmes de recherche HyMeX et ChArMEx. Ce dernier a permis d'avoir à disposition différentes catégories d'observations issues de campagnes de mesures récentes en Méditerranée. Il y a à la fois de longues séries d'observations (10 ans) faites à partir de satellites et de stations au sol, des séries d'observations réalisées sur des périodes de temps plus courtes (2-3 ans) qui permettent d'avoir des données supplémentaires afin de documenter les phénomènes journaliers à saisonniers et aussi des périodes d'observations rapides réalisées par avions et par ballons lors de la saison estivale qui ont par exemple permis d'étudier les interactions aérosols-rayonnement-climat (Mallet et al., 2016) et la formation d'aérosols secondaires (Chrit et al., 2017).

Quant au programme de recherche HyMeX, il comporte une partie modélisation climatique régionale qui correspond au projet CORDEX (COordinated Regional climate Downscaling EXperiment). Le programme Med-CORDEX (Euro-CORDEX) représente la contribution de la communauté méditerranéenne (européenne) au projet CORDEX. Au sein de ce programme Med-CORDEX, le FPS (Flagship Pilot Studies) aérosol-climat a été mis en place en 2016 (https ://www.hymex.org/cordexfps-aerosol/wiki/doku.php ?id=start) et a pour principaux objectifs de caractériser la variabilité passée et l'évolution future des aérosols sur la région Méditerranéenne mais aussi de comprendre le rôle des aérosols dans la variabilité climatique passée et d'étudier la sensibilité du climat futur de cette région à ces aérosols. Les différents

modèles climatiques régionaux (RCMs) utilisés dans le cadre du projet Euro/Med-CORDEX ainsi que ceux utilisés au sein de ce FPS seront présentés dans la section suivante.

1.2.3 Modélisation régionale du climat et des interactions aérosols-climat sur la région Euro-Méditerranéenne

Précédemment nous avons vu que la région méditerranéenne se caractérisait par un climat complexe associé à des charges d'aérosols élevées présentant une grande variabilité spatio-temporelle. Cela nécessite par conséquent une résolution suffisamment fine pour y étudier les interactions aérosols-rayonnement-climat. Les modèles climatiques régionaux sont donc couramment utilisés compte tenu de leur raisonnable coût en temps de calcul (Dickinson et al., 1989; Giorgi and Mearns, 1999). Ces modèles climatiques à haute résolution et à aire limitée sont initialisés et forcés aux bords par des réanalyses ou des modèles à plus basse résolution comme des modèles globaux. Tout d'abord, à partir des années 2000, quelques études de modélisation du climat utilisant ces modèles régionaux ont eu lieu sur le bassin méditerranéen avec les projets MERCURE (Hagemann et al., 2004), PRUDENCE (Christensen et al., 2002) ou encore ENSEMBLES (van der Linden and Mitchell, 2009) qui ont permis de faire les premières comparaisons de modèles régionaux sur cette région. Suite à cela, il y a eu le projet CORDEX, présenté précédemment, qui a permis d'étudier la variabilité du climat méditerranéen (Gibelin and Déqué, 2003; Giorgi and Lionello, 2008; Herrmann et al., 2011).

Jusqu'à récemment, la prise en compte des aérosols dans les modèles régionaux restait souvent simplifiée voir même inexistante. Le tableau 1.4 indique le niveau de prise en compte des aérosols dans les différents modèles participant au programme Euro/Med-CORDEX. On constate qu'un grand nombre d'entre eux utilisent encore une climatologie mensuelle constante dans le temps qui est donc assez peu réaliste. De plus, le domaine qui a été choisi dans le cadre de ce projet n'englobe pas les sources d'aérosols désertiques. Afin d'avoir une vision complète des études actuelles concernant les aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne, les modèles climatiques régionaux participant au FPS aérosol du projet CORDEX sont présentés dans le tableau 1.5 avec d'un coté les modèles utilisant un forçage d'aérosols externe et de l'autre ceux utilisant un schéma d'aérosols interactif.

Ces différents projets vont donc permettre de mieux comprendre la variabilité

Centre	**Modèle**	**Prise en compte des aérosols**	**Variabilité temporelle**
AUTH-Met	WRF381	Climatologie	Cycle saisonnier
BCCR	WRF331C	Aucune	/
CHMI	ALADIN51 ALADIN52	Climatologie	Cycle saisonnier
CLMcom	COSMO-CLM4.8-17 COSMO-CLM5-0-6 COSMO-crCLIM-v1.1	Climatologie	Constante Cycle saisonnier
CNRM	ARPEGE51 ALADIN52 ALADIN53 ALADIN63	Climatologie	Évolutive (sauf DD et SS) Évolutive
CRP-GL	WRF331A	Climatologie	Constante
CUNI	RegCM4-2	Aucune	/
DHMZ	RegCM4-2	Aucune	/
DMI	HIRHAM5	Climatologie	Constante
GERICS	REMO2009 REMO2015	Climatologie	Constante
HMS	ALADIN52	Climatologie	Évolutive (sauf DD et SS)
ICTP	RegCM4-4	Aucune	/
IDL	WRF3.5	Climatologie	Cycle saisonnier
IPSL	WRF331F WRF361O	Climatologie	Constante
KNMI	RACMO22E	Climatologie	Évolutive
MPI-CSC	REMO2009	Climatologie	Constante
RMIB-UGent	ALARO-0	Climatologie	Constante
SMHI	RCA4	Simplifiée (1 classe)	Constante
UCAN	WRF341I	Climatologie	Constante
UCLM	PROMES	Climatologie	Cycle saisonnier
UHOH	WRF361H	Climatologie	Cycle saisonnier
UKMO	HadGEM3-RA	Climatologie	Cycle saisonnier
UM	WRF361	Schéma interactif	Évolutive

Table 1.4 – Méthode de prise en compte des aérosols et leur variabilité temporelle dans les différents modèles régionaux participant au projet Euro/Med-CORDEX. Le nom complet des différents centres est indiqué dans le glossaire.

climatique passée et la sensibilité du climat futur de la région Euro-Méditerranéenne aux différents aérosols. Des travaux récents ont déjà montré que les aérosols avaient un impact fort sur le climat présent de la région méditerranéenne en terme de rayonnement, température ou encore de précipitations. En effet, Nabat et al. (2015a) ont

montré, grâce au système de modélisation régionale couplée CNRM-RCSM qui intégrait une climatologie réaliste d'aérosols, un important forçage radiatif direct dans les courtes longueurs d'onde des aérosols sur la région méditerranéenne. Cette étude, réalisée sur la période 2003-2009, a montré un forçage radiatif direct des aérosols, en surface, de l'ordre de -20 W m^{-2} sur la mer Méditerranée et l'Afrique du Nord et de l'ordre de -15 W m^{-2} sur l'Europe. Ces valeurs sont cohérentes avec celles montrées dans d'autres études comme celle de Papadimas et al. (2012) qui montre un forçage radiatif direct moyen des aérosols sur le bassin méditerranéen en surface de l'ordre de -16.5 W m^{-2}. Cet effet refroidissant montré par Nabat et al. (2015a) est partiellement compensé par l'effet semi-direct des aérosols qui est de +4.7 W m^{-2} sur la mer Méditerranée et de +3 W m^{-2} sur l'Europe, qui est la conséquence d'un changement de couverture nuageuse et de circulation atmosphérique. En revanche, sur l'Afrique, l'effet semi-direct des aérosols est négatif (-1.3 W m^{-2}). Le forçage radiatif net (effet direct + effet semi-direct) en surface est donc négatif sur l'Europe, la mer Méditerranée et l'Afrique du Nord (-16.2, -11.7 et -21.0 W m^{-2} respectivement) et entraîne par conséquent un refroidissement d'environ 0.5°C sur l'ensemble du bassin méditerranéen. Concernant le sommet de l'atmosphère, le forçage radiatif des aérosols est plus contrasté, avec des valeurs pouvant être positives sur l'Afrique du Nord (notamment en été) et des valeurs négatives sur la mer Méditerranée et l'Europe, dû notamment aux différences d'albédo de surface. Une autre étude (Nabat et al., 2014) a aussi montré le rôle important des aérosols dans les tendances climatiques observées lors des dernières décennies. Les auteurs de cette étude, en utilisant le modèle régional couplé océan-atmosphère CNRM-RCSM, ont montré que la diminution des aérosols de sulfate depuis les années 1980 en Europe et en Méditerranée avait largement contribué à l'augmentation du rayonnement solaire incident en surface (81 ± 16%) ainsi qu'au réchauffement (23 ± 5%) de la région méditerranéenne. Cette augmentation du rayonnement solaire depuis les années 1980 a aussi été mise en évidence par plusieurs études utilisant des modèles climatiques globaux (Gilgen et al., 1998; Wild et al., 2005; Norris and Wild, 2007; Wild, 2009).

Par ailleurs, Nabat et al. (2015b) ont aussi mis en avant l'importance du couplage océan-atmosphère dans l'étude de l'effet des aérosols sur le climat en Méditerranée notamment à cause de leur impact sur le cycle hydrologique et la circulation thermohaline. Dans leur étude, Nabat et al. (2015a) ont montré que le couplage océan-atmosphère était responsable d'une baisse d'environ 10% de l'humidité spécifique dans la basse troposphère, de la couverture nuageuse mais aussi des précipitations (équivalent à une baisse de 0.2 mm $jour^{-1}$) sur toute la région méditerranéenne. De plus, la diminution de la température de la mer crée une augmentation de la densité

Centre	Modèle	Prise en compte des aérosols	
		Forçage externe	**Schéma interactif**
CMCC	CCLM	X	
CNRM	CNRM-RCSM	X	X
DLR	COSMO/MESSy		X
ENEA	RegCM		X
ETHZ	COSMO-CLM	X	
GERICS	REMO2015	X	
GUF	CCLM	X	
HMS	ALADIN52	X	
IPSL	WRF CHIMERE (CTM)	X	 X
KNMI	RACMO22E	X	
LA	RegCM		X
MIO	MesoNH		X
NOA	WRF-Chem		X
UCLM	PROMES	X	
UKMO	HadGEM3-RA	X	
University of Mainz	COSMO/GMXe		X
University of Murcia	WRF-Chem		X
UT	WRF-AUTH RegCM	X	 X

Table 1.5 – Méthode de prise en compte des aérosols dans les différents modèles régionaux participant au FPS aérosol. Le nom complet des différents centres est indiqué dans le glossaire.

des eaux de surface méditerranéennes qui favorise la convection océanique dans les sous-bassins où se forment les masses d'eau profondes (golfe du Lion, mer Adriatique et mer Égée), et renforce la circulation thermohaline en Méditerranée.

Ces différents travaux montrent bien la nécessité d'utiliser des modèles couplés atmosphère-océan mais surtout l'importance de bien représenter les aérosols dans les modèles climatiques, notamment les modèles régionaux, qui sont les plus aptes à étudier les interactions aérosols-climat sur la région méditerranéenne. Néanmoins, même si les principaux aérosols sont de plus en plus représentés dans les modèles régionaux, certains aérosols comme les nitrates ou l'ammonium ne sont toujours pas pris en compte par ces modèles alors que ces particules peuvent représenter environ 20% du forçage radiatif direct exercé par les particules de sulfates (Hauglustaine et al., 2014).

1.3 Projection climatique

1.3.1 Les scénarios climatiques

L'IPCC, qui a pour but d'évaluer les fondements scientifiques du changement climatique, a aussi pour mission d'estimer les risques et les conséquences du changement climatique, d'envisager des stratégies d'adaptation aux impacts et d'atténuation des émissions de gaz à effet de serre. Lors du quatrième rapport d'évaluation de l'IPCC, publié en 2007, la stratégie suivie était séquentielle. En effet, le point de départ était de définir un ensemble de scénarios d'évolution possible de nos sociétés et modes de vie, appelés SRES (Special Report on Emissions Scenarios), regroupés en quatre grandes familles (A1, B1, A2, B2) et se traduisant ensuite en termes d'émission de gaz à effet de serre. Ces évolutions d'émissions de gaz à effet de serre ont ensuite été utilisées comme données d'entrée des modèles de projections climatiques qui ont par la suite alimenter les modèles d'impact. Depuis les années 2000, certains paramètres tels que l'économie, les technologies, les politiques publiques et la connaissance du système climatique ont évolué. De nouveaux scénarios ont donc été définis pour mieux prendre en compte ce nouveau contexte et permettre aux économistes et aux climatologues de ne plus travailler de manière séquentielle mais parallèle. Pour travailler de façon parallèle, les scientifiques ont défini, durant une phase préparatoire, des profils représentatifs d'évolution de concentration de gaz à effet de serre, d'ozone et de précurseurs des aérosols appelés RCPs (Representative concentration pathways). À partir de ces profils de référence les climatologues produisent des projections climatiques utilisant les RCPs en entrée, et en parallèle, les sociologues et les économistes élaborent des scénarios débouchant sur des émissions de gaz à effet de serre cohérents avec les RCPs.

"RCP" : Representative Concentration Pathways

Les RCPs, ou trajectoires représentatives de concentration en français, sont des scénarios de l'évolution des concentration de gaz à effet de serre (dioxyde de carbone, méthane, protoxyde d'azote, ...), d'aérosol et de gaz chimiquement actifs dans l'atmosphère, sur la période 2006-2100. Contrairement aux SRES, les RCPs ont été extrapolés jusqu'en 2300. Le mot "trajectoire" rappelle que ce n'est pas uniquement les niveaux de forçage radiatif sur le long terme qui sont importants, mais aussi la trajectoire empruntée pour y arriver.

Premièrement, dans le cadre de la phase 5 du projet d'intercomparaison de modèles couplés (CMIP5), 4 RCPs différents ont été définis sur la base de plusieurs

centaines de scénarios publiés (Moss et al., 2010; Van Vuuren et al., 2011). Ces 4 RCPs sont étiquetés en fonction du forçage radiatif atteint en 2100 : 2.6 W m^{-2} pour le RCP 2.6, 4.5 W m^{-2} pour le RCP 4.5, 6 W m^{-2} pour le RCP 6.0 et 8.5 W m^{-2} pour le RCP 8.5.

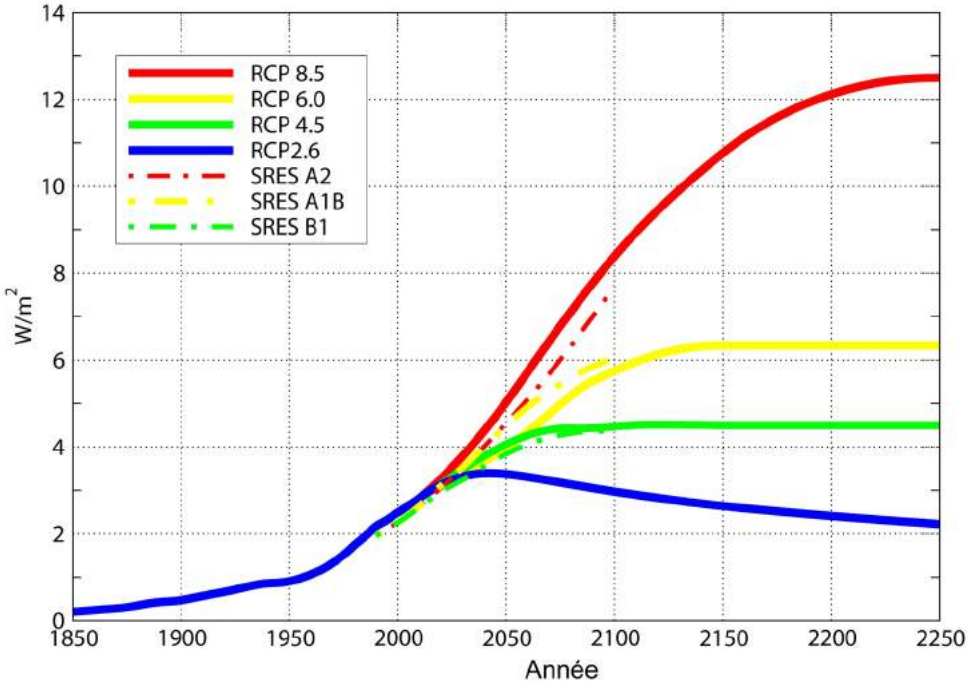

Figure 1.6 – Comparaison de l'évolution du forçage radiatif des scénarios RCP (traits pleins) et des anciens scénarios SRES (tirets). D'après le site du DRIAS (http ://www.drias-climat.fr/accompagnement/sections/175)

Une comparaison de ces 4 RCPs avec les anciens scénarios SRES est présenté sur la Figure 1.6. Le RCP 8.5 est donc un peu plus fort que le scénario SRES A2. Le RCP 6.0 est quant à lui proche du scénario SRES A1B tandis que le RCP 4.5 est proche du SRES B1. Le seul RCP sans équivalent avec les anciens scénarios de l'IPCC est le RCP 2.6 qui intègre les effets de politiques de réduction des émissions susceptibles de limiter le réchauffement planétaire à 2°C. Plus récemment, dans le cadre de la phase 6 du projet d'intercomparaison de modèles couplés (CMIP6), trois nouveaux RCPs ont été développées. Il s'agit des RCPs 1.9, 3.4 et 7.0 atteignant respectivement 1.9 W m^{-2}, 3.4 W m^{-2} et 7.0 W m^{-2} en 2100. Ces différents RCPs ont été choisis afin de couvrir au maximum les trajectoires futures de forçage radiatif envisagées dans la littérature. Concernant le scénario le plus optimiste (RCP 1.9, Rogelj et al. (2018)), il correspond à l'interprétation la plus optimiste de l'article 2 de l'accord de Paris.

La nouvelle méthode de travail, en parallèle entre les climatologues et les sociologues-économistes, repose sur l'idée que ces sept trajectoires de forçage radiatif ne sont pas

issues d'un seul scénario d'émissions de GES ou d'un seul scénario socio-économique mais peuvent résulter, au contraire, de différentes combinaisons d'évolutions sociétales, économiques et politiques futures. Ce sont ces différentes combinaisons d'évolutions que les SSPs (Shared Socio-economic Pathways) cherchent à représenter.

"SSP" : Shared Socio-economic Pathways

Les SSPs (trajectoires Socio-économiques communes en français) représentent un ensemble de scénarios socio-économiques complémentaires des RCPs, explorant les différentes possibilités technologiques, économiques, démographique et politiques possibles pouvant conduire à une trajectoire de concentration en gaz à effet de serre et donc à un changement climatique donné. Ces scénarios SSPs seront utilisés pour évaluer des politiques sur le changement climatique, il est donc important qu'ils couvrent une large gamme de futurs possibles pour nos sociétés.

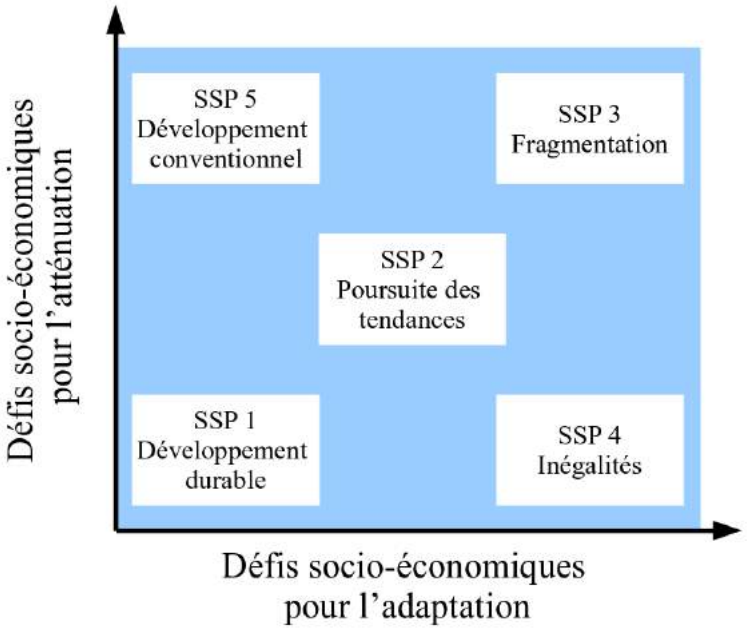

Figure 1.7 – Les cinq SSP types, répartis selon le défi socio-économique pour l'adaptation et pour l'atténuation (Adapté de O'Neill et al. 2014).

La méthode repose sur une architecture en matrice qui attribue pour cinq familles de scénarios d'évolution socio-économique (nommées SSP 1 à SSP 5) les efforts nécessaires à l'échelle mondiale pour tendre vers les forçages radiatifs correspondant à chaque RCP. Ces efforts se répartissent selon deux axes :

— un axe représentant le défi de l'adaptation des sociétés au changement climatique

— un autre axe représentant le défi de l'atténuation des émissions de gaz à effet

de serre.

Les cinq familles de scénarios-types couvrant l'espace défini par ces deux axes sont présentées sur la Figure 1.7 et ont été définies comme suit :

- SSP 1 (faible défi d'adaptation, faible défi d'atténuation) : monde avec une forte coopération internationale, donnant la priorité au développement durable.
- SSP 2 (défi d'adaptation moyen, défi d'atténuation moyen) : monde caractérisé par la poursuite des tendances actuelles.
- SSP 3 (défi d'adaptation élevé, défi d'atténuation élevé) : monde avec une compétition forte entre les pays, une croissance économique lente, des politiques peu soucieuses de l'environnement et plutôt orientées vers la sécurité et la production industrielle.
- SSP 4 (défi d'adaptation élevé, faible défi d'atténuation) : monde très inégalitaire entre les pays et à l'intérieur même de ces pays. Une minorité serait responsable de l'essentiel des émissions de GES (politiques d'atténuation plus faciles à mettre en place) tandis que la majeure partie de la population resterait pauvre et vulnérable face au changement climatique.
- SSP 5 (faible défi d'adaptation, défi d'atténuation élevé) : monde avec une croissance rapide, basée sur une consommation élevée d'énergie. La hausse du niveau de vie et notamment la baisse de l'extrême pauvreté permet en revanche d'augmenter la capacité d'adaptation.

Ces cinq familles de scénarios-types ont été élaborées au cours des dernières années en commençant par la manière dont elles pourraient être utilisées en complément des simulations climatiques (Kriegler et al., 2012; Vuuren et al., 2012; Kriegler et al., 2014; O'Neill et al., 2014) puis par le développement de leur contenu (Riahi et al., 2016). Les principales caractéristiques de ces 5 SSPs sont décris qualitativement (C. O'Neill et al., 2015) mais aussi quantitativement pour différents éléments clés comme la population (KC and Lutz, 2014), la croissance économique (Dellink et al., 2015) et l'urbanisation (Jiang and O'Neill, 2015).

Cohérence entre RCP et SSP

En fonction des différents paramètres des scénarios socio-économiques comme la démographie, l'urbanisation, la croissance économique, etc, certains SSPs sont compatibles avec seulement une partie des trajectoires de forçage radiatif (RCPs).

Le tableau 1.6 montre les relations possibles entre les RCPs et les SSPs du projet ScenarioMIP (Gidden et al., 2019). Ce tableau indique, par exemple, que la

		SSP 1	SSP 2	SSP 3	SSP 4	SSP 5
RCP	8.5					X
	7.0		X	X		X
	6.0	X	X	X	X	X
	4.5	X	X	X	X	X
	3.4	X	X	X	X	X
	2.6	X	X		X	X
	1.9	X	X		X	X

Table 1.6 – Relations possibles entre les différents RCPs et SSPs du projet ScenarioMIP (Scenario Model Intercomparison Project) qui fait partie du projet CMIP6 (Gidden et al., 2019).

famille SSP 3 n'est pas compatible avec le profil d'émission du RCP 1.9. Autrement dit, le monde décrit selon les paramètres définissant cette famille ne permet pas de limiter les émissions de gaz à effet de serre à un niveau suffisamment bas. Quant aux familles SSP 1 et SSP 4, elle ne sont pas compatibles avec les profils d'émissions des deux RCPs les plus pessimistes (RCP 7.0 et RCP 8.5). Pour finir, le RCP 8.5 est uniquement compatible avec le SSP 5. Gidden et al. (2019) montrent aussi dans leur étude que ces principales combinaisons de SSP et RCP permettent de couvrir, en 2100, une large gamme de valeur en terme de forçage radiatif et donc de température, allant de 1.4°C (SSP 1-1.9) à 4.9°C (SSP 5-8.5).

Dans ce travail de thèse, plusieurs combinaisons de SSP et de RCP vont aussi être utilisées, notamment le SSP 5-8.5, SSP 3-7.0 et le SSP 1-1.9 qui permettent d'avoir une large gamme de valeur en terme de forçage radiatif mais aussi des émissions d'aérosols ou de précurseurs d'aérosols assez contrastées. Le choix de ces différentes combinaisons sera expliqué plus en détail au début du Chapitre 3.

L'évolution des aérosols dans les différents RCPs/SSPs

Gidden et al. (2019) ont montré que, dans quasiment tous les scénarios, les émissions d'aérosols vont diminuer au cours du siècle. Cependant, l'amplitude ainsi que la rapidité de cette baisse vont dépendre fortement de différents facteurs propres à chaque SSP. Les émissions de soufre, par exemple, sont actuellement dominées par les secteurs de l'énergie et de l'industrie. Dans le SSP 1, où le monde s'éloigne de la production d'énergie liée aux combustibles fossiles (à savoir le charbon dans le cas du soufre), les émissions diminuent rapidement à mesure que le secteur de l'énergie utilise des combustibles non fossiles et que des mesures de réduction de la pollution en bout de chaîne sont mis en place. Dans le cadre de ce SSP, les émissions de soufre vont passer de 112 Mt par an en 2015 à 10 Mt par an à la fin du siècle. Le SSP 2 est

similaire au SSP 1 mais avec une action retardée. Dans ce SSP, les émissions de soufre diminuent essentiellement en raison de la décarbonisation du secteur de l'énergie. Le SSP 5 présente également une diminution des émissions globales de soufre, due en grande partie à une combinaison énergétique qui passe de l'utilisation du charbon au gaz naturel, ainsi que des efforts importants de lutte contre la pollution en fin de chaîne. Ces réductions sont similaires dans le secteur industriel, où le charbon remplace également le gaz naturel. Seul le SSP 3 montre des émissions de soufre en fin de siècle équivalentes à celles d'aujourd'hui, en grande partie à cause de la demande croissante de services industriels due à une population croissante au sein des pays en développement fortement dépendants de la production d'énergie à base de charbon mais aussi à cause des faibles efforts de lutte contre la pollution atmosphérique. Quant au carbone suie et au carbone organique, ils sont fortement dépendants du degré de progrès économique et de croissance de chaque scénario. Les émissions de carbone suie provenant des secteurs résidentiel et commercial représentent près de 40% des émissions totales de la période historique. Cependant, à la fin du siècle, la majorité des émissions de carbone suie sont associées aux cultures et au pâturage dans les SSPs 1, 2 et 5 en raison du développement économique, de la stabilisation de la population et du contrôle des émissions sur les sources mobiles. Seul le SSP 3, dans lequel l'inégalité globale persiste et où l'on retrouve des populations urbaines et rurales pauvres et vulnérables, connaît des émissions de carbone suie similaires à celles d'aujourd'hui. Les émissions de carbone organique proviennent en grande partie de biocarburants et de la combustion à ciel ouvert et suivent des tendances similaires, c'est à dire une réduction importante dans le cadre des scénarios avec un fort taux de développement. Les autres émissions de polluants, comme les NO_x, le monoxyde de carbone et le carbone organique volatil, présentent également une baisse dépendante du scénario (Rao et al., 2017).

1.3.2 La région Euro-Méditerranéenne : un "hotspot" du changement climatique

La région Euro-Méditerranéenne a été identifiée comme un "hotspot" du changement climatique, ce qui signifie que son climat est très réactif au changement climatique global en cours (Giorgi et al., 2009). En effet, la Figure 1.8 de l'étude de Jacob et al. (2014) basée sur un ensemble de 7 modèles régionaux à haute résolution du projet CORDEX, montre une forte hausse des températures à la fin du

siècle (2071-2100) de l'ordre de 1 à 4.5°C avec le scénario RCP 4.5 et de l'ordre de 2.5 à 5.5°C avec le scénario RCP 8.5 par rapport à la période 1971-2000. Si on considère le scénario le plus pessimiste, une large partie du nord de la Scandinavie ainsi que l'Europe de l'est pourraient être soumis à un réchauffement de plus de 4.5°C comparé à 1971-2000, ce qui ne serait pas le cas avec le RCP 4.5. Cette hausse de température est cohérente avec celle prédite par le projet ENSEMBLES qui prévoyait une hausse des températures de l'ordre de 3 à 4.5°C avec le scénario A1B entre la période 1971-2000 et 2021-2050 (Hewitt, 2004; van der Linden and Mitchell, 2009). À l'échelle saisonnière, les changements de températures sont plus hétérogènes que la moyenne annuelle, avec une hausse plus forte en hiver qu'en été.

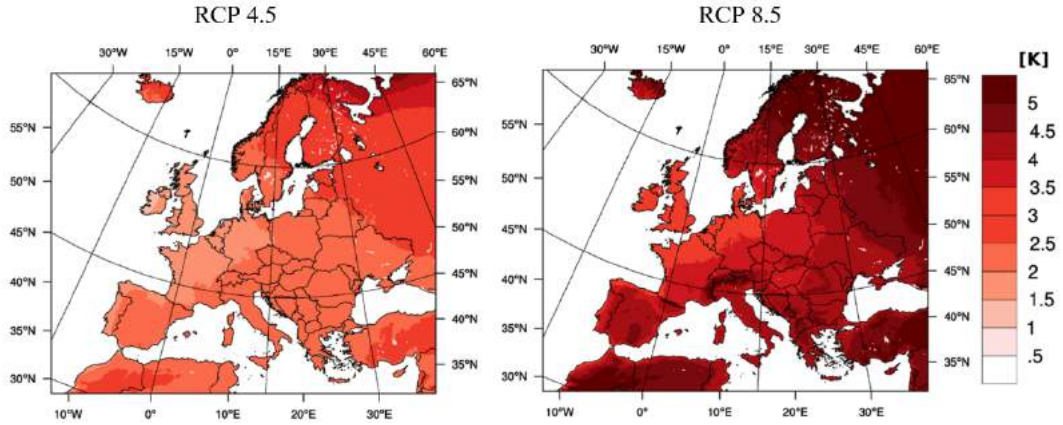

Figure 1.8 – Projection future (2071-2100) de la température annuelle moyenne comparée à la période 1971-2000 pour les scénarios RCP 4.5 et RCP 8.5. Les changements sont significatifs sur tout le continent européen. D'après Jacob et al. (2014).

Concernant les précipitations, Jacob et al. (2014) ont montré que la forte hausse des températures était associée à de fortes variations des précipitations. En effet, la Figure 1.9 montre une augmentation significative des précipitations d'au moins 25% sur une large partie de l'Europe centrale et sur le nord de l'Europe ainsi qu'une baisse de ces précipitations dans le sud de l'Europe. En hiver, la zone avec une augmentation des pluies descend vers le sud et seulement les parties les plus au sud de l'Espagne, de l'Italie, de la Grèce et de la Turquie connaissent une baisse des précipitations tandis que le reste de l'Europe est en augmentation. Inversement, en été, la zone avec une baisse des pluies remonte vers le nord et seulement la Scandinavie ainsi qu'une partie du nord-est de l'Europe connaissent une augmentation des pluies. La Figure 1.9 montre que les changements de précipitations sont similaires entre les deux RCPs mais restent moins prononcés pour le RCP 4.5 notamment au niveau des îles Britanniques, du Benelux et de l'Allemagne. Comme pour les températures, ces évolutions de précipitations sont cohérentes avec celle montrée

dans le cadre du projet ENSEMBLES à partir du scénario A1B. Il est important de noter que les incertitudes dans les études d'ensembles de modèles climatiques, et notamment les modèles climatiques régionaux, sont encore assez élevées. Cette question a récemment été abordée par von Trentini et al. (2019) qui montrent que, outre l'incertitude liée au scénario et à la réponse du modèle, la variabilité naturelle est une autre source importante d'incertitude. En effet ils mettent en évidence que, même dans un avenir lointain, la variabilité interne peut expliquer entre 25 et 75% de l'incertitude totale.

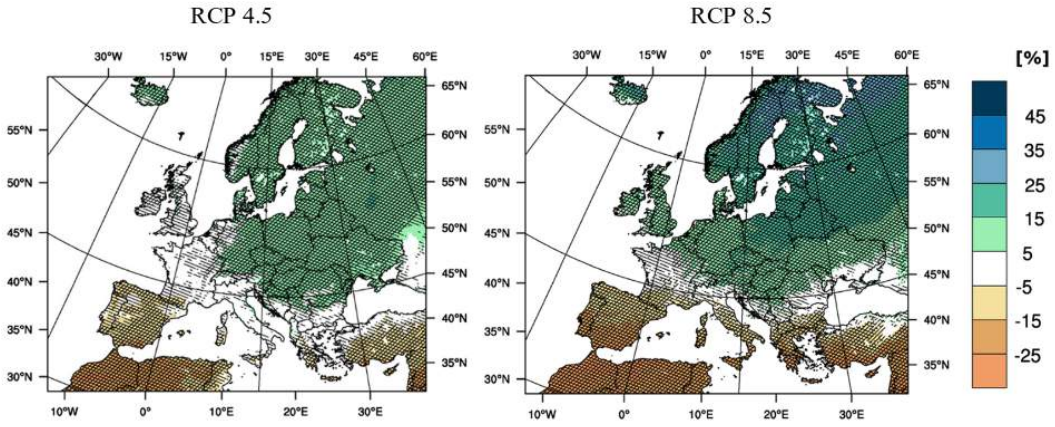

Figure 1.9 – Projection future (2071-2100) des précipitations annuelles moyennes comparée à la période 1971-2000 pour les scénarios RCP 4.5 et RCP 8.5. Les zones hachurées indiquent les régions avec un changement robuste (\) et/ou statistiquement significatif (/). D'après Jacob et al. (2014).

L'ensemble des modèles globaux et régionaux sont en accord avec l'étude de Jacob et al. (2014) et montre un réchauffement ainsi qu'une baisse des précipitations autour de la mer Méditerranée avec une amplitude qui dépend principalement du scénario d'émissions après 2050 (Giorgi and Lionello, 2008; IPCC, 2013; Thiébault and Moatti, 2016). Les projections climatiques indiquent aussi, malgré une distribution spatiale des températures et des précipitations encore incertaine, des vagues de chaleurs plus fréquentes et plus intenses sur la région Méditerranéenne (Giorgi and Coppola, 2009; IPCC, 2013). Sous l'effet du changement climatique, les modèles de climat prévoient également une augmentation de la température de la surface de la mer Méditerranée (Somot et al., 2006; Adloff et al., 2015), se propageant aux couches océaniques profondes et ayant un impact sur la densité de l'eau et donc sur la circulation thermohaline (Somot et al., 2006; Marcos and Tsimplis, 2008; Carillo et al., 2012; Adloff et al., 2015; Macias et al., 2016). Des changements de salinité, encore incertains, pourraient aussi impacter cette circulation thermohaline (Adloff et al., 2015; Thiébault and Moatti, 2016). Les évènements hydro-météorologiques comme

les pluies intenses et les crues rapides (Jacob et al., 2014), les tempêtes (Romero and Emanuel, 2013; Cavicchia et al., 2014) ou encore les sécheresses favorisant les feux de forêts (Thiébault and Moatti, 2016) sont aussi susceptibles d'évoluer sous l'effet du changement climatique.

Tous ces changements climatiques vont avoir des conséquences importantes, notamment sur la qualité de l'air mais aussi sur les ressources en eau de la région méditerranéenne (Thiébault and Moatti, 2016). Cette région est naturellement soumise à une pollution de l'air assez forte, souvent plus élevée que dans le reste de l'Europe continentale, qui est due notamment à son climat ensoleillé, chaud et sec mais aussi à la présence de fortes charges en aérosols (Nabat et al., 2013; Doche et al., 2014; Menut et al., 2015). Les changements climatiques qui vont avoir lieu sur cette région (hausse des températures et des sécheresse notamment) ainsi que la pression démographique devraient encore dégrader la qualité de l'air et engendrer par conséquent une surmortalité (Thiébault and Moatti, 2016). Les différents changements climatiques prévus sur la région méditerranéenne vont aussi avoir un impact sur les ressources en eau à travers principalement la baisse des précipitations mais aussi la hausse de l'évaporation due à la hausse des températures (Schilling et al., 2012). Les pays les plus touchés par le manque d'eau seront les pays qui se situent au nord de l'Afrique car ceux-ci ont déjà une ressource en eau assez limitée. Outre la qualité de l'air et la ressource en eau, les changements climatiques futurs sur la région Euro-Méditerranéenne auront aussi d'autres conséquences importantes notamment sur la biodiversité et les écosystèmes marins et terrestres (Lazzari et al., 2013; Herrmann et al., 2014; Marbà et al., 2015; Médail and Quézel, 2003; Médail, 2013) mais aussi sur les zones côtières qui seront particulièrement sensibles à l'élévation du niveau marin (Thiébault and Moatti, 2016) ainsi que sur les vagues de chaleur marine qui devraient se caractériser par une durée et une intensité plus élevée à l'avenir (Darmaraki et al., 2019).

1.3.3 Prise en compte de l'évolution future des aérosols par les modèles régionaux sur la région Euro-Méditerranéenne

Précédemment, nous avons vu que les aérosols avaient un impact important sur le climat présent de la région méditerranéenne avec une baisse du rayonnement so-

laire en surface d'environ 20-30 W m^{-2} (Horvath et al., 2002; Meloni et al., 2003; Roger et al., 2006; Di Biagio et al., 2009, 2010), sur le cycle de l'eau en réduisant les précipitations moyennes annuelles d'environ 10% et en renforçant la circulation thermohaline (Nabat et al., 2015a) ainsi que sur la qualité de l'air (Thiébault and Moatti, 2016). L'étude de l'impact des aérosols naturels et anthropiques sur le climat futur de la région méditerranéenne, grâce aux modèles régionaux, est donc nécessaire pour guider les politiques publiques dans leur choix de stratégies d'atténuation et d'adaptation au changement climatique mais aussi pour approfondir nos connaissances sur les interactions entre les aérosols et le climat.

Les modèles régionaux sont de plus en plus nombreux à prendre en compte les principaux types d'aérosols (poussières désertiques, sels marins, sulfates, carbone organique et carbone suie). En revanche, l'étude de l'impact de l'évolution de ces particules sur le futur climat Euro-Méditerranéen par un modèle régional n'a pas encore été abordée. En effet, peu de modèles climatiques régionaux prennent en compte l'évolution future des aérosols. À notre connaissance seulement trois modèles régionaux du projet Euro/Med-CORDEX, qui sont ALADIN-Climat, WRF et RACMO, intègrent des aérosols évolutifs. Le modèle climatique régional ALADIN-Climat sera le modèle utilisé tout au long de ce travail et sera présenté dans le chapitre 2. Le modèle WRF (Weather Research and Forecasting, Skamarock and Klemp 2008) est un modèle atmosphérique développé par le National Center for Atmospheric Research (NCAR) et qui peut être utilisé, comme son nom l'indique, pour la recherche mais aussi pour la prévision numérique du temps. Quant au modèle RACMO (Van Meijgaard et al., 2008), il a été développé à partir des années 1990 par le KNMI (Royal Netherlands Meteorological Institute) en collaboration avec l'Institut Météorologique Danois et il est basé sur le modèle numérique de prévision du temps HIRLAM (High Resolution Limited Area Model). Concernant le FPS aérosol, pour le moment, seulement trois modèles équipés de schéma d'aérosols interactif (CNRM-RCSM, RegCM et WRF) prévoient de faire des études sur de longues périodes de temps.

Cependant, il est important de noter que certaines études ont déjà abordé l'impact du changement climatique sur la concentration à la surface des particules fines et notamment sur les PM_{10} (particules de taille inférieure à 10 µm) et les $PM_{2.5}$ (particules de taille inférieure à 2.5 µm) à l'aide de modèles de prévision de la qualité de l'air. Cholakian et al. (2019) ont par exemple étudié l'évolution future des PM_{10} sur la période 2031-2100 par rapport à une période de référence allant de 1976 à 2005 en fonction de trois scénarios différents (RCP 2.6, RCP 4.5 et RCP 8.5). Leur étude montre que, avec le scénario RCP 4.5, le changement climatique régional

engendre une baisse de la concentration des PM_{10} sur l'Europe (-12 %) et le bassin méditerranéen (-1 %). D'autres études, comme celle de Markakis et al. (2014) ou de Lacressonnière et al. (2017) ont aussi montré une baisse des PM_{10} sur l'Europe. Celle enregistrée avec les scénarios RCP 4.5 et RCP 8.5 dans l'étude de Cholakian et al. (2019) serait principalement due à une baisse des nitrates. Dans le cadre du RCP 2.6, la hausse des poussières désertiques, des sels marins et des aérosols organiques secondaires biogéniques est plus importante que la baisse des nitrates (Cholakian et al., 2019).

Ces études montrent donc que le changement climatique va avoir un impact sur la concentration en surface des particules fines. Néanmoins, l'étude de l'impact de l'évolution future des aérosols sur le climat de la région méditerranéenne estimé à partir de modèles climatiques régionaux intégrant les différents forçages radiatifs exercés par les aérosols (naturels et anthropiques) sur le rayonnement solaire/proche infrarouge (direct), les propriétés nuageuses (indirect et semi-direct) et la circulation atmosphérique (semi-direct), en est encore à ses débuts. Celle-ci devrait se développer de plus en plus, notamment grâce à des exercices de simulations coordonnées (FPS "aérosols") intégrés aux programmes internationaux Euro-CORDEX et Med-CORDEX.

1.4 Présentation de la thèse

1.4.1 Objectifs principaux de la thèse

Comme mentionné précédemment, la région méditerranéenne se caractérise par un climat complexe qui est influencé, aux différentes échelles de temps et d'espace, par de nombreux processus. De plus, la Méditerranée est soumise à de fortes charges en aérosols, d'origines variées, présentant une forte variabilité spatio-temporelle. L'état de l'art sur cette région met en évidence un impact fort des aérosols sur le climat méditerranéen passé et présent, indiquant que c'est une composante atmosphérique qu'il faut absolument considérer sur cette région dans les simulations climatiques. Malgré tout cela, comme nous l'avons vu précédemment, seulement quelques études concernant l'évolution future des polluants atmosphériques ont été abordées à l'échelle régionale jusqu'à maintenant. Le principal but de cette thèse est donc de réaliser une première étude sur l'impact de l'évolution future des différents aérosols sur le climat de la région Euro-Méditerranéenne en utilisant une approche de modélisation régionale. Nous disposons en effet d'un outil spécifique intégrant la majorité des espèces d'aérosols, à l'exception des nitrates et de l'ammonium qui

sont importants à considérer sur la région Euro-Méditerranéenne (Bellouin et al., 2011; Hauglustaine et al., 2014). Il a donc fallu dans un premier temps développer une nouvelle paramétrisation, intégrée au schéma d'aérosols TACTIC, permettant de représenter les particules de nitrate et d'ammonium afin d'avoir une prise en compte complète des aérosols anthropiques. Malgré une nouvelle version plus complète, le schéma d'aérosols TACTIC garde un coût de calcul relativement bas grâce à sa représentation simplifiée des aérosols. Cette nouvelle version du modèle nous a ensuite permis, dans un premier temps, de quantifier l'impact des aérosols de nitrate et d'ammonium sur le climat présent de la région Euro-Méditerranéenne puis, dans un deuxième temps, de faire le bilan des différents aérosols sur la région Méditerranéenne entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050) mais aussi d'étudier leur impact sur le rayonnement solaire, la température ou encore les précipitations entre ces deux périodes. Ensuite, la question de la sensibilité du climat Euro-Méditerranéen futur aux aérosols, et plus particulièrement aux aérosols anthropiques, sera abordée. L'un des objectifs de cette partie sera de quantifier de manière la plus réaliste possible les différents effets des aérosols sur le climat. Pour finir, l'objectif final de ce travail de thèse sera de comparer nos résultats avec ceux issus d'un modèle utilisant des AOD climatologiques plutôt qu'un schéma d'aérosols interactif.

1.4.2 Démarche scientifique

Comme énoncé précédemment, une approche utilisant la modélisation régionale paraît la plus pertinente pour ce travail. Pour atteindre ces objectifs, le modèle climatique régional CNRM-RCSM (Regional Climate Modeling System) sera donc utilisé. Afin d'envisager plusieurs scénarios possibles dans le futur, un coût de calcul relativement bas est nécessaire. Par conséquent le modèle régional CNRM-RCSM sera utilisé ici sans être couplé à l'océan même si, comme mentionné précédemment, le couplage océan-atmosphère est important à prendre en compte pour l'étude des aérosols sur cette région (Nabat et al., 2015b). Les incertitudes engendrées par ce choix méthodologique seront donc discutées lors des résultats, notamment dans le chapitre 4. Par soucis de clarté le modèle CNRM-RCSM, qui sera donc non couplé à l'océan durant ce travail, sera nommé ALADIN-Climat. Ce modèle régional ainsi que ses différentes composantes seront présentés au début du chapitre 2.

Comme vu précédemment, au début de ce travail de thèse, le modèle régional ALADIN-Climat incluait la majorité des espèces d'aérosols à travers le schéma interactif TACTIC, à l'exception des nitrates et de l'ammonium. Étant donné l'im-

portance de ces aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne, leur implémentation, qui est détaillée dans le chapitre 2, a été la première étape de ce travail de thèse. Suite à cela, une simulation du climat passé (1971-2000) ainsi que plusieurs simulations du climat futur (2021-2050) suivant des scénarios différents ont été réalisées avec la nouvelle version du modèle afin de pouvoir répondre aux principaux objectifs de cette thèse. Ces différentes simulations ainsi que les choix des différents scénarios utilisés seront décris en détail au début du chapitre 3.

1.4.3 Organisation de la thèse

Suite à ce premier chapitre introductif récapitulant les principales notions abordées au cours de la thèse, le chapitre 2 sera consacré à la présentation du modèle régional ALADIN-Climat ainsi qu'à l'implémentation des aérosols de nitrate et d'ammonium dans le schéma pronostique d'aérosols TACTIC qui est inclus dans ce modèle. Une partie importante sera consacrée à l'évaluation de ce nouveau schéma d'aérosols en utilisant différents jeux d'observations (satellites et stations au sol). Pour finir, la question de l'impact de ces aérosols sur le climat présent de la région Euro-Méditerranéenne sera aussi abordée dans ce chapitre.

Dans le chapitre 3, on s'intéressera au bilan (émission, concentration et AOD) des différents aérosols, naturels et anthropiques, entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050) sur la région Euro-Méditerranéenne. Les différentes simulations, réalisées par le modèle régional ALADIN-Climat, qui seront utilisées au cours de cette thèse ainsi que le choix des différents scénarios futurs seront expliqués en détail au début de ce chapitre.

L'évolution du forçage radiatif direct des aérosols, en surface et au sommet de l'atmosphère, entre la période passée et la période future sera abordée au début du chapitre 4. Suite à cela, la sensibilité du climat européen futur à ces différents aérosols sera étudiée, notamment avec une quantification des interactions aérosols-rayonnement (ERFari) et aérosols-nuages (ERFaci). Pour finir, une comparaison de ces résultats avec ceux d'un modèle utilisant des AOD climatologiques sera réalisée. En plus de pouvoir confronter nos résultats à ceux d'une étude similaire, ce travail permettra aussi de comparer deux méthodes différentes de prise en compte des aérosols dans un modèle climatique.

Le chapitre 5 consistera à conclure et à énoncer les différentes perspectives de ce travail.

Chapitre 2

Développement du schéma d'aérosols du modèle ALADIN-Climat

Sommaire

2.1 Le modèle régional ALADIN-Climat et son schéma d'aérosols TACTIC 42

2.2 Résumé de l'article 54

2.3 Simulation des aérosols de nitrate et d'ammonium sur la région méditerranéenne et étude de leurs effets radiatifs et climatiques sur la période 1979-2016 (article) 56

2.4 Conclusions et perspectives 82

Comme mentionné précédemment, au début de cette thèse les aérosols de nitrate et d'ammonium n'était pas encore inclus dans le schéma d'aérosols TACTIC intégré dans le modèle ALADIN-Climat, ce qui représentait une limitation importante. La première étape de ce travail a donc été d'ajouter ces deux types d'aérosols au schéma d'aérosols TACTIC afin de représenter de manière plus complète la fraction anthropique des particules. Suite à cela, une évaluation du nouveau schéma d'aérosols ainsi qu'une première étude sur l'impact des aérosols de nitrate et d'ammonium sur le climat présent de la région Euro-Méditerranéenne a été menée. Ce travail, qui a fait l'objet d'une publication dans le journal Atmospheric Chemistry and Physics (ACP), sera présenté ici suite à la description du schéma d'aérosols TACTIC.

2.1 Le modèle régional ALADIN-Climat et son schéma d'aérosols TACTIC

Pour rappel, le modèle régional CNRM-RCSM utilisé au cours de ce travail sera non couplé à l'océan et sera par conséquent appelé ALADIN-Climat pour des raisons de clarté. Celui-ci intègre différents modèles listés ci-dessous (Figure 2.1) :

- le modèle régional atmosphérique ALADIN-Climat (Aire Limitée Adaptation dynamique Développement InterNational, Bubnová et al. 1995; Radnóti et al. 1995). Il s'agit d'un modèle bi-spectral à aire limitée ayant une résolution horizontale de 50km ainsi que 91 niveaux verticaux. Les conditions aux bords peuvent soit venir de réanalyses comme par exemple ERA-Interim (Dee et al., 2011) ou alors de modèles atmosphériques globaux, comme ARPEGE-Climat qui est la composante atmosphérique du modèle "système terre" du CNRM (Salas-Mélia et al., 2005) et qui a la même physique atmosphérique que ALADIN-Climat. La version du modèle ALADIN-Climat utilisée durant cette étude sera la version 6.2 similaire à celle présentée dans Daniel et al. (2018). ALADIN-Climat intègre un schéma pronostique d'aérosols qui sera détaillé dans le paragraphe 2.1.
- la plateforme de modélisation de surfaces continentales SURFEX (Surface Externalisée, Masson et al. 2013) qui inclue le modèle de surfaces continentales ISBA (Interaction Sol-Biosphère-Atmosphère, Noilhan and Planton 1989) modélisant les échanges d'eau et d'énergie à l'interface entre la plante, le sol et l'atmosphère. SURFEX va fournir les valeurs moyennes du rayonnement ascendant, des flux thermiques latents et sensibles, du flux de quantité de mouvement, ainsi que d'albédo de surface nécessaires au schéma radiatif du modèle ALADIN-Climat.
- le schéma de rivières TRIP (Total Runoff Integrating Pathways, Oki and Sud 1998) qui permet de simuler de manière interactive le débit des rivières en fonction du bilan évaporation-précipitations fourni par ISBA.

Prise en compte des aérosols

Au sein du modèle régional ALADIN-Climat, les aérosols peuvent être représentés de deux manières différentes. La première possibilité est l'utilisation de climatologies mensuelles et interannuelles d'épaisseur optique en aérosols représentant

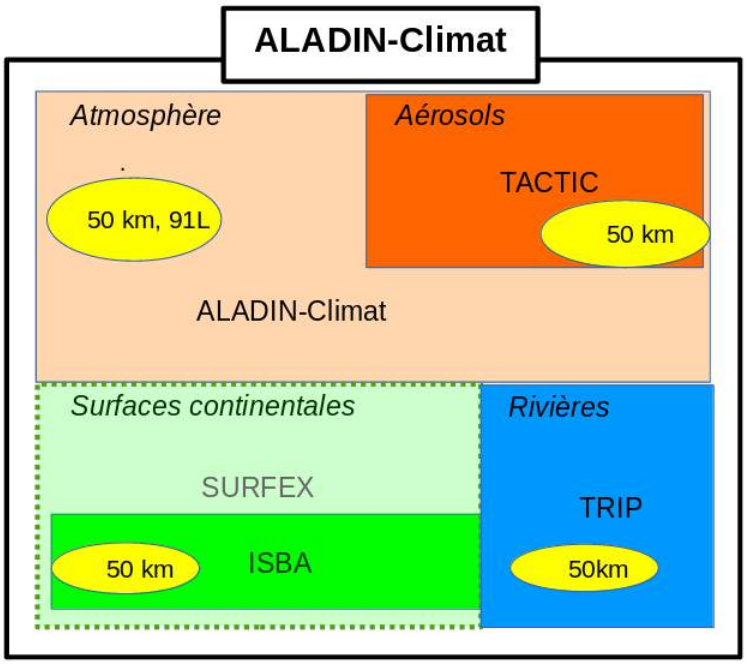

Figure 2.1 – Modèle climatique régional ALADIN-Climat et ses principales composantes.

l'extinction du rayonnement par les aérosols sur une colonne atmosphérique. Les différentes climatologies sont fournies pour cinq types d'aérosols, à savoir les poussières désertiques, les sels marins, les sulfates, le carbone organique et le carbone-suie. Celles-ci sont essentiellement basées sur la méthode développée par Nabat et al. (2013) et couvrent la période 1979-2009 avec un pas de temps mensuel et une résolution de 50 km. Cette méthode est basée sur l'utilisation des données satellites AQUA/MODIS pour l'épaisseur optique totale, celle des sorties du modèle RegCM et de la réanalyse MACC pour la séparation par type d'aérosols ainsi que sur celle des données du lidar CALIOP pour construire la distribution verticale de ces aérosols. La deuxième possibilité permettant de considérer les différents forçages des aérosols (naturels et anthropiques) est l'utilisation d'un schéma interactif d'aérosols nommé TACTIC (Tropospheric Aerosols for ClimaTe In CNRM, Nabat et al. 2015a), qui est adapté du schéma présent dans C-IFS-AER (Morcrette et al., 2009). Que ce soit avec la première méthode ou ici, les aérosols interagissent avec le rayonnement solaire et infrarouge en fonction de leurs propriétés optiques.

Le schéma d'aérosols TACTIC permet de simuler le cycle de vie des différents types d'aérosols, qui sont considérés comme des variables pronostiques, et de prendre en compte leurs effets radiatifs directs et semi-directs. Le premier effet indirect des sulfates, des sels marins et du carbone organique est également pris en compte. En

revanche, le deuxième effet indirect des aérosols (impact des aérosols hydrophiles sur les précipitations) n'est pas inclus dans ce schéma d'aérosols. Pour finir, les aérosols organiques secondaires sont pris en compte à travers une climatologie mais ne sont pas inclus explicitement dans le schéma d'aérosols TACTIC. Pour représenter le spectre dimensionnel des particules, ce schéma d'aérosols utilise plusieurs classes de taille pour certaines espèces. Les poussières désertiques sont divisées en 3 bins (0.01-1.0, 1.0-2.5 et 2.5-20.0 µm) tout comme les sels marins (0.01-1.0, 1.0-10.0 et 10.0-100.0 µm). Le carbone suie et le carbone organique sont tous les deux séparés en deux bins (hydrophile et hydrophobe). Un bin est utilisé pour les sulfates et un autre bin est utilisé pour ses précurseurs, notamment le dioxyde de souffre. Les nitrates sont quand à eux divisés en deux bins (fin et grossier). Deux derniers bins sont utilisés, l'un pour l'ammonium et l'autre pour l'ammoniac.

Afin de garder un coût de calcul raisonnable, plusieurs simplifications sont utilisées comme par exemple limiter au nombre de trois les bins des aérosols naturels (poussières désertiques et sels marins). Concernant les aérosols anthropiques, le schéma d'aérosols TACTIC utilise une approche "bulk" permettant d'avoir un nombre restreint de bin. Ces simplifications concernant la taille des particules dans le modèle ALADIN-Climat ne vont donc pas permettre à ce modèle d'être bien adapté aux études sur la qualité de l'air car le spectre granulométrique des aérosols y est bien moins représenté que dans les modèles de chimie-transport comme MOCAGE, CHIMERE, POLYPHEMUS ou encore WRF-C. Une autre limitation présente dans le schéma d'aérosols TACTIC concerne les propriétés optiques des aérosols. En effet, celles-ci ne sont pas calculées en ligne dans le modèle mais sont fixes et varient uniquement en fonction de l'humidité relative moyenne dans la maille. De plus ce schéma d'aérosols considère un mélange externe des différentes espèces, ce qui va impacter l'interaction des aérosols avec le rayonnement et donc les propriétés optiques des aérosols (Fuller et al., 1999; Lesins et al., 2002; Reid et al., 2005). D'autres limitations comme l'absence d'un processus de nucléation ou de représentation explicite de l'activation des aérosols en gouttelettes nuageuse sont aussi nécessaires afin d'avoir un schéma d'aérosols avec un coût de calcul raisonnable.

L'émission, le dépôt ainsi que les propriétés optiques des différents aérosols sont décris en détails ci-dessous.

Émissions des aérosols

Les aérosols naturels comme les poussières désertiques ou les sels marins sont émis de façon dynamique, c'est à dire qu'ils sont générés en fonction de la vitesse du

vent en surface. D'autres caractéristiques comme l'humidité du sol ou la température de surface de la mer sont aussi pris en compte.

Concernant les sels marins, ils peuvent être formés soit à partir de bulles d'air, piégées dans l'océan suite à l'action des vagues, qui remontent et éclatent à la surface (film et jet droplets) soit directement à la crête des vagues, lorsque le vent est suffisamment fort pour y arracher des particules (vent supérieur à 30 km/h environ) et ainsi former des gouttelettes de taille assez importante, supérieure à 20 µm (spume droplets, Monahan and Mac Niocaill 2012; Zakey et al. 2008). La formulation actuelle utilisée dans ALADIN-Climat est basée sur les études de Andreas (1998) pour le bin le plus grossier et de Grythe et al. (2014) pour les deux bins les plus fins, qui fournissent des flux de masse en surface à une humidité relative de 80%, en étant dépendant du vent à 10 mètres. Mathématiquement, les émissions des sels marins sont décrites par les équations suivantes :

$$\frac{dF}{dr} = \begin{cases} T_W.[235.U_{10}^{3.5}exp(-0.55[ln(\frac{2r}{0.1})]^2) + 0.2.U_{10}^{3.5}exp(-1.5[ln(\frac{2r}{3})]^2) & \\ +6.8.U_{10}^{3}exp(-1[ln(\frac{2r}{30})]^2)] & 0.01 \geq 2\text{r} \leq 10.0\ \mu\text{m} \\ T_W.[C(U_{10})r^{-1}] & 10.0 > 2\text{r} \leq 100.0\ \mu\text{m} \end{cases}$$

Avec r le rayon de la particule, U_10 le vent à 10 mètres et C un coefficient dépendant du vent à 10 mètres (Andreas, 1998). Cette paramétrisation des émissions de sels marins, à travers le terme T_W, est aussi dépendante de la température de la surface de la mer notée T (Jaeglé et al., 2011) :

$$T_W = 0.3 + 0.1\ T - 0.0076\ T^2 + 0.00021\ T^3$$

Concernant les poussières désertiques, leur processus d'émission est initialement issu d'une formule simplifiée dépendant uniquement de la vitesse du vent en surface, de la fraction de sol nu et de l'humidité du sol (Ginoux et al., 2001). Suite à cela, cette paramétrisation a été remplacée par celle de Marticorena and Bergametti (1995) permettant de prendre en compte d'autres caractéristiques du sol. L'équation utilisée pour le calcul du flux horizontal total (G_{tot}) est la suivante :

$$G_{tot} = E.C.\frac{\rho_a}{g}.U^{*3}.\int_{D_p}(1+R)(1-R^2)\,\mathrm{d}S_{rel}(D_p).dD_p$$

Avec E le ratio représentant la part de surface érodable, C une constante de proportionalité d'une valeur de 2.61 déterminée expérimentalement par White (1979) et confirmée plus récemment par Greeley et al. (1996). ρ_a correspond à la densité de l'air, U^* est la vitesse de friction du vent, D_p est le diamètre de la particule, R

est le rapport entre la vitesse de friction du vent et sa valeur seuil. Quant à S_{rel} elle représente la distribution continue relative de la surface couverte par les particules.

Une distribution en taille du flux vertical émis, issue de l'étude de Kok (2011), a aussi été intégrée dans le schéma d'aérosols. Celle-ci est basée sur la fragmentation des verres, qui s'est avérée applicable à l'émission des poussières désertiques. Le calcul du volume (V_d) de cette distribution se traduit par :

$$\frac{dV_d}{dlnD_d} = \frac{D_d}{c_V}\left[1 + erf\left(\frac{ln(D_d/D_s}{\sqrt{2}ln\sigma_s}\right)\right].exp\left[-\left(\frac{D_d}{\lambda}\right)^3\right]$$

Avec D_d le diamètre de l'aérosol, D_s le diamètre médian de la distribution, c_V est une constante de normalisation, σ_s est l'écart type géométrique, λ une valeur spécifique correspondant au "side crack propagation length" (Kok, 2011) et erf une fonction d'erreur décrite dans Seinfeld and Pandis (1998).

Contrairement aux aérosols naturels, les émissions des aérosols anthropiques primaires (carbone suie, carbone organique) et des précurseurs de sulfates, nitrate et ammonium, qui correspondent à un flux entre la surface et le premier niveau du modèle, sont fournies par des inventaires d'émissions globaux avec une résolution de 0.5 ° (CMIP6, Eyring et al. 2016). Pour les émissions historiques, le jeu de données CEDS (Community Emissions Data System, Gidden et al. 2019) sera utilisé. Ce jeu de données fournit des fichiers mensuels des émissions des différents aérosols et de leurs précurseurs provenant des principaux secteurs d'activité (résidentiel, agriculture, énergie, industriel, transport terrestre et maritime, déchets, solvant, aérien) mais aussi les émissions provenant des feux de biomasse (naturels et anthropiques) sur la période 1750-2014. Par ailleurs, les émissions naturelles d'aérosols incluent le souffre issu des volcans et des océans mais aussi les aérosols organiques secondaires formés à partir des composés organiques volatils. Les anciens inventaires ont été améliorés grâce à une méthodologie plus cohérente et reproductible appliquée à toutes les espèces émises ainsi qu'aux facteurs d'émission qui ont été mis à jour. Ce jeu de données s'appuie sur l'ensemble des données de consommation d'énergie existants et sur les inventaires régionaux, spécifiques à chaque pays, pour produire les tendances des dernières décennies. Les émissions futures sont elles issues des différents SSP présentés précédemment dans la section 1.3.1 du chapitre 1.

Nous faisons l'hypothèse que le carbone organique se répartit à 50% dans le bin hydrophile et 50% dans le bin hydrophobe lorsqu'il est émis. En revanche, 80% du carbone suie se situe dans le bin hydrophile et 20% dans le bin hydrophobe quand il est émis. Une fois émis, le composant hydrophobe devient hydrophile en 1.63 jours. En ce qui concerne les sulfates, ces différents jeux de données fournissent l'inventaire de l'un de ses précurseurs qui est le dioxyde de souffre (SO_2, issu des volcans).

Concernant le diméthylsulfate (DMS, issu des océans), il provient de la base de données présentée par Kettle et al. (1999) qui a été construite à partir d'observations et qui fournit des moyennes mensuelles à 1 ° de résolution. Un autre précurseur de sulfate a été ajouté, il s'agit du sulfure d'hydrogène (H_2S) qui correspond à 5% des émissions du SO_2 anthropique (Boucher et al., 2002; Huneeus, 2007). Une émission directe de sulfate, basée sur l'étude de Benkovitz et al. (1996), correspondant à 5% du SO_2 émis a donc été ajoutée au schéma. Suite à cela, la transformation du dioxyde de souffre en sulfate se fait simplement en utilisant une constante de temps qui varie en fonction de la latitude (de 3 jours à l'équateur à 8 jours aux pôles), tout comme le schéma d'aérosols décris dans l'article de Morcrette et al. (2009).

Tout comme les sulfates, les aérosols de nitrate et d'ammonium sont produits dans le modèle à partir des émissions ou de la production de leurs précurseurs (acide nitrique et ammoniac). La mise en place de ces aérosols dans le modèle ainsi que leurs processus de production sont résumés dans la partie 2.2 et sont décris en détail dans l'article de Drugé et al. (2019) présenté dans la partie 2.3.

Les cartes d'émissions (ou de tendances de formation dans le cas des nitrates et de l'ammonium) moyennes des différents aérosols mais aussi de l'ammoniac et des précurseurs de sulfate utilisées pour forcer à la surface le modèle ALADIN-Climat sont présentées sur la Figure 2.2. Ces émissions sont dominées en majorité par les particules grossières des aérosols naturels (poussières désertiques et sels marins). La distribution spatiale des émissions de poussières désertiques sur le Sahara montre une forte hétérogénéité et fait ainsi ressortir les régions les plus émettrices. Les émissions d'aérosols anthropiques comme le carbone organique, le carbone suie et les sulfates, mais aussi les précurseurs de sulfates, font ressortir les principales villes de la région méditerranéenne, qui sont principalement localisées en Europe. Les précurseurs de sulfate font aussi ressortir les principales routes de transport maritime. Les émissions d'ammoniac ainsi que les tendances de formation de nitrates et d'ammonium font quant à elles ressortir des zones particulièrement polluées comme la plaine du Pô ou le Benelux.

Dépôt des aérosols

Tous ces différents aérosols sont ensuite transportés, lessivés et déposés. Plusieurs types de procédés d'élimination sont envisagés comme le dépôt sec, comprenant la sédimentation gravitationnelle et la diffusion brownienne expliqués au début du chapitre 1, et le dépôt humide avec l'élimination de l'aérosol dans et sous les nuages.

Le transfert turbulent de particules à la surface (diffusion brownienne) est re-

Constantes	**DDbin01**	**DDbin02**	**DDbin03**	**SSbin01**	**SSbin02**	**SSbin03**	**BCphil**	**BCphob**	**OMphil**	**OMphob**
Eff. ic.	0.5	0.5	0.5	0.7	0.9	0.9	0.1	0	0.1	0
Eff. bc. r.	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001	0.001
Eff. bc. s.	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
Vit. dép. sec										
$V_d terre$	0.15E-02	0.07E-01	0.145E-01	3.00E-04	1.0E-02	1.0E-01	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02
$V_d ocean$	0.15E-02	0.07E-01	0.145E-01	3.00E-04	1.0E-02	1.0E-01	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02
$V_d glace$	0.15E-02	0.07E-01	0.145E-01	3.00E-04	1.0E-02	1.0E-01	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02
$V_d banquise$	0.15E-02	0.07E-01	0.145E-01	3.00E-04	1.0E-02	1.0E-01	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02	0.10E-02
Eff. sédim.	NA	NA	0.1962E-02	NA	NA	3.00E-02	NA	NA	NA	NA

Constantes	**SO_4**	**SO_2**	**NO_3bin01**	**NO_3bin02**	**NH_4**	**NH_3**
Eff. ic.	0.2	0	0.8	0.8	0.8	0.8
Eff. bc. r.	0.001	0	0.001	0.001	0.001	0
Eff. bc. s.	0.01	0	0.01	0.01	0.01	0
Vit. dép. sec						
$V_d terre$	0.25E-02	0.50E-02	0.15E-02	0.15E-01	0.15E-02	0.50E-02
$V_d ocean$	0.05E-02	0.15E-01	0.15E-02	0.15E-01	0.15E-02	0.15E-01
$V_d glace$	0.25E-02	0.10E-02	0.15E-02	0.15E-01	0.15E-02	0.50E-02
$V_d banquise$	0.25E-02	0.30E-02	0.15E-02	0.15E-01	0.15E-02	0.30E-02
Eff. sédim.	NA	NA	NA	NA	NA	NA

Table 2.1 – Vitesses (en m s^{-1}) de dépôt sec (Vit. dép. sec), de sédimentation (Eff. sédim.) mais aussi d'efficacité en terme de dépôt humide dans (Eff. ic.) et sous (Eff. bc. r. pour la pluie et Eff. bc. s. pour la neige) le nuage pour les différents aérosols ainsi que pour le dioxyde de souffre (SO_2) et l'ammoniac (NH_3) présents dans le schéma d'aérosols TACTIC. NA = non appliqué, DD = poussières désertiques, SS = sels marins, BC = carbone suie, OM = carbone organique, SO_4 = sulfate, NO_3 = nitrate et NH_4 = ammonium.

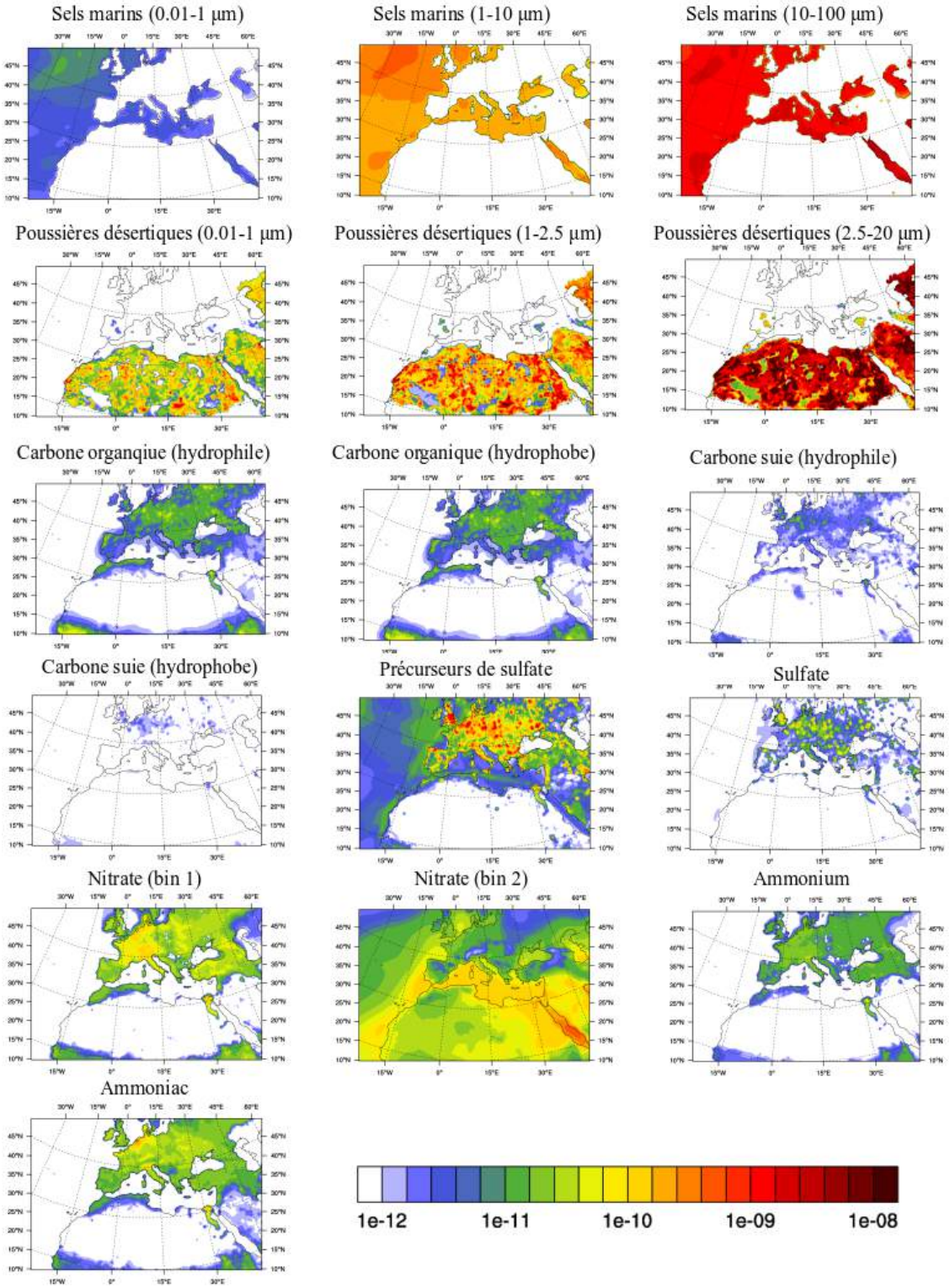

Figure 2.2 – Émission (ou tendances de formation pour les nitrates et l'ammonium) mensuelle moyenne (kg m^{-2} s^{-1}) sur la période 1971-2000 pour chacune des seize variables pronostiques du schéma d'aérosols d'ALADIN-Climat.

présenté par une baisse du flux d'émission dépendant de la vitesse de dépôt sec υ_d. Cette vitesse de dépôt est supposée constante mais est dépendante de la taille de l'aérosol (donc du bin) ainsi que du type de surface considéré (terre, océan, glace sur terre, banquise). Les valeurs des vitesses de dépôt sec sont indiquées dans le tableau 2.1. Certaines espèces d'aérosols présentent les mêmes valeurs de vitesse de dépôt sec quelque soit la surface considérée car il a été montré que celle-ci n'avait que peu d'impact sur ce processus (Rémy et al., 2019). Dans le modèle, le dépôt sec est pris en compte à travers une diminution de la concentration en aérosols dans la première couche du modèle (C, en g m^{-3}) selon le flux :

$$\mathrm{F}_{DD} = \mathrm{C}.\upsilon_d$$

Pour les particules les plus grossières, c'est à dire les particules inclues dans le troisième bin des poussières désertiques et des sels marins, le processus d'élimination des aérosols le plus efficace est la sédimentation, due à la gravité. Les valeurs des vitesses de sédimentation sont indiquées dans le tableau 2.1. La paramétrisation de ce processus dans le modèle est issue de celle de Tompkins (2005) qui est utilisée pour la sédimentation de la glace. Pour une concentration C, une vitesse de dépôt υ_s et ρ étant la densité de l'air, le changement de concentration est :

$$\frac{dC}{dt} = \frac{1}{\rho}\frac{d(\rho\upsilon_s C)}{dz}$$

Concernant le dépôt humide, il est calculé différemment dans le modèle selon si l'élimination des aérosols se fait sous ou dans le nuage. La paramétrisation du dépôt humide qui a lieu dans le nuage est basée sur celle de Giorgi and Chameides (1986). Dans ce cas, le taux de dépôt ($s^{-}1$) est donné par la relation : $\mathrm{W}_I = \beta \mathrm{fD}$ avec D la fraction d'aérosol incluse dans les gouttelettes par dissolution ou lors d'un impact (fixé à 0.7), f la nébulosité et β le taux de conversion de l'eau du nuage en eau de pluie (détaillé dans l'article de Morcrette et al. (2009)). Quant à la paramétrisation du dépôt humide qui a lieu sous le nuage, le taux de dépôt est calculé en prenant en compte l'espace balayé par une goutte de pluie lors de sa chute. Il est donné par :

$$W_B = \frac{3P_r\alpha}{4R_r\rho}$$

Avec P_r le flux de précipitations, R_r la moyenne du rayon des gouttelettes (fixé à 1 mm), ρ la densité de l'eau, et α l'efficacité avec laquelle les aérosols sont collectés par les gouttes de pluie (fixé à 0.001) et les flocons de neige (fixé à 0.01) basé sur l'étude de Pruppacher and Klett (1997). Les valeurs concernant l'efficacité du dépôt humide dans et sous les nuages sont indiquées dans le tableau 2.1. Pour finir,

une paramétrisation a été mis en place en cas de réévaporation, c'est à dire en cas d'évaporation de la goutte de pluie et donc de la remise en suspension de l'aérosol. Celle-ci est détaillée dans l'article de Morcrette et al. (2009).

Propriétés optiques des aérosols

Les propriétés optiques des différents aérosols, qui sont le coefficient d'extinction, le paramètre d'asymétrie et l'albédo de simple diffusion, sont pré-calculées pour 19 longueurs d'onde différentes, allant de 340 à 2130 nm. Ces différentes propriétés optiques ont été calculées avec un code de Mie utilisant l'hypothèse de sphéricité des aérosols (Ackerman and Toon, 1981) et sont dépendantes de l'humidité relative (à l'exception des poussières désertiques et de l'espèce carbone suie hydrophobe). À l'exception des sels marins, douze valeurs d'humidité relative sont utilisées, de 0 à 80% avec une incrémentation de 10% et de 80 à 95% avec une incrémentation de 5%. Dans le cas des sels marins, ce sont quinze valeurs d'humidité relative qui sont utilisées, allant de 0 à 60% avec une incrémentation de 10%, de 60 à à 95% avec une incrémentation de 5%. Ajouté à cela, une dernière valeur d'humidité relative, fixée à 97%, est aussi utilisée. Le Tableau 2.2 présente différentes propriétés optiques comme l'efficacité d'extinction (k_{ext} qui correspond au coefficient d'extinction normalisé par la masse), le paramètre d'asymétrie (g) et l'albédo de simple diffusion (SSA) des différents aérosols à une longueur d'onde de 550 nm pour trois valeurs d'humidité relative (0, 50 et 90%). Ce tableau montre que l'ensemble des aérosols présentent un paramètre d'asymétrie d'une valeur supérieure à 0, ce qui signifie que la diffusion se fait principalement dans le sens de la direction d'incidence. Le Tableau 2.2 montre aussi que, à 550 nm, le carbone suie est l'aérosol le plus absorbant avec un albédo de simple diffusion à 0.32. En revanche, les autres aérosols sont très diffusants avec un albédo de simple diffusion supérieur à 0.9.

Concernant les grandes longueurs d'onde, comme dans la majorité des modèles climatiques, seul les effets d'absorption sont pris en compte (Dufresne et al., 2002). Les poussières désertiques sont les aérosols ayant l'efficacité d'absorption la plus élevée, fixée à 0.10 $m^2\ g^{-1}$ pour 16 longueurs d'onde différentes, allant de 10 à 3000 cm^{-1}. L'efficacité d'absorption des autres aérosols se situe entre 0.01 et 0.03 $m^2\ g^{-1}$ en fonction des différentes longueurs d'onde, à l'exception de celle des particules de carbone suie qui est plus faible (0.002 $m^2\ g^{-1}$ en moyenne).

Pour finir, la quantification du premier effet indirect des aérosols, qui va impacter l'albédo des nuages, se fait par le calcul du nombre de noyaux de condensation (N_{CCN}) qui va ensuite permettre d'obtenir le rayon effectif des gouttelettes nuageuses

	DDbin01	**DDbin02**	**DDbin03**	**SSbin01**	**SSbin02**	**SSbin03**
k_{ext}	2.4	0.9	0.3	2.5 4.0 12.9	0.6 0.9 2.1	0.004 0.006 0.01
g	0.78	0.78	0.78	0.69 0.74 0.79	0.69 0.74 0.79	0.69 0.74 0.79
SSA	0.900	0.900	0.900	0.993 0.996 0.999	0.993 0.996 0.999	0.993 0.996 0.999
	BC	**OM**	**SO_4**	**NO_3bin01**	**NO_3bin02**	**NH_4**
k_{ext}	9.4	3.1 4.8 13.5	4.1 6.6 18.4	5.3 6.6 19.2	0.2 0.4 0.7	7.7 9.9 21.7
g	0.43	0.71 0.74 0.79	0.66 0.70 0.76	0.66 0.70 0.76	0.66 0.70 0.76	0.66 0.70 0.76
SSA	0.32	0.989 0.992 0.997	0.988 0.993 0.998	0.988 0.993 0.998	0.988 0.993 0.998	0.988 0.993 0.998

Table 2.2 – Efficacité d'extinction (k_{ext}, m^2 g^{-1}), paramètre d'asymétrie (g) et albédo de simple diffusion (SSA) des différents aérosols présents dans le schéma d'aérosols TACTIC à 550 nm pour trois valeurs d'humidité relative : 0% (bleu), 50% (rouge) et 90% (vert). Les valeurs concernant les espèces non dépendantes de l'humidité relative (poussières désertiques et carbone suie) sont en noir. DD = poussières désertiques, SS = sels marins, BC = carbone suie, OM = carbone organique, SO_4 = sulfate, NO_3 = nitrate et NH_4 = ammonium.

(r_e). Mathématiquement, le calcul de N_{CCN}, fonction de la masse des aérosols de sulfate, de sels marins et de carbone organique se traduit par :

$$N_{CCN} = 10^{[b + a_{sul} log_{10}(m_{sul}) + a_{ss} log_{10}(m_{ss}) + a_{om} log_{10}(m_{om})]}$$

Avec b, a_{sul}, a_{ss} et a_{om} fixés respectivement à 2.41, 0.50, 0.05 et 0.13, comme indiqué dans Menon et al. (2002) et m_x la concentration massique des aérosols de sulfate, de carbone organique et de sel marin en $\mu g\, m^{-3}$. Le rayon effectif des gouttelettes nuageuses, borné entre 2 et 24 µm et inversement proportionnel au nombre de noyaux de condensation, peut ensuite être calculé grâce à une formule équivalente à l'équation 2 présentée dans l'étude de Quaas and Boucher (2005). Il est important de noter que dans ce travail de thèse, seul le premier effet indirect des aérosols de sulfate, de carbone organique hydrophile et du premier bin des sels marins est pris en compte.

Récapitulatif

La Figure 2.3 permet de récapituler les différents processus ainsi que les différentes espèces inclues dans le schéma d'aérosols TACTIC. Ce schéma permet d'estimer différents termes, comme les concentrations, l'extinction dans le visible/proche infrarouge, les flux de dépôts (sec/humide) pour chaque type d'aérosol à chaque pas de temps de la simulation, en cohérence avec la physique du modèle. Ce schéma d'aérosols, basé sur celui présent dans C-IFS-AER (Morcrette et al., 2009), a donc été amélioré depuis ses début notamment au niveau de l'émission des aérosols naturels. En revanche, au début de ce travail de thèse, les aérosols de nitrate et d'ammonium n'étaient pas encore inclus dans ce schéma d'aérosols. Leur implémentation dans le schéma TACTIC sera résumée dans le paragraphe suivant et présentée en détail dans le paragraphe 2.3 (Drugé et al., 2019).

Pour finir, les deux méthodes de représentation des aérosols décrites précédemment peuvent être utilisées en fonction du type d'étude envisagé. Pour des études sur le climat passé, la première méthode avec des climatologies d'épaisseur optique est privilégiée afin d'obtenir une évolution réaliste des aérosols. En revanche, dans le cas d'études sur le climat futur ou sur la variabilité haute fréquence des aérosols, la deuxième méthode, via le schéma d'aérosols, est recommandée. Dans la suite de ce travail nous nous intéresserons à l'effet des aérosols sur le climat futur de la région méditerranéenne, nous utiliserons donc la deuxième méthode mentionnée ci-dessus.

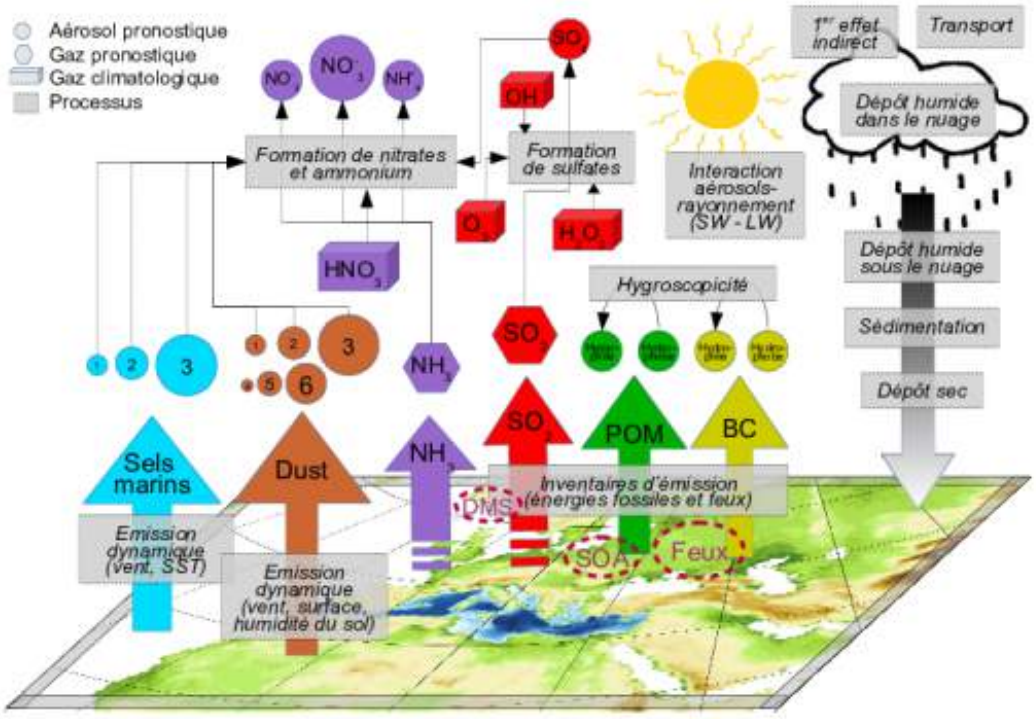

Figure 2.3 – Schéma des différentes espèces et des processus inclus dans le schéma interactif d'aérosols TACTIC.

2.2 Résumé de l'article

La région méditerranéenne est située au carrefour de nombreuses sources d'aérosols comme le désert du Sahara, la mer Méditerranée mais aussi les nombreuses zones industrialisées comme la vallée du Pô. Parmi ces différents aérosols les nitrates vont devenir, à l'échelle globale, le principal contributeur à l'AOD anthropique d'ici la fin du siècle suite à la baisse de la concentration des particules de sulfates (Hauglustaine et al., 2014). En effet, cette étude montre une contribution actuelle des aérosols de nitrate à l'AOD anthropique de 13%. À la fin du siècle, elle est estimée entre 46% avec le scénario RCP 6.0 et 64% avec le scénario RCP 2.6. Il est donc important que ces particules de nitrate soient prises en compte dans les différents modèles climatiques qui s'intéressent à l'impact des aérosols sur le climat Méditerranéen.

Afin d'avoir un schéma d'aérosols plus complet et plus réaliste, le premier travail de cette thèse a donc été d'implémenter les aérosols de nitrate et d'ammonium dans le schéma interactif d'aérosols TACTIC du modèle régional ALADIN-Climat qui prenait déjà en compte les poussières désertiques, les sels marins, les sulfates, la carbone organique ainsi que le carbone suie. Ce nouveau module d'aérosols a été adapté à partir de celui implémenté dans le modèle global INCA (Interaction with Chemistry and Aerosols, Hauglustaine et al. 2014). Un bin pour l'ammonium et

deux bins pour les nitrates ont été ajoutés dans le schéma d'aérosols, dont un bin fin essentiellement composé de nitrates issus de réactions gaz-particule et un bin grossier comprenant les nitrates formés par absorption à partir des poussières désertiques ou des sels marins. Quant aux précurseurs de ces aérosols, comme l'ammoniac et l'acide nitrique, plusieurs tests ont été effectués afin d'avoir la climatologie la plus réaliste possible. Concernant l'ammoniac, il est issu des données CMIP6, auxquelles nous avons appliqué un cycle saisonnier basé sur les émissions MACCity. La climatologie d'acide nitrique provient quant à elle de la réanalyse CAMS (Inness et al., 2019). Ici aussi, afin d'avoir la climatologie la plus réaliste possible, le cycle annuel a été modifié afin de suivre celui présenté par Kasper and Puxbaum (1998), qui est basé sur des observations.

Ce nouveau schéma d'aérosols a ensuite été évalué sur la région Euro-Méditerranéenne durant la période 1979-2016 en utilisant deux simulations jumelles, l'une avec et l'autre sans les aérosols de nitrate et d'ammonium. Cette évaluation a été réalisée à l'échelle locale et régionale, à partir de stations en surface comme les stations EMEP ou AERONET mais aussi à partir de mesures satellites notamment celles de MODIS et MISR. Les résultats ont montré que, malgré une surestimation sur l'Italie ou l'Europe de l'est, le modèle était capable de bien représenter les concentrations massiques de nitrate en surface, avec des maximums sur le Benelux et la vallée du Pô. Cette étude a également montré, malgré certains biais associés au cycle annuel des précurseurs d'aérosols de nitrate et d'ammonium, tels que l'ammoniac et l'acide nitrique, que ces particules pouvaient contribuer à hauteur de 40 % à l'AOD totale (à 550 nm) sur cette région.

Suite à l'évaluation de ce nouveau schéma d'aérosols, nous nous sommes intéressés à l'impact climatique des particules de nitrate et d'ammonium sur le climat présent de la région méditerranéenne. Pour la première fois à notre connaissance, il a été montré qu'à partir de l'année 2005, sur l'Europe, le forçage radiatif direct exercé dans le spectre solaire en surface et au sommet de l'atmosphère des aérosols de nitrate et d'ammonium était supérieur à celui des sulfates et du carbone organique. Pour finir, il a aussi été mis en évidence que ces aérosols étaient notamment responsable d'un refroidissement d'environ 0.2°C sur l'Europe en été, avec un maximum allant jusqu'à 0.4°C sur la vallée du Pô.

2.3 Simulation des aérosols de nitrate et d'ammonium sur la région méditerranéenne et étude de leurs effets radiatifs et climatiques sur la période 1979-2016 (article)

Model simulation of ammonium and nitrate aerosols distribution in the Euro-Mediterranean region and their radiative and climatic effects over 1979–2016. **Thomas Drugé**, Pierre Nabat, Marc Mallet, and Samuel Somot, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 1–25, doi :10.5194/acp-19-1-2019, 2019.

Atmos. Chem. Phys., 19, 1–25, 2019
https://doi.org/10.5194/acp-19-1-2019
© Author(s) 2019. This work is distributed under
the Creative Commons Attribution 4.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics
Open Access
EGU

Model simulation of ammonium and nitrate aerosols distribution in the Euro-Mediterranean region and their radiative and climatic effects over 1979–2016

Thomas Drugé, Pierre Nabat, Marc Mallet, and Samuel Somot

CNRM, Université de Toulouse, Météo-France, CNRS, Toulouse, France

Correspondence: Thomas Drugé (thomas.druge@meteo.fr)

Received: 15 October 2018 – Discussion started: 11 December 2018
Revised: 4 March 2019 – Accepted: 6 March 2019 – Published:

Abstract. Aerosols play an important role in Europe and the Mediterranean area where different sources of natural and anthropogenic particles are present. Among them ammonium and nitrate (A&N) aerosols may have a growing impact on regional climate. In this study, their representation in coarse and fine modes has been introduced in the prognostic aerosol scheme of the ALADIN-Climate regional model. This new aerosol scheme is evaluated over Europe and the Mediterranean Sea, using two twin simulations over the period 1979–2016 with and without A&N aerosols. This evaluation is performed at local and regional scales, using surface stations and satellite measurements. Despite an overestimate of the surface nitrate concentration, the model is able to reproduce its spatial pattern including local maxima (Benelux, Po Valley). Concerning the simulated aerosol optical depth (AOD), the inclusion of A&N aerosols significantly reduces the model bias compared to both AERONET stations and satellite data. Our results indicate that A&N aerosols can contribute up to 40 % of the total AOD_{550} over Europe, with an average of 0.07 (550 nm) over the period 2001–2016. Sensitivity studies suggest that biases still present are related to uncertainties associated with the annual cycle of A&N aerosol precursors (ammonia and nitric acid). The decrease in sulfate aerosol production over Europe since 1980 produces more free ammonia in the atmosphere leading to an increase in A&N concentrations over the studied period. Analyses of the different aerosol trends have shown for the first time to our knowledge that, since 2005 over Europe, A&N AOD_{550} and A&N shortwave (SW) direct radiative forcing (DRF) are found to be higher than sulfate and organics, making these the species with the highest AOD and the highest DRF. On average over the period 1979–2016, the A&N DRF is found to be about $-1.7\,W\,m^{-2}$ at the surface and $-1.4\,W\,m^{-2}$ at the top of the atmosphere (TOA) in all sky conditions over Europe, with regional maxima located at the surface over the Po Valley ($-5\,W\,m^{-2}$). Finally, the dimming effect of A&N aerosols is responsible for a cooling of about $-0.2°$ C over Europe (summer), with a maximum of $-0.4\,°C$ over the Po Valley. Concerning precipitation, no significant impact of A&N aerosols has been found.

1 Introduction

Aerosols are known to have an important role in the regional and global climate system because they affect cloud properties, the radiative balance and the hydrological cycle (Forster et al., 2007; Tang et al., 2018). They modify the radiative budget of the Earth through different effects, which are the direct, semi-direct and indirect effects. The direct radiative effect corresponds to the absorption and scattering of the solar incident radiation (Mitchell, 1971; Coakley Jr. et al., 1983) that generally produce a cooling effect both at the surface and at the top of the atmosphere (TOA). The consequences of the direct radiative effect on the atmospheric dynamics is defined as the semi-direct effect (Hansen et al., 1997; Allen and Sherwood, 2010). Finally, the indirect effect represents the modification of the microphysical cloud properties, which has consequences on cloud albedo and lifetime in particular (Twomey, 1977; Albrecht, 1989; Lohmann and Feichter, 2005).

Over Europe, among the different anthropogenic aerosol species, atmospheric nitrate particles represent approximatively 10 %–20 % of the total dry aerosol mass at the end

Published by Copernicus Publications on behalf of the European Geosciences Union.

of the 20th century (Putaud et al., 2004; Schaap et al., 2004). Ammonium and nitrate (A&N) aerosols (NH_4NO_3) are mainly formed by reactions in the atmosphere from ammonia (NH_3) and nitric acid (HNO_3), a photochemical product of nitric oxide (NO_x) oxidation (Hauglustaine et al., 2014). The most important sources of ammonia are agricultural excreta from domestic and wild animals, as well as synthetic fertilizers (Bouwman et al., 1997; Paulot et al., 2014). Nitric acid has anthropogenic and natural sources that come mainly from fossil fuel combustion (40 %), land use practices (15 %) and soil emissions (10 %) (Olivier et al., 1998). The NH_3, present in the troposphere is the main neutralizing agent for the sulfuric acid (H_2SO_4) and nitric acid (HNO_3) (Hauglustaine et al., 2014). Firstly, the NH_3 will react instantaneously and irreversibly with H_2SO_4 to produce ammonium sulfate ($(NH_4)HSO_4$) (Hauglustaine et al., 2014). The less abundant of the two species is the only limitation. This reaction takes priority over ammonium nitrate formation due to the low vapour pressure of sulfuric acid. Secondly, if all NH_3 is consumed by the previous reactions with H_2SO_4, no ammonium nitrate is formed. If there is still some NH_3, it will neutralize the HNO_3 to create NH_4NO_3. After the small particles reach equilibrium, coarse particles of NH_4NO_3 are produced by heterogeneous uptake of HNO_3 on calcite (part of mineral dust) and sea-salt particles (Zhuang et al., 1999; Jacobson, 1999; Jordan et al., 2003; Hauglustaine et al., 2014).

Because of the difficulty to quantify the A&N effects and the high variability of these aerosols, it is difficult to simulate their climatic effects (Bian et al., 2017). Several global climate models (GCMs) have now implemented the formation of A&N aerosols (Bian et al., 2017) to quantify their impact on the present-day climate. In that context, eight global climate models from the AeroCom (Aerosol Comparisons between Observations and Models) phase II project have quantified a present-day direct radiative forcing of nitrate aerosols, at the TOA, ranging from -0.12 to $-0.02\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ with a mean of $-0.08 \pm 0.04\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ (Myhre et al., 2013). In parallel, the different climate models involved in the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) indicate a present-day direct radiative forcing ranging from -0.03 to $-0.41\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ with a mean of $-0.19 \pm 0.18\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ (Shindell et al., 2013). Concerning the nitrate-related aerosol optical depth (AOD), several studies have shown a global annual estimation ranging from 0.0023 to 0.025 at 550 nm (Bellouin et al., 2011; Shindell et al., 2013; Myhre et al., 2013; Hauglustaine et al., 2014). Many reasons could explain the significant diversity in the global simulations of nitrate concentrations among climate models. First, nitrate aerosols are involved in a very complicated chemistry and the system sometimes cannot even be solved using the thermodynamic equilibrium approach when coarse mode, from dust and sea-salt particles, is present. Furthermore, nitrate simulation also depends on temperature, relative humidity and on various precursors such as NH_3, HNO_3, dust and sea salt. Indeed, concerning dust, recent studies indicate that the tropospheric burden of nitrate aerosol increases by 44 % when interactions of nitrate with mineral dust are considered (Karydis et al., 2017). Finally, the different global climate models account for impacts on nitrate formation of dust and sea salt very differently (Bian et al., 2017).

By the end of the twenty-first century, some climate scenarios project an increase in NH_3 emissions (O'Neill et al., 2016) that could offset some of the decline in SO_2 and NO_x emissions for the anthropogenic aerosol radiative forcing (Hauglustaine et al., 2014). With the reduction in SO_2 emissions, less atmospheric NH_3 is required to neutralize the strong acid H_2SO_4. The excess of NH_3 will form A&N aerosols so that their importance is likely to increase over this century. Several global models predict an overall increase in atmospheric nitrate burden during this century based on current available emission inventories (Bauer et al., 2007, 2016; Hauglustaine et al., 2014; Li et al., 2014). Finally, NH_4NO_3 will probably become the largest contributor to anthropogenic AOD by the end of this century (Hauglustaine et al., 2014). Nevertheless, the predicted trend in surface nitrate concentration is mixed. Indeed, despite a global increase in surface nitrate concentration, some studies estimate a decrease over some regional urban areas, as in North America or in the Mediterranean region, due to the decline in NO_x emissions (Bauer et al., 2016; Hauglustaine et al., 2014; Trail et al., 2014).

The Mediterranean region, with an alternating climate between hot and dry summers and mild and wet winters, is very sensitive to climate change (Nabat et al., 2016). Furthermore, this region is a crossroads of air masses carrying natural (dust, sea salt, etc.) and anthropogenic (black carbon, sulfate, nitrate, etc.) particles. Indeed, these aerosols come from different sources such as the Sahara desert, industries, European cities, forest fires and even the Mediterranean Sea itself (Lelieveld et al., 2002; Nabat et al., 2013). This region is therefore very interesting to study the role of the different aerosols on the climate. However, the issue of the aerosol representation in regional climate models (RCMs) has only rarely been discussed, particularly in this region, although this scale is the most adapted to the spatio-temporal variability of these aerosols (Nabat et al., 2015a). In addition, the majority of regional climate simulations carried out at the Mediterranean basin scale used a very simplified representation of aerosols, not taking A&N aerosols into account (Nabat et al., 2016).

The objective of this study is to present the implementation and the evaluation of a simplified A&N module in the TACTIC aerosol scheme (Michou et al., 2015; Nabat et al., 2015a) used in the ALADIN regional climate model and to assess the direct radiative effect and climatic impact of the A&N aerosols over the Euro-Mediterranean region. Note that the ALADIN-Climate model is not very suitable for studying the impact of aerosols on particulate air quality (bulk approach for anthropogenic aerosols). After a description of the

new aerosol scheme in Sects. 2 and 3, an evaluation of this scheme will be presented in Sect. 4. The radiative and climatic effects of A&N aerosols are studied in Sect. 5 before the concluding remarks in Sect. 6.

2 Model description

2.1 The ALADIN-Climate regional climate model

ALADIN-Climate is a regional climate model developed at CNRM used in the present study over the Euro-Mediterranean region. It includes an interactive aerosol scheme described thereafter, and the SURFEX land surface module (Masson et al., 2013) with the ISBA scheme (Noilhan and Mahfouf, 1996). Land surface hydrology and river flow are simulated by the TRIP model (Decharme et al., 2010).

ALADIN-Climate is used here in its version 6.2 similar to in Daniel et al. (2018). It is a bi-spectral, hydrostatic limited-area regional climate model with a semi-Lagrangian advection and a semi-implicit scheme. ALADIN-Climate has a 50 km horizontal resolution and 91 vertical levels. As the regional domain is not periodic, an extension zone used only for Fourier transforms has been added in order to achieve the bi-periodization. ALADIN-Climate uses the FMR shortwave (SW) radiation scheme (Fouquart and Bonnel, 1980; Morcrette et al., 2008) with six spectral bands, and a longwave radiation scheme (RRTM, Rapid Radiative Transfer Model) presented in Mlawer et al. (1997).

The Euro-Mediterranean domain used for this study is presented in Fig. 1. It includes the official Med-CORDEX domain and has been extended to take into account the main aerosol sources potentially transported over the Euro-Mediterranean region. Indeed, the area is large enough to integrate the two main sources of dust, which are the Sahara (more precisely the Bodélé and the area covering eastern Mauritania, western Mali and southern Algeria) and the largest part of the Arabian Peninsula (Moulin et al., 1998; Prospero et al., 2002). The domain represents 128 × 180 points including 11 points (north and east) for a bi-periodization zone and 8 points (on each side) for the relaxation zone. Two regions have been defined in Fig. 1 (Europe and the Mediterranean Sea) for the needs of this study.

In the ALADIN-Climate model, a prognostic aerosol scheme named TACTIC (Tropospheric Aerosols for ClimaTe In CNRM-CM) has been included as presented in Michou et al. (2015) and Nabat et al. (2015a). This aerosol scheme, originally adapted from the GEMS/MACC aerosol scheme (Morcrette et al., 2009), includes up to now five aerosol types (desert dust, sea salt, black carbon, organic matter and sulfate). These aerosols can be interactively emitted from the surface (dust, sea salt) or from external emission datasets (black carbon, organic matter and sulfate precursors from anthropogenic and/or biomass burning emission). In the present

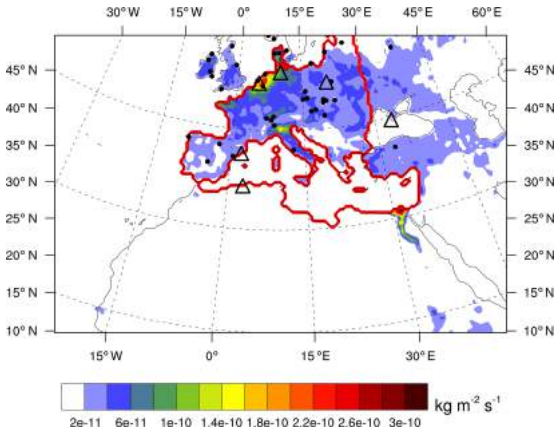

Figure 1. NH_3 emissions (CMIP6) over the period 1979–2016. The inner model domain represents 101 × 153 points (without the bi-periodization and the relaxation zone). The different zones studied (Europe, Mediterranean) are represented in red. The observation data are symbolized by a black dot (EMEP stations) and by a black triangle (AERONET stations). The projection type used here is the Lambert conformal projection.

simulations, aerosols are not included in the lateral boundary forcing because the domain is supposed to be large enough to include all the sources of aerosols affecting the Mediterranean region.

The aerosol scheme includes 12 tracers, including 11 particulate tracers and sulfate gaseous precursors (SO_2). For aerosol particles, 3 size bins are used for sea salt (0.03 to 0.5, 0.5 to 5 and 5 to 20 µm) and for dust (0.01 to 1.0, 1.0 to 2.5 and 2.5 to 20 µm), 2 bins (hydrophilic and hydrophobic particles) for organics and for black carbon, and 1 size bin for sulfate particles and for sulfate precursors (SO_2). All these aerosols are transported in the atmosphere and submitted to the dry and wet (in and below clouds) deposition. TACTIC takes into account their interactions with radiation (direct effect for all species) and the cloud albedo (first indirect effect for sulfate, organic matter and sea salt). Aerosols do not interact with cloud microphysics (no second indirect effect). The radiative properties of each species, and notably those used as input for the radiative transfer scheme (mass extinction efficiencies, single scattering albedo and the asymmetry factor) at different wavelengths and different relative humidity are set for each aerosol type following Nabat et al. (2013). Moreover, it is worth underlining that the TACTIC aerosol scheme has been designed to perform multi-decadal simulations at reasonable computation cost.

2.2 Implementation of the ammonium and nitrate module in TACTIC

An A&N module has been recently implemented in TACTIC. This scheme was adapted from the one implemented in the INCA (Interaction with Chemistry and Aerosols) global model (Hauglustaine et al., 2014). Ammonium (NH_4) and nitrate (NO_3) particles are formed through gas-to-particle reactions involving the gaseous precursors sulfuric acid (H_2SO_4), ammonia (NH_3) and nitric acid (HNO_3). A sulfate–nitrate–ammonium thermodynamic equilibrium seems to be a reasonable assumption for a regional climate model. Nitrate particles can also be formed by heterogeneous uptake of nitric acid over calcite particles ($CaCO_3$, component of dust) and sea salt (NaCl). A&N particles will therefore depend on their precursors but also on sulfates, dusts and sea salt as described below.

Two size bins for nitrates (fine and coarse modes) and one size bin for ammonium particles were added to the TACTIC aerosol scheme. The chemical formation of A&N particles by gas-to-particle reactions goes into the accumulation mode (fine mode, 0.03 to 0.9 µm). Particles from heterogeneous chemistry correspond to the coarse mode (0.9 to 2.0 µm). For the moment, only the direct effect is taken into account for A&N aerosols; the indirect effect will be taken into account in a future version. The aerosol scheme also contains a new passive tracer for NH_3. These new species are subject to the same transport and mixing processes as the other tracers in the ALADIN-Climate model.

It has to be noted that organic nitrates, which might significantly contribute to the fine nitrate aerosol (Kiendler-Scharr et al., 2016), are not included in the model.

2.2.1 HNO_3 and NH_3 auxiliary data

As no full chemistry module is available in ALADIN for reasons of numeric cost, the climatology of HNO_3 used in this study is taken from the CAMS Reanalysis (Flemming et al., 2017). A monthly climatology was built over the period 2003–2007 and the annual cycle is taken from the nitric acid climatology of Kasper and Puxbaum (1998), based on observations, in order to represent the annual cycle as well as possible. The study of Kasper and Puxbaum (1998) started in November 1991 and covers two annual cycles until November 1993. It is assumed that the nitric acid annual cycle reported in this study is representative of the study area as it was conducted at the Sonnblick Observatory (SBO), which is a high-alpine site in the centre of Europe, and hence relatively distant from pollution sources. To apply the annual cycle of Kasper and Puxbaum (1998) to the HNO_3 climatology, we calculated the annual average of HNO_3 from CAMS over the period 2003–2007; then we applied to it the new annual cycle, month by month, proportionally to the monthly averages of Kasper and Puxbaum (1998). The HNO_3 annual cycle used in this work is presented in Fig. 3 (solid line).

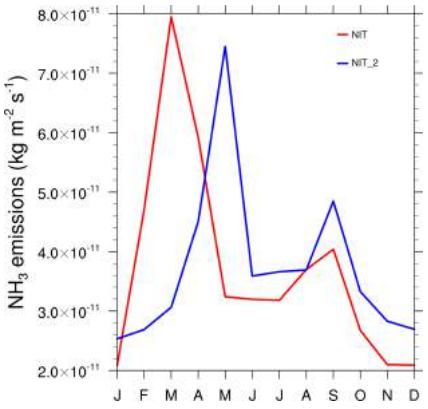

Figure 2. 1979–2016 monthly means of NH_3 emissions ($kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) over Europe as defined in Fig. 1, used for NIT (red, based on MACCity) and NIT_2 (blue, from CMIP6) simulations. The annual total is equal in the two versions ($4.5 \times 10^{-10}\,kg\,m^{-2}\,s^{-1}$).

The HNO_3 dataset is assumed constant, without change from year to year in its annual cycle over the period 1979–2016. Furthermore, there is not a day–night cycle, which can influences the HNO_3 content because of a specific tropospheric chemistry during the night (Dimitroulopoulou and Marsh, 1997), in the HNO_3 climatology used.

The NH_3 used in this work is taken from CMIP6 data and its annual cycle was defined using the MACCity emissions dataset. MACCity emissions have been provided in the frame of two projects (MACC and CityZen) funded by the European Commission. To apply the annual cycle of MACCity data to the NH_3 emissions dataset, we calculated the annual average of NH_3 for each year over the period 1979–2016, then we applied to it the new annual cycle, month by month for each year and at each grid point, proportionally to the monthly averages of MACCity. The NH_3 annual cycle used in this work is presented in Fig. 2 (red line). Contrary to the HNO_3, the NH_3 dataset has a year-to-year variability throughout the 1979–2016 period.

Different sensitivity studies (presented in Sect. 3.2), mostly focused on changes in NH_3 emissions (NIT_2, with a different NH_3 annual cycle) and HNO_3 climatology (NIT_3, with a flat HNO_3 annual cycle), will be used in this work.

2.2.2 Gas-to-particle reactions

A specific routine presented here aims at equilibrating the gaseous and particle forms of the nitrate and ammonium species. The following equations are based on the study of Mozurkewich (1993). More details about this dependence can also be found in Seinfeld et al. (1998).

Firstly, the NH_3 present in the troposphere will react with H_2SO_4 to produce ammonium sulfate ($(NH_4)HSO_4$). Am-

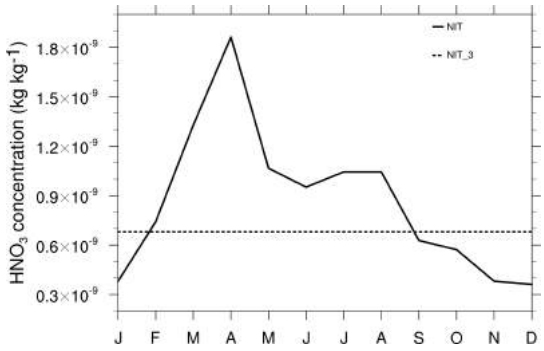

Figure 3. 2003–2007 monthly mean of HNO_3 surface concentration over Europe (as defined in Fig. 1).

monium sulfate aerosols are not affected by ammonium nitrate production because the formation of ammonium sulfate takes priority over ammonium nitrate formation due to the low vapour pressure of sulfuric acid (Hauglustaine et al., 2014). The reaction for the ammonium sulfate formation will depend on the relative ammonia and sulfate concentrations (Metzger et al., 2002). The total ammonia (T_A), total sulfate (T_S) and total nitrate (T_N) concentrations ($kg\,m^{-3}$) are defined as follows:

$$T_A = [NH_3] + [NH_4^+], \quad (1)$$

$$T_S = [SO_4^{2-}], \quad (2)$$

$$T_N = [HNO_3] + [NO_3^-]. \quad (3)$$

Ammonium sulfate formation reactions will be different in very sulfate-rich ($T_S > T_A$), sulfate-rich ($T_S < T_A < 2T_S$) and ammonia-rich $T_A > 2T_S$) conditions.

Secondly, if all NH_3 is consumed by the ammonium sulfate formation, no A&N aerosols are formed but if there is still some NH_3, it will neutralize the HNO_3. K_p, the equilibrium constant of the reaction of A&N formation, is very dependent of relative humidity (RH) and temperature as detailed below. Its formulation is given by the following relations:

$$K_p = \begin{cases} \exp[118.87 - 24\,084/T - 6.025\ln(T)] & \text{if RH} < \text{DRH} \\ \exp[118.87 - 24\,084/T - 6.025\ln(T)] & \text{if RH} \geq \text{DRH} \\ (p1 - p2\text{RH}_1 + p3\text{RH}_1^2)\text{RH}_1^{1.75}, & \end{cases} \quad (4)$$

where T is the air temperature (K), and DRH is the deliquescence relative humidity (DRH, %) calculated by

$$\text{DRH} = \exp(723.7/T + 1.6954), \quad (5)$$

with $\text{RH}_1 = 1 - \text{RH}/100$ and $p1$, $p2$ and $p3$ provided by

$$p1 = \exp[-135.94 + 8763/T + 19.12\ln(T)], \quad (6)$$

$$p2 = \exp[-122.65 + 9969/T + 16.22\ln(T)], \quad (7)$$

$$p3 = \exp[-182.61 + 13875/T + 24.46\ln(T)]. \quad (8)$$

The ammonia available to neutralize the HNO_3 is defined as the total ammonia minus the ammonia required to neutralize the available sulfate:

$$T_A^* = T_A - \Gamma T_S. \quad (9)$$

With sulfate state $\Gamma = 1$ in very sulfate-rich conditions, 1.5 in sulfate rich conditions and 2 in ammonia rich conditions. If $T_N T_A^* > K_p$, the A&N concentration ($kg\,m^{-3}$) is calculated by the following:

$$[NH_4NO_3] = \frac{1}{2}\left[T_A^* + T_N - \sqrt{(T_A^* + T_N)^2 - 4(T_N T_A^* - K_p)}\right]. \quad (10)$$

If $T_N T_A^* \leq K_p$, A&N dissociate and $[NH_4NO_3] = 0$. The concentration of NH_3 ($kg\,m^{-3}$) at equilibrium can also be computed with this formula. The NH_4 concentration ($kg\,m^{-3}$) is calculated by the following:

$$[NH_4^+] = T_A - [NH_3], \quad (11)$$

The formation of the accumulation mode, by gas-to-particle reactions, is faster than the coarse mode because the equilibrium is reached faster by small particles.

This equilibrium leads to the formation of nitrate and ammonium aerosols. Note that this routine is run twice in the TACTIC scheme. Indeed, the first call can be seen as the way to remove the quantity of HNO_3 used to form nitrate and ammonium particles in the previous time step, and the second call is the method to form them in the present time step. This is coherent with the fact that the HNO_3 comes from the CAMS reanalysis which has no nitrate particles.

2.2.3 Heterogeneous chemistry

After the small particles are in equilibrium, the formation of coarse particles by reaction of HNO_3 with calcite (part of mineral dust) and sea-salt particles occurs.

A standard first-order reactive uptake parametrization is used to represent the uptake of nitric acid on dust and sea-salt particles and therefore the formation of coarse nitrate particles (Dentener and Crutzen, 1993; Bauer et al., 2004; Fairlie et al., 2010). The loss of HNO_3 from the gas phase is represented by the following rate constant k calculated by the following:

$$k = 4\pi\left(\frac{\text{MMD}}{2}\right)^2 N\left(\frac{\text{MMD}}{2D_g} + \frac{4}{\vartheta\gamma}\right)^{-1} \quad (12)$$

N is the number density of dust or sea-salt particles of radius $[r, r + dr]$, MMD is the mass median diameter, D_g is the molecular diffusion coefficient that is pressure- and temperature-dependent, ϑ corresponds to the mean molecular speed that is also temperature-dependent and γ is the reactive uptake coefficient.

One of the limitations of this scheme is the lack of dependence of the uptake coefficient on the aerosol chemical

composition, which is not available in ALADIN-Climate. To compensate for that, a Ca^{2+} limitation for the uptake of HNO_3 on dust is introduced. Based on dust source maps published by Claquin et al. (1999), we make the assumption that Ca^{2+} represents 5 % of total dust mass. Another limitation is the dust parametrization. Indeed, the ALADIN-Climate model only uses three dust bins (0.01 to 1.0, 1.0 to 2.5 and 2.5 to 20 µm) to keep a relatively low computational cost. Foret et al. (2006) suggests that dust size should range from 0.09 to 63 µm with at least eight size bins for a good representation of dust. This limitation must be kept in mind when studying the results. No alkalinity limitation is taken into account for sea-salt particles.

2.2.4 Aerosol properties for A&N

The optical properties used as input for SW radiative transfer calculations of A&N particles (0.18–4.0 µm) have been computed using a Mie code (Toon and Ackerman, 1981). As such aerosols are known to be hydrophilic (Tang, 1979), their sizes, density and optical properties are dependent on ambient (grid-box mean) relative humidity (Hauglustaine et al., 2014). In the ALADIN-Climate model, values of the mass extinction efficiencies, asymmetry parameter and single scattering albedo are tabulated for 12 values of relative humidities: from 0 % to 80 % (10 % increments) and from 80 % to 100 % (5 % increments). The values of hygroscopic growth factor and optical properties for the fine mode of nitrates are the same as those used in GLOMAP (Manktelow et al., 2010). For coarse-mode nitrate, the optical properties are taken from Moffet et al. (2008) and the hygroscopic growth from Gibson et al. (2006). For ammonium aerosols, optical properties used for sulfate are adapted, using a different molar mass (NH_4 against $NH_4(SO_4)^2$ for sulfate). For computations of A&N particles of AOD_{550} to be compared with remote sensing data, we use mass extinction efficiencies ($m^2\ g^{-1}$) as a function of the relative humidity in each model layer. Values for ammonium aerosols are comprised of between 4.3 $m^2\ g^{-1}$ (dry state) and 34.9 $m^2\ g^{-1}$ (with RH = 95 %). For fine (coarse) nitrates, values are comprised between 4.7 $m^2\ g^{-1}$ (dry state) and 34.2 $m^2\ g^{-1}$ (with RH = 95 %) (between 0.19 and 0.91).

For the fine mode of A&N, a deposition velocity of 0.15 $cm\ s^{-1}$, close to the sulfate deposition velocity already used in the model, is set over all surfaces (ocean, sea ice, land and land ice) for the dry deposition. For the coarse mode of nitrate, the dry deposition is fixed at 1.5 $cm\ s^{-1}$, which is close to the values used for coarse dust and sea salt in the model. Sulfate, dust and sea-salt deposition values are detailed in Michou et al. (2015). In ALADIN-Climate, NH_3 has the same dry deposition velocity value as sulfur dioxide (between 0.1 and 1.5 $cm\ s^{-1}$ according to the surfaces). The sedimentation is also applied for the coarse-mode nitrate (0.13 $cm\ s^{-1}$). In terms of scavenging, the two bins of nitrate and ammonium have an efficiency for in-cloud scavenging of 0.8.

3 Methodology

3.1 Observations

In this study, different datasets have been used to evaluate the ability of the ALADIN-Climate model at reproducing the A&N concentrations at the surface as well as the total AOD, before investigating the radiative and climatic impacts in present-day conditions. In that context, two monthly satellite datasets have been used to provide a regional estimate of the total AOD_{550}.

Firstly, the MODerate resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS, collection 6.1, 1° resolution; Tanré et al., 1997; Sayer et al., 2014) is used. MODIS is a 36-band polar orbiting radiometer aboard both EOS Aqua and Terra (both separately used in this work), with equatorial crossing times of about 10:30 and 13:30 UTC, respectively. The MODIS aerosol products are generated from different well-known algorithms, including the Dark Target (DT) algorithms over both the oceans and land and the Deep Blue (DB) algorithm over only land (Kaufman et al., 1997). In this work, the combined DT and DB aerosol product is used. The DT algorithm has an uncertainty in AOD at 550 nm of approximately ± 0.05 over land and $+0.04/-0.02$ over ocean. The DB algorithm has an uncertainty of approximately ± 0.03 (Georgoulias et al., 2016). MODIS Terra covers the 2001–2016 period and MODIS Aqua the 2003–2016 period.

Secondly, the Multiangle Imaging SpectroRadiometer (MISR, Level 3, 1° resolution; Kahn and Gaitley, 2015) has been used to provide a regional estimate of the total AOD_{550}. MISR is a polar orbiting instrument aboard EOS Terra. The MISR aerosol product provides aerosol distributions over both land and oceans. The MISR dayside equator crossing is at about 10:30 a.m. local time. It has an uncertainty in AOD at 550 nm of approximately ± 0.05 (Kahn et al., 2010). MISR dataset covers the 2001–2016 period. Both satellites (MODIS and MISR) are available at the NASA Earthdata portal.

In parallel, the measurements obtained from the AErosol RObotic NETwork (AERONET) network provide local column-integrated aerosol properties like the total AOD at different wavelengths (Holben et al., 2001). Six stations (Fig. 1, black triangles) with a long series of data (at least 5 years) were chosen to best represent the domain used: three in the north of Europe in Cabauw, Hamburg and Belsk (Netherlands, Germany and Poland), one in the south in Barcelona (Spain), one in the east in Sevastopol (Crimea) and one in northern Africa in Blida (Algeria). These stations are detailed in Table 1. These sun-photometer observations provide high-quality data. Version 2, Level 2 AOD data have been downloaded from the AERONET website

Table 1. Station name, location, altitude and number of months available over the observation period (2003–2012) of the six AERONET stations.

Station	Location	Altitude (m)	Number of months available over the observation period (2003–2012)
Cabauw (Netherlands)	51.971°, 4.927°	−1	89
Hamburg (Germany)	53.568°, 9.973°	120	77
Barcelona (Spain)	41.389°, 2.112°	125	88
Sevastopol (Crimea)	44.616°, 33.517°	80	82
Blida (Algeria)	36.508°, 2.881°	230	85
Belsk (Poland)	51.837°, 20.792°	190	105

(https://aeronet.gsfc.nasa.gov, last access: 19 March 2019). For comparison to our model results, all AOD data have been calculated at 550 nm using the Ångström coefficient between the closest available upper and lower wavelengths, and we made monthly averaging of original AERONET surface observations. The AOD uncertainty in version 2 (Level 2) AERONET data is ± 0.01 in the visible (Eck et al., 1999).

Satellite and AERONET AOD data were obtained during daytime only (even at a given hour for satellites). On the other hand, our AOD averages from our simulations were obtained over the whole day (night plus day), which is therefore a source of uncertainty to take into account.

Concerning the evaluation of the A&N surface concentration, the ground-based station network EMEP (The European Monitoring and Evaluation Programme), using standardized monitoring methods and analytical techniques over Europe, has been used (Tørseth et al., 2012). Such surface in situ observations are very useful to evaluate regional climate models as the EMEP stations are located in remote areas representing a larger region, avoiding influences and contamination from local sources (Bian et al., 2017). Contrary to AOD, which is related to the total aerosol column load, they enable us to evaluate the A&N aerosols only with the surface concentration of the nitrate and ammonium aerosols (total suspended particulate). EMEP data are monthly data. The EMEP stations do not have continuous data over the period 1994–2014, and we selected those with a minimum of 5 years of data for each month. Finally, 33 stations were selected for nitrate and 35 for ammonium, symbolized by black dots in Fig. 1. These stations are detailed in Table 2. For comparison to our model results, we made monthly averaging of original EMEP surface observations.

3.2 Simulations

Two main configurations have been used for the ALADIN-Climate simulations in the present work: one including or one not including A&N aerosols. The simulation defined as the reference for this study is called REF. It used the ALADIN-climate model described previously including all aerosols except A&N. The second simulation, called NIT, is the same simulation but including the new A&N aerosol module. Both of them cover the same period from 1979 to 2016. These two simulations are driven by the ERA-Interim reanalysis, both for the lateral boundary conditions and inside the domain, using the spectral nudging method described in Radu et al. (2008). This method allows us to better impose the large scales from the boundary forcing dataset and therefore better follow the true natural climate variability. The wind vorticity and divergence, the surface pressure, the temperature and the specific humidity are nudged. A constant rate above 700 hPa and a decreasing rate between 700 and 850 hPa are imposed, while the levels below 850 hPa are free. The spatial wavelengths are similarly nudged beyond 400 km, with a transition zone between 200 and 400 km. Finally, this method gives the model enough freedom to generate the aerosols at the surface while keeping the ERA-Interim large-scale conditions that are required to simulate the true chronology.

Additional simulations have been performed for different sensitivity studies, mostly focused on changes in NH_3 emissions and HNO_3 climatology. Firstly, the impact of NH_3 emissions has been investigated using the NIT_2 simulation, which covers the 1979–2016 period. This additional run is similar to the NIT simulation and differs only in the annual cycle used for NH_3 emissions. In that sense, NIT_2 uses NH_3 emissions which are taken from CMIP6 data (as in the NIT simulation) but without the annual cycle of NH_3 MACCity emissions. The annual cycle of NH_3 emissions used for both simulations is shown in Fig. 2. NH_3 emissions of the NIT simulation (MACCity annual cycle) present an earlier maximum (March) than the one observed for the NIT_2 simulation (CMIP6 raw data), which have a maximum in May. In a second case, we intend to estimate the impact of the seasonality of the HNO_3 climatology. Indeed, the HNO_3 of the NIT simulation presents a relatively strong peak in April and a second weaker peak in July–August (Fig. 3). In order to evaluate the impact of this annual cycle, the simulation NIT_3 has been realized using a flat annual cycle of HNO_3. All the ALADIN-Climate simulations are summarized in Table 3.

Table 2. Station name, location, altitude and number of months available over the observation period (1994–2014) of the 40 EMEP stations.

Station		Location	Altitude (m)	Number of months available over the observation period (2003–2012)	
				Nitrate	Ammonium
Austria	Illmitz	47.460°, 16.460°	117	97	97
Czech Republic	Svratouch	49.440°, 16.300°	737	84	84
	Košetice	49.350°, 15.500°	534	84	84
Denmark	Tange	56.210°, 9.360°	13	×	72
	Anholt	56.430°, 11.310°	40	×	72
	Ulborg	56.170°, 8.260°	10	×	72
Great Britain	Cough Navar	54.263°, −7.521°	126	108	108
	Yarner Wood	50.354°, −3.424°	119	109	109
	High Muffles	54.204°, −0.482°	267	130	131
	Glen Saugh	56.542°, −2.333°	85	76	80
Hungary	K-Puszta	46.580°, 19.350°	125	190	215
Ireland	Oak Park	52.527°, −6.552°	59	93	93
	Malin Head	55.223°, −7.203°	20	96	96
	Carnsore Point	52.116°, −6.228°	9	103	91
Italy	Montelibretti	42.600°, 12.380°	48	192	165
	Ispra	45.480°, 8.380°	29	96	96
Latvia	Rucava	56.943°, 21.102°	18	202	190
	Zoseni	57.870°, 25.542°	188	182	181
The Netherlands	Kollumerwaard	53.202°, 6.163°	1	180	180
	Vredepeel	51.322°, 5.511°	28	192	204
	De Zilk	52.180°, 4.300°	4	216	216
Norway	Birkenes	58.230°, 8.150°	190	188	193
	Skreadolen	58.490°, 6.430°	475	123	123
Poland	Jarczew	51.490°, 21.590°	180	215	214
	Sniezka	50.440°, 15.440°	1603	216	216
	Leba	54.450°, 17.320°	2	216	216
Russia	Danki	54.540°, 37.480°	150	149	149
Slovakia	Chopok	48.560°, 19.350°	2008	214	×
	Stara Lesna	49.900°, 20.170°	808	134	×
	Liesek	49.220°, 19.410°	892	141	×
	Starina	49.300°, 22.160°	345	226	78
	Topolniky	47.573°, 17.513°	113	72	×
Spain	San Pablo	39.325°, −4.205°	917	×	78
	Roquetas	40.491°, 0.292°	44	×	78
	Logroño	42.272°, −2.301°	445	×	84
	Noia	42.434°, −8.552°	683	×	75
Switzerland	Jungfraujoch	46.325°, 7.596°	3578	151	153
	Payerne	46.484°, 6.564°	489	61	61
	Rigi	47.430°, 8.275°	1031	61	×
Turkey	Cubuk II	40.300°, 33.000°	1169	121	121

Table 3. Configuration of the different simulations in this study. Annual cycles of NH_3 and HNO_3 of the different simulations are presented in Figs. 2 and 3.

Simulation	REF	NIT	NIT_2	NIT_3
Ammonium and nitrate aerosols	No	Yes	Yes	Yes
Annual cycle of NH_3	/	MACCity	CMIP6	MACCity
Annual cycle of HNO_3	/	Yes	Yes	No (flat)
Period			1979–2016	

4 Evaluation of the new aerosol scheme and analysis of the spatio-temporal variability and trends of A&N aerosols

4.1 Surface concentration

The A&N aerosol concentrations of the NIT simulation, simulated at the surface by ALADIN-Climate, are evaluated in this section against observations obtained at EMEP stations over the period 1994–2014. Figure 4 presents comparisons of A&N concentrations simulated by the model with the concentrations measured at EMEP stations. The nitrate concentration simulated by ALADIN-Climate corresponds to the cumulated concentration of the accumulation and the coarse mode.

First, it should be mentioned that the model is able to reproduce some areas with high concentrations of nitrate particles (Benelux and Po Valley), with values of about 6 $\mu g\,m^{-3}$ for Benelux and 10 $\mu g\,m^{-3}$ for the Po Valley. Then, the spatial correlation calculated between the model and the EMEP stations is found to be about 0.82 for nitrate concentration. The patterns of the simulated surface nitrate concentrations are in general agreement with different global model results (Myhre et al., 2006; Bauer et al., 2007) and also with the chemistry-transport model LOTOS (Schaap et al., 2004), which show annual average nitrate concentration (year 1995) between 5 and 8 $\mu g\,m^{-3}$ over Benelux. Schaap et al. (2004) also report elevated concentrations over the Po Valley, where the annual averaged concentrations exceed 4 $\mu g\,m^{-3}$. Furthermore, Hauglustaine et al. (2014) showed maximum concentrations of the same order of magnitude as the ALADIN-Climate model of around 4–5 $\mu g\,m^{-3}$ over northern Europe. Figure 4 also indicates that the concentrations calculated over regions near the source areas (Benelux and Po Valley) are generally overestimated by the model, especially in Italy and eastern Europe. For example, the Montelibretti station (near Rome) is characterized by nitrate concentrations of about 4 $\mu g\,m^{-3}$ while the model simulates a surface concentration of about 8 $\mu g\,m^{-3}$. Other stations, particularly in Italy, would be needed to confirm this overestimation by ALADIN-Climate. Furthermore, outside of Europe and more specifically over the western Mediterranean where surface A&N concentrations simulated by ALADIN-Climate are relatively high, there are no available stations for evaluating the simulations. These high concentrations might be due to strong concentrations of nitric acid in the CAMS climatology.

Concerning the ammonium concentration, the model is found to be generally close to in situ EMEP observations with a spatial correlation of 0.86. However, underestimates are detected over northern Europe and Benelux. The regional pattern of the surface ammonium concentrations is found to be in agreement with results shown by Hauglustaine et al. (2014) (2–3 $\mu g\,m^{-3}$ in northern Europe) and also with results presented by Schaap et al. (2004), who show an annual average ammonium concentration (for the year 1995) of around 2–3 $\mu g\,m^{-3}$ over the Po Valley. To summarize, the analyses of comparisons with the EMEP dataset demonstrate the ability of the model to reasonably reproduce the ammonium concentrations at the surface over the European–Mediterranean region, notably their spatial distribution. However, some regions such as eastern Europe or Italy are concerned with a positive bias in nitrate concentrations.

4.2 AOD at local scale (AERONET)

In addition to surface concentrations, comparisons have also been realized at local scale using different AERONET stations. These stations, with at least 5 years of data, were chosen to cover the domain used and include different contrasted aerosol regimes. These stations are represented in Fig. 1 by black triangles. Figure 5 reports comparisons of the average annual cycle of the total AOD measured at AERONET stations and by different satellites (MISR, MODIS Aqua and MODIS Terra) with the one simulated by ALADIN-Climate, including the contribution of each aerosol type. AOD data presented here have been calculated at 550 nm over the period 2003–2012. Certain areas like around Cabauw, represented by one AERONET station (Cabauw) and two EMEP stations (De Zilk and Vredepeel; 60 and 100 km respectively), show a good consistency between the total AOD and the surface A&N concentration, which are well reproduced by the model.

It is important to note that the total nitrate AOD is primarily influenced by the first nitrate bin, which has much higher extinction per mass (5–30 $m^2\,g^{-1}$ at 550 nm depending on RH) than the second bin (0.20–0.90 $m^2\,g^{-1}$). Previous studies have already shown the predominance of nitrates in the fine fraction of aerosols (Schaap et al., 2002). First, the AOD measured by AERONET stations, such as Sevastopol,

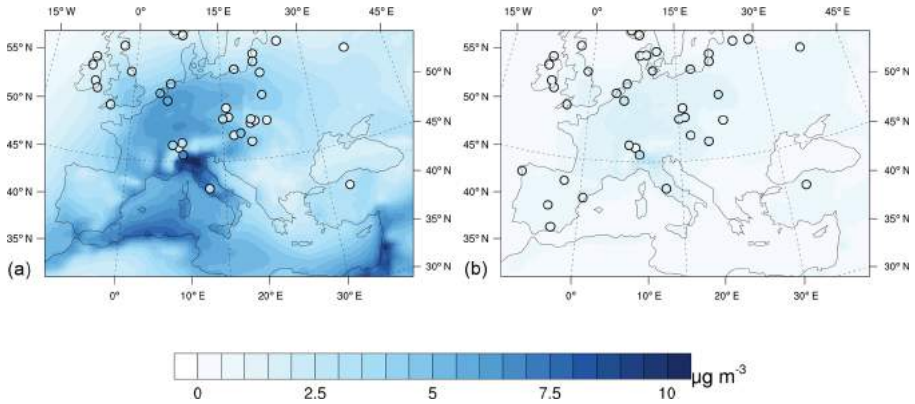

Figure 4. Nitrate **(a)** and ammonium **(b)** surface concentration ($\mu g\,m^{-3}$) simulated by the ALADIN-Climate model (1994–2014) and measured at EMEP stations (coloured dots) using the same colour palette.

Cabauw or Hamburg, is often included between satellites. On the other hand, in Barcelona the AOD measured by the AERONET station is underestimated compared to the different satellites. In addition, at Belsk and Hamburg stations, the AOD measured by the MODIS satellite (both Aqua and Terra) in summer (May, June and July) is considerably higher than that measured by the AERONET station and MISR. A second important point is that the A&N contribution to the total AOD_{550} is found to be significant, especially near source areas (Benelux, Po Valley) such as Cabauw, Belsk and the Hamburg stations. For example, for Cabauw, Belsk or Hamburg, A&N represents more than half of the total AOD_{550} during spring and summer, with values comprised of between 0.10 and 0.25. The maxima in A&N AOD_{550} is generally observed during spring (March, April, May) with values reaching 0.25 at the Cabauw or Hamburg AERONET stations. Indeed, the seasonal cycle of A&N AOD_{550} follows the same seasonal cycle of NH_3 and HNO_3 emissions, which are characterized by the highest values during spring. In parallel, stations far from the emission sources (Blida, Sevastopol) are characterized by low A&N AOD_{550} of 0.02 throughout the year, with a maximum in March (0.10). For all the stations, the minimum of A&N AOD_{550} is obtained in winter and the maximum in spring, as reported in Table 4 which presents the average seasonal values of the A&N AOD_{550} simulated by the model (NIT simulation) at three stations: Cabauw (northern Europe), Barcelona and Sevastopol (eastern Europe; far from the sources). Table 4 indicates clearly that the highest values occur in spring, with 0.17 for Cabauw (close from the sources) and 0.05 for Sevastopol (far from the sources). The minimum values are obtained in winter, with 0.05 for Cabauw and 0.01 for Sevastopol. Barcelona is characterized by intermediate values of 0.15 in spring and 0.07 in winter.

In the majority of cases, as shown in Fig. 5, the ALADIN-Climate simulations demonstrate that the contribution of

Table 4. Mean seasonal A&N AOD_{550} simulated by the model (NIT simulation) at three AERONET stations (Cabauw, Barcelona and Sevastopol) over the period 2003–2012.

A&N AOD_{550}	Cabauw	Barcelona	Sevastopol
DJF	0.05 ± 0.01	0.07 ± 0.02	$0.01 \pm 0.04 \times 10^{-1}$
MAM	0.17 ± 0.03	0.15 ± 0.03	0.05 ± 0.01
JJA	0.11 ± 0.02	0.09 ± 0.03	0.03 ± 0.01
SON	0.07 ± 0.01	0.09 ± 0.03	0.02 ± 0.01

A&N AOD_{550} improves the average AOD annual cycle, such as for Sevastopol, Cabauw or Barcelona AERONET stations. This result highlights that A&N aerosols are important to take into account for correctly simulating the spatial and temporal variability of the total AOD_{550} over the Euro-Mediterranean region. Nevertheless, some biases are identified and the total AOD_{550} simulated by the ALADIN-Climate model is sometimes too weak in summer, such as for the Cabauw station. This lack of aerosols in summer can be also explained by the absence of anthropogenic secondary organics aerosols (SOA) in the ALADIN-Climate model, since only the natural SOA are considered through the climatology of Dentener et al. (2006). It can be also explained by the absence of organic nitrates, which might significantly contribute to the fine nitrate aerosol (34 % to 44 % of submicron aerosol nitrate) in regions with high nitrate concentrations (Kiendler-Scharr et al., 2016). Furthermore, such local comparisons between the model (with an horizontal resolution of 50 km) and AERONET data are related to uncertainties due to the representativeness of sun-photometer observations when compared to the model grid point mean.

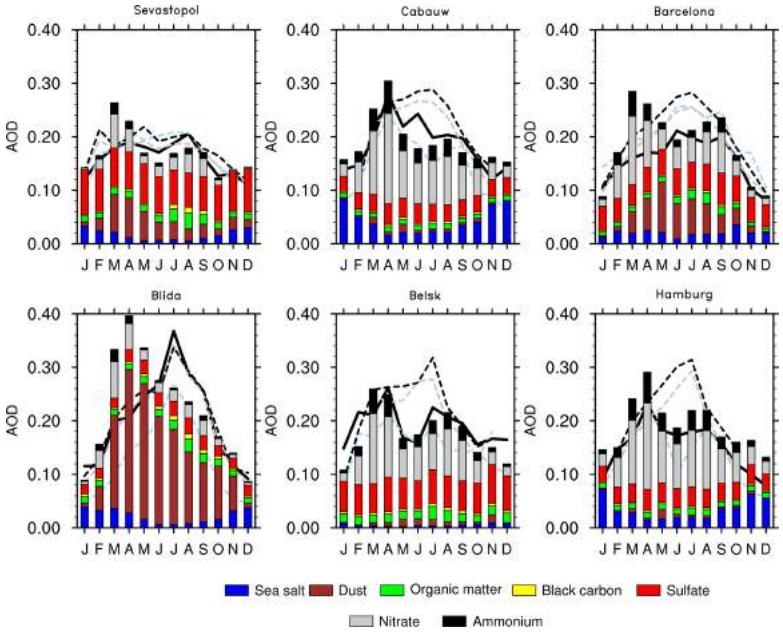

Figure 5. Comparison of the average annual cycle (2003–2012) of aerosol optical depth (at 550 nm) simulated by the ALADIN-Climate model (bars), with measurements at six selected AERONET stations (black line) and measurements by MISR (light blue dotted line), MODIS Aqua (grey dotted line) and MODIS Terra (black dotted line). The model contribution of each aerosol type is indicated using different colour bars.

4.3 AOD at regional scale

In addition to local comparisons at EMEP and AERONET stations, we have extended our analyses to the regional AOD spatial distribution using different satellite products (MODIS and MISR). The average total AOD_{550} for the REF (without A&N particles), the NIT simulation (including A&N) and the satellite observations over the period 2001–2016 (2003–2016 for MODIS Aqua) are summarized in Fig. 6.

First, Fig. 6 indicates that the regional spatial pattern of AOD_{550} simulated by the ALADIN-Climate model is improved over Europe in the NIT simulation relatively to the REF simulation when compared to satellite data (MODIS and MISR). As A&N aerosol concentrations are found to be less important over the Mediterranean Sea and Africa, there are logically few differences between the NIT and REF simulations in these regions. Over Europe, Fig. 7 shows that the additional AOD_{550} due to A&N aerosols can explain part of the negative bias in the REF simulation, especially concerning Benelux and the Po Valley. The REF simulation presents AOD_{550} equal to 0.09 (at 550 nm) on average over Europe while the NIT simulation presents higher values (0.16 at 550 nm) in a better agreement with satellite data, ranging from 0.13 to 0.19. It should be noted, however, that the different satellite data show large differences between themselves. Concerning the total AOD_{550} over the Mediterranean Sea, satellite data (MODIS and MISR) indicate values between 0.20 and 0.22. In this case, the NIT simulation shows a mean value of 0.22, producing a slight improvement compared to the REF simulation (mean of 0.19). All the results are summarized in Table 5 for the different ALADIN-Climate simulation and satellite data. Both domains (Europe and the Mediterranean Sea) are represented in Fig. 1. Compared to other modelling studies including A&N aerosols over the Euro-Mediterranean region, the simulated A&N AOD_{550} by the ALADIN-Climate model are found to be consistent with those reported by Hauglustaine et al. (2014) with values comprised between 0.15 and 0.25 over Europe. More specifically, Fig. 7 indicates highest values of A&N AOD_{550} over Benelux (0.07) and the Po Valley (0.09) which are a little bit higher than Hauglustaine et al. (2014), who report a maximum about 0.05 in northern Europe. Figure 7 also shows significant values over the Red Sea (near 0.1), which are certainly due to high HNO_3 concentration over this region. It should be noted that Ammonium AOD_{550} presents the same spatial distribution as nitrates over Europe, with maxima over Benelux and the Po Valley but lower in magnitude than nitrates. Indeed, ammonium AOD_{550} reaches up to 0.06 over the Po Valley and 0.04 over Benelux.

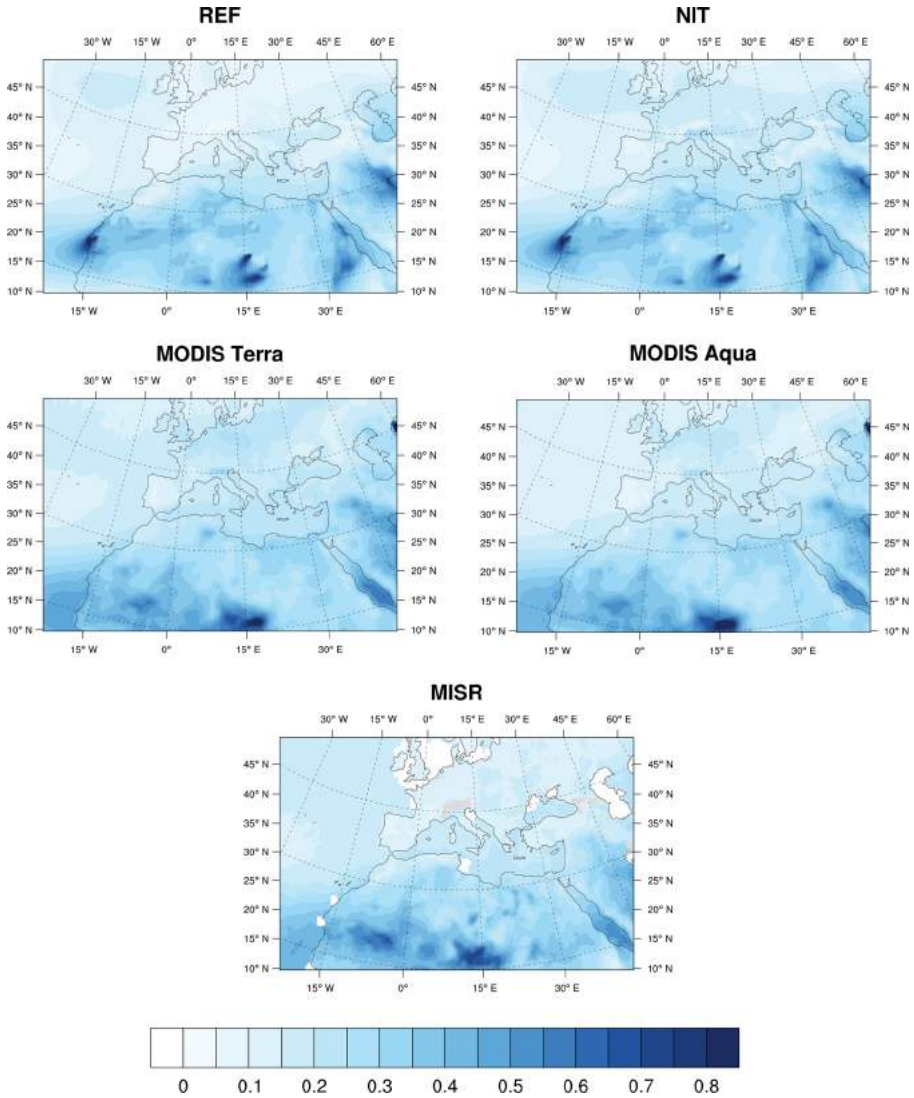

Figure 6. Total aerosol optical depth (at 550 nm) simulated by the ALADIN-Climate model for the NIT and REF simulations and measured from MODIS and MISR, averaged over the period 2001–2016 (2003–2016 for MODIS Aqua).

4.4 AOD annual cycle at regional scale

The annual cycle of the total aerosol AOD_{550} (2001–2016) simulated by ALADIN-Climate and measured by satellite instruments (MODIS and MISR) over the two different domains considered (Europe and the Mediterranean Sea; see Fig. 1) is presented in Fig. 8. The model results indicate that the A&N AOD_{550} represent 40 % of the total AOD over Europe with an average of 0.07, demonstrating the importance of A&N particles in terms of radiative budget over this region. Unlike to REF, A&N AOD_{550} over Europe in the NIT simulation is found to be of the same order of magnitude as satellite observations. Over Europe, the NIT simulation in Fig. 6 also indicates that A&N aerosols significantly improve the simulated total AOD_{550} annual cycle compared to satellite observations. Indeed, the increase in AOD_{550} from winter to spring is now more important in NIT (0.11 to 0.21) than in REF (0.08 to 0.10), which is in better agreement with the different satellite datasets, ranging from 0.08–0.11 in winter to 0.15–0.21 in spring. Moreover, the NIT simulation presents

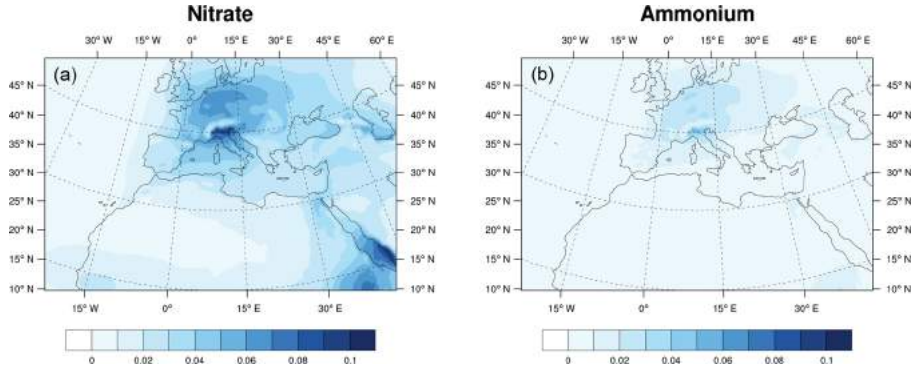

Figure 7. Optical depth of nitrate **(a)** and ammonium **(b)** at 550 nm simulated by ALADIN-Climate over the period 2001–2016 (NIT simulation).

Table 5. Seasonal averages and annual mean total AOD_{550} simulated by ALADIN-Climate for NIT and REF configurations and measured by MODIS and MISR over the period 2001–2016 (2003–2016 for MODIS Aqua).

AREA	Period	REF	NIT	NIT_2	NIT_3	MISR	MODIS Aqua	MODIS Terra
Europe	DJF	0.08 ± 0.01	0.11 ± 0.01	0.11 ± 0.01	0.12 ± 0.02	0.08 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.11 ± 0.01
	MAM	0.10 ± 0.02	0.21 ± 0.01	0.20 ± 0.01	0.19 ± 0.01	0.15 ± 0.03	0.18 ± 0.04	0.21 ± 0.04
	JJA	0.10 ± 0.03	0.18 ± 0.02	0.19 ± 0.03	0.18 ± 0.02	0.16 ± 0.03	0.21 ± 0.02	0.24 ± 0.04
	SON	0.09 ± 0.02	0.14 ± 0.02	0.15 ± 0.02	0.15 ± 0.02	0.11 ± 0.03	0.12 ± 0.03	0.15 ± 0.04
	Overall	0.09 ± 0.02	0.16 ± 0.01	0.16 ± 0.01	0.16 ± 0.01	0.13 ± 0.02	0.16 ± 0.02	0.19 ± 0.03
Mediterranean Sea	DJF	0.16 ± 0.05	0.17 ± 0.05	0.17 ± 0.05	0.17 ± 0.05	0.15 ± 0.03	0.15 ± 0.02	0.15 ± 0.02
	MAM	0.29 ± 0.08	0.34 ± 0.08	0.34 ± 0.08	0.34 ± 0.08	0.22 ± 0.03	0.25 ± 0.03	0.27 ± 0.03
	JJA	0.16 ± 0.03	0.19 ± 0.03	0.20 ± 0.03	0.19 ± 0.03	0.24 ± 0.05	0.23 ± 0.03	0.25 ± 0.04
	SON	0.15 ± 0.03	0.17 ± 0.03	0.18 ± 0.03	0.17 ± 0.03	0.19 ± 0.03	0.18 ± 0.03	0.20 ± 0.03
	Overall	0.19 ± 0.03	0.22 ± 0.02	0.22 ± 0.02	0.22 ± 0.02	0.20 ± 0.03	0.20 ± 0.02	0.22 ± 0.02

two peaks in April and in August as in MISR data. However, the annual cycle of MODIS (Terra and Aqua) is found to be significantly different from MISR, with a single maximum during the summer period. The NIT simulation also presents a positive bias in spring (February, March and April) and a negative bias in summer (May, June and July) compared to MODIS data. Over the Mediterranean Sea, AOD_{550} is overestimated during spring (March, April and May) in both REF and NIT simulations, and underestimated during summer, probably due to discrepancies in the annual cycle of dust aerosols. This overestimate during spring and underestimate during summer can be seen in Fig. 5 with the Blida station located in northern Algeria near the Mediterranean Sea.

Despite this bias, the peak present in MODIS datasets in April is well reproduced by ALADIN, and highlighted in the NIT simulation. Nevertheless there is no clear improvement in AOD_{550} over the Mediterranean Sea when adding nitrate aerosols.

4.5 Sensitivity tests

The different biases discussed previously can be due to numerous uncertainties, such as the dry or wet deposition, the hygroscopic and optical properties, and especially the precursor species of A&N aerosols (NH_3 emissions or HNO_3 concentrations). For this last reason, two sensitivity tests were carried out over Europe. The first concerns the annual cycle of NH_3 emissions and the second the annual cycle of HNO_3.

Figure 9 shows the impact of the change in NH_3 emissions (NIT_2 simulation) and HNO_3 concentration (NIT_3 simulation) at four EMEP stations. The confidence interval associated with observations (light blue spread) has been calculated using the number of years available for each station with a significance level of 95 %. The different stations, with continuous data over 16 years, are located in the Netherlands, Italy, Turkey and Russia to represent different aerosol regimes. At these stations, the nitrate concentration estimated from the EMEP network is fairly stable during the year with 6 $\mu g\,m^{-3}$ at the beginning of the year and about 3–4 $\mu g\,m^{-3}$ at the end at De Zilk where the amplitude is maximum. In

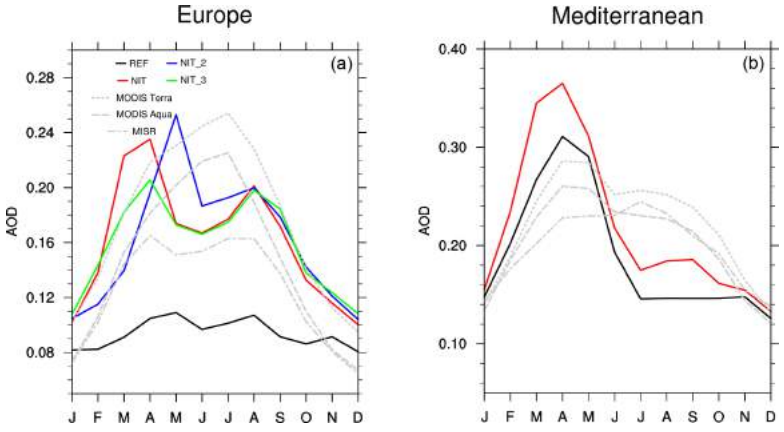

Figure 8. Average total aerosol AOD_{550} annual cycle simulated by ALADIN-Climate, over the period 2001–2016 (2003–2016 for MODIS Aqua), with (NIT) and without (REF) A&N and measured by two satellite instruments (MODIS and MISR) over Europe **(a)** and the Mediterranean Sea **(b)**.

the eastern part of the domain (Cubuk and Danki stations), the nitrate concentrations observed are very low and comprised between 0 and 1 $\mu g\,m^{-3}$ throughout the year. The results indicate that the NIT simulation, as well as the two sensitivity tests (NIT_2 and NIT_3), are quite different from the observations at these four stations. Indeed, the ALADIN-Climate model presents an overestimate of the nitrate surface concentration especially with a high peak during the spring (March, April, May). Except at the De Zilk station, the NIT simulation presents an earlier peak in the spring than the NIT_2 simulation due to its annual cycle of NH_3 emissions (Fig. 2). At the De Zilk station, the NIT_3 simulation with a flat annual cycle of HNO_3 shows nitrate concentrations at the surface closer to EMEP observations, with relatively constant values ranging from 5 to 8 $\mu g\,m^{-3}$. For other stations, this simulation reveals overestimates of nitrate surface concentrations compared to EMEP data. Several parameters may explain this overestimate of the simulated nitrate concentration as excessive emissions of ammonia or too-high nitric acid concentration in the climatology used in the ALADIN-Climate model. Indeed, Bian et al. (2017) have shown that a good nitrate simulation depends on good simulations of precursors, such as NH_3 and HNO_3.

Concerning the AOD, Fig. 10 presents the annual cycle of total AOD_{550} for NIT, NIT_2 and NIT_3 simulations compared at four AERONET sites with continuous data over 10 years (Netherlands, Spain, Crimea, Poland). Like before, the confidence interval with a significant level of 95 % is indicated for observations by the light blue spread. Differences between NIT, NIT_2 and NIT_3 simulations are therefore due to A&N AOD_{550} differences. Contrary to surface nitrate concentrations, the A&N AOD_{550} is found to be closed to AERONET observations, especially for the NIT simulation at the Cabauw or at the Belsk stations. Moreover, at Barcelona, the model shows an overestimate during spring (peak of 0.29 for NIT and NIT_3 and in May (maxima of 0.36 for NIT_2 simulation). For these periods, AERONET data indicate AOD of about 0.16.

In addition, Fig. 8 presents the total aerosol AOD_{550} simulated by NIT (red), NIT_2 (blue) and NIT_3 (green) simulations compared to satellite products (grey dots) over Europe (2001–2016). The three simulations are found to be close but NIT_2 simulation presents a higher and later peak of around 0.26 in May than the NIT simulation, which reaches maximum (0.24) in March–April over the Europe domain. During the May to July period, the NIT simulation shows lower values. The NIT_3 simulation shows a weaker peak in April (0.20) than the NIT simulation (0.24). For the rest of the year, NIT and NIT_3 simulations are very close. Table 6 presents the temporal correlation between mean annual cycles from different simulations (NIT, NIT_2 and NIT_3) and satellite products (MISR, MODIS Aqua and MODIS Terra). Table 6 indicates that NIT simulation, with a peak in April, is closer to MISR than NIT_2 simulation. NIT and NIT_2 simulations present a positive bias (0.04) compared to MISR dataset. In parallel, the NIT_2 simulation is found to be closer to MODIS Aqua and MODIS Terra than the NIT simulation. These simulations also present a positive bias (0.02 for NIT and 0.01 for NIT_2) compared to MODIS Aqua and a negative bias compared to MODIS Terra (-0.02). The annual cycle of the NH_3 emissions has therefore a significant impact on the total aerosol AOD_{550}, especially during the spring (March, April and May). Concerning NIT_3, as shown in the Table 6, this simulation presents high temporal correlation compared to MISR (0.95), associated with a bias of 0.03. This run also shows better correlations with MODIS Aqua (0.82) and MODIS Terra (0.85) than the NIT simulation (0.75 and 0.77 respectively).

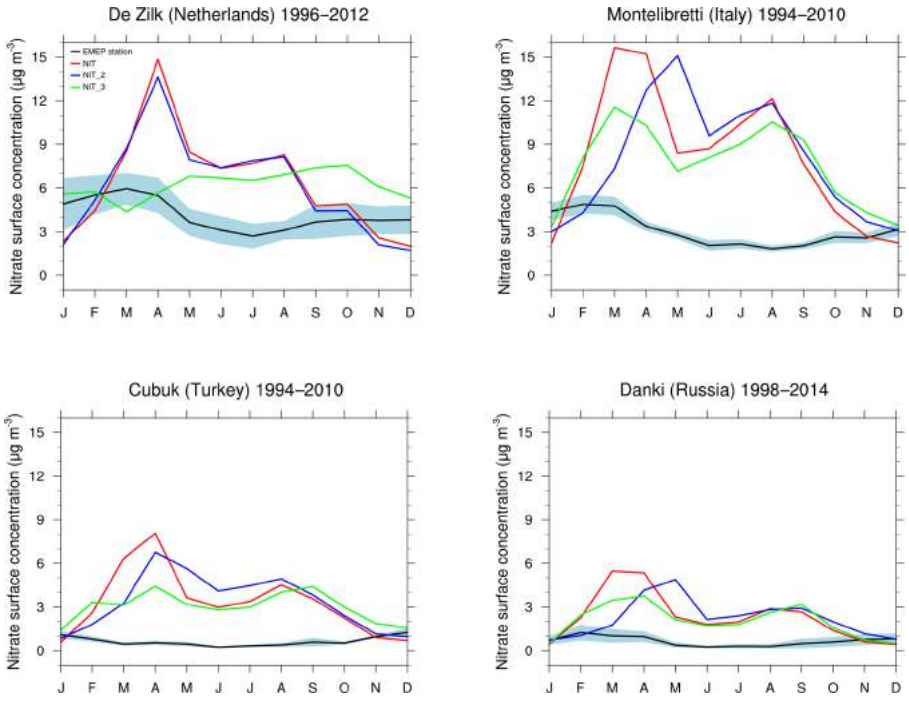

Figure 9. Monthly means of the surface nitrate concentration ($\mu g\,m^{-3}$) at the De Zilk, Montelibretti, Cubuk and Danki EMEP stations, for NIT (red), NIT_2 (blue) and NIT_3 (green) simulations. Observations are in black and the standard deviation associated with observations is in light blue.

Table 6. Temporal correlation (and bias), over Europe, between mean annual cycles as plotted in Fig. 6 from simulations (NIT, NIT_2 and NIT_3) and satellite products (MISR, MODIS Aqua and MODIS Terra) over the period 2001–2016 (2003–2016 for MODIS Aqua).

AOD_{550}	MISR	MODIS Aqua	MODIS Terra
NIT	0.90 (0.04)	0.75 (0.02)	0.77 (−0.02)
NIT_2	0.85 (0.04)	0.88 (0.01)	0.89 (−0.02)
NIT_3	0.95 (0.03)	0.82 (0.01)	0.85 (−0.02)

Finally, it is shown here that the annual cycles of nitrate precursors, such as ammonia and nitric acid, have significant impacts on the A&N AOD_{550} and therefore on the total AOD, especially in spring. Hence, a poor representation of the annual cycle of nitrate precursors may therefore be one of the possible causes of the AOD bias observed in spring compared to satellite data (Fig. 8). Further studies related to the representation of the ammonia emissions and nitric acid annual cycle seem necessary to improve the simulated A&N concentrations and optical depth over Europe.

4.6 Aerosol trends

Figure 11 presents the total AOD_{550} evolution over Europe and the Mediterranean Sea for REF and NIT simulations. NAB2013 is an aerosol climatology developed by Nabat et al. (2013), which is based on MODIS data for total AOD over the period 2003–2009, and model data for the distinction in the contribution of the different aerosol types. Before 2003, this climatology is extended up to 1979 using the sulfate AOD trend coming from the LMDz-INCA model (which does not have AN aerosols), in agreement with the other ACCMIP models. Figure 11 indicates an important decrease over Europe of the total AOD_{550} from 1979 to 2016 in the REF ($-0.047\,decade^{-1}$) and NIT ($-0.035\,decade^{-1}$) simulations and also from NAB2013 ($-0.045\,decade^{-1}$). Figure 11 shows also a less pronounced decrease in the total AOD_{550} over the Mediterranean Sea. Such decreases are mainly due to the decline of sulfate particles over Europe during this period. The different trends obtained for the NIT simulation (Total, sulfate and A&N trends) and NAB2013_sulfate (sulfate trend) for the period 1979-2016 are summarized in Table 7. First, NAB2013_sulfate that does not take into account A&N particles is very close to the sulfate trend of NIT simulation over Europe (−0.046 for NIT

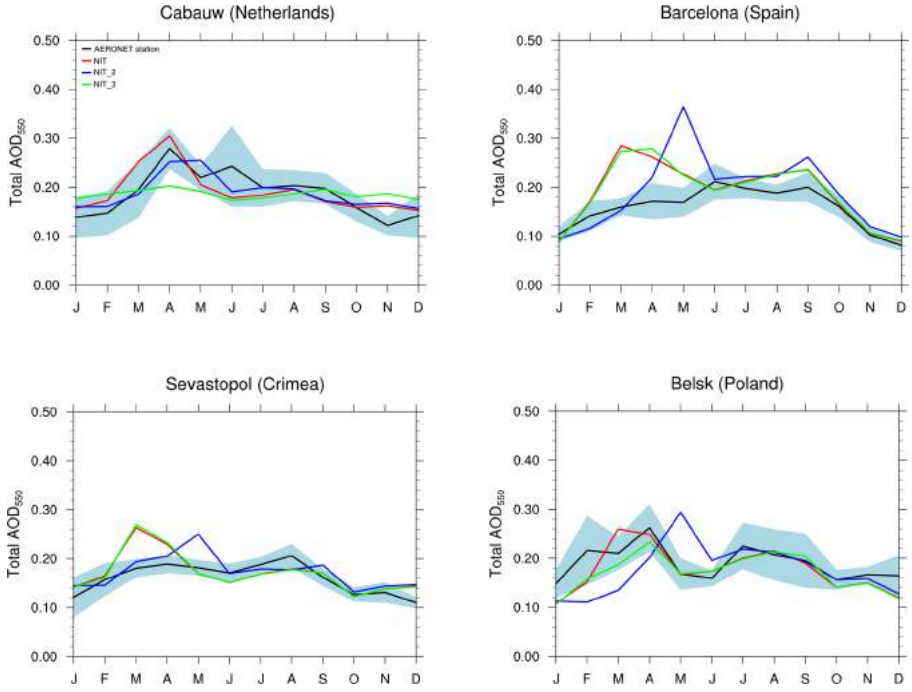

Figure 10. Comparison of the monthly means (2003–2012) of aerosol optical depth (at 550 nm) simulated by the ALADIN-Climate model, with measurements at four AERONET stations for NIT (red), NIT_2 (blue) and NIT_3 (green) simulations. Observations are in black and the standard deviation associated with observations is in light blue.

Table 7. NIT simulation AOD_{550} trend per decade compared to NAB2013 (Nabat et al., 2013) over the period 1979–2016.

AOD_{550} trend per decade	NIT			NAB2013
(1979–2016)	Total	A&N	Sulfate	
Europe	0.10	0.21	−0.046	−0.045
Mediterranean Sea	0.10	0.21	−0.046	−0.045

and −0.045 for NAB2013) and the Mediterranean (−0.022 for NIT and −0.021 for NAB2013). On the other hand, over the period 1979–2016, the NAB2013_sulfate trend is found to be about 30 % stronger than the NIT total run over Europe and about 50 % stronger over the Mediterranean Sea, notably because of the positive A&N trend of 0.012 decade^{-1} over Europe (and 0.008 decade^{-1} over the Mediterranean Sea). For comparisons, the nitrate trend obtained from the GISS global model (Shindell et al., 2013) for the period 1980–2015 is found to be relatively similar to the NIT simulation, with lower values like 0.008 decade^{-1} over Europe (0.012 for the nitrate trend of the NIT simulation) and 0.005 decade^{-1} over the Mediterranean (0.008 for the nitrate trend of the NIT simulation).

In Fig. 11, satellite data (MODIS and MISR), highlighted by the shaded area, also indicate a decrease in total AOD between 2003 and 2015, when averaged over Europe. Trends obtained for the different simulations and from satellite products, over the period 2003–2015, are also presented in Table 8. This decrease in total aerosol AOD is also due to the strong drop in sulfate aerosols. Over Europe, unlike REF simulation, NIT simulation is of the same order of magnitude as the satellite products. On the other hand, it is shown that over Europe but also over the Mediterranean Sea the trend of the NIT simulation is weaker than the REF simulation and all satellite data. The difference between NIT and REF is due to the positive trend of nitrate and ammonium (0.013 decade^{-1} over Europe and 0.011 decade^{-1} over the Mediterranean Sea). Differences between NIT and satellite products may be due to NH_3 emission inventories or due to HNO_3 climatology (uncertainties in NH_3 emission inventories and HNO_3 annual cycle averaged over 5 years). Furthermore, the AOD quantification by satellite products is difficult because the aerosol contribution to the reflectance is mixed with that of clouds and the surface (Bréon et al., 2011) and also because they do not take into account all the pixels (especially with MISR).

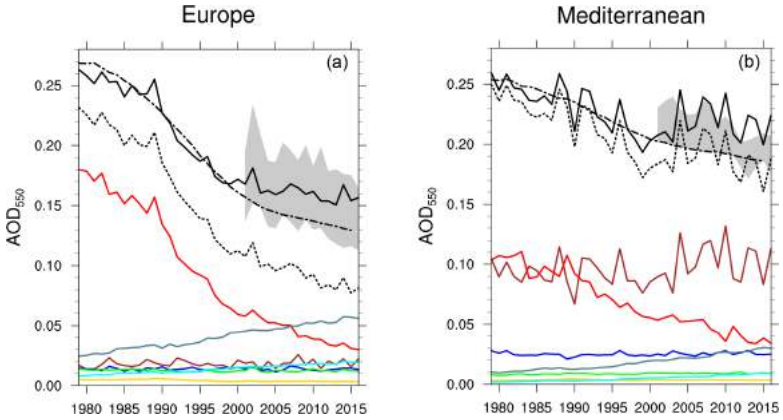

Figure 11. Yearly means of AOD_{550} over Europe **(a)** and the Mediterranean Sea **(b)** as defined in Fig. 1 for the NIT simulation (solid black line), the REF simulation (dotted black line), the NAB2013 climatology (dotted dashed black line) and for each aerosol species in NIT (solid colour lines) over the period 1979–2016 compared to satellite products (grey area from 2001 on). Dust in brown, sea salt in blue, black carbon in gold, organic carbon in green, sulfate in red, ammonium in cyan and nitrate in sea green.

Table 8. NIT simulation AOD_{550} trend per decade compared to NAB2013 (Nabat et al., 2013) and total AOD trend from different satellite products (MISR, MODIS Aqua and MODIS Terra) over the period 2003–2015.

AOD_{550} trend per decade	NIT				NAB2013	MISR	MODIS A	MODIS T
(2003–2015)	Total	A&N	Dust	Sulfate				
Europe	−0.006	0.013	0.002	−0.022	−0.015	−0.022	−0.029	−0.019
Mediterranean Sea	−0.010	0.011	−0.002	−0.018	−0.011	−0.035	−0.029	−0.028

The lower trend obtained for the NIT simulation compared to the REF run in Fig. 11 is therefore due to the continuous increase in nitrate aerosol concentrations between 1979 and 2016, from 0.025 (1979) to 0.06 (2016) over Europe and from 0.01 (1979) to 0.03 (2016) over the Mediterranean Sea. This increase in nitrate concentrations then partially compensates the sulfate concentration decrease. An interesting point is that the nitrate AOD_{550} rise is not due to an increase in its precursors (ammonia and nitric acid). Indeed, the nitric acid used in this study is constant over the years and ammonia emissions are also constant or even slightly lower since 1979 over Europe, as shown in Fig. 12. This drop in anthropogenic emissions is reflected by the decline in tropospheric NO_2 over the western part of the Euro-Mediterranean domain shown by Hilboll et al. (2013) and Georgoulias et al. (2018). Figure 12 also shows that the decrease in sulfate aerosols observed over Europe is due to the decline of one of its precursors (sulfur dioxide). This decrease in sulfate aerosol production thus leaves more free ammonia in the lower atmosphere, allowing an increase in A&N aerosols over Europe but also over the Mediterranean. Figure 11 shows the relative importance of the A&N AOD_{550} over Europe, which is higher than sulfate AOD since 2005 in our NIT simulation. To our knowledge, this is the first report in which A&N aerosols appear as the most important species in terms of AOD_{550} over Europe from 2005 on.

5 Impact of ammonium and nitrate aerosols on the radiative budget and regional climate

5.1 Direct SW radiative forcing

This final section aims at analysing the impact of A&N aerosols on the European–Mediterranean radiative budget and its climate, notably in terms of surface temperature. First, Fig. 13 presents the impact of A&N aerosols on the solar radiation at the surface and at the TOA for the period 1979–2016 for clear-sky and all sky conditions. Figure 13 indicates a moderate effect of A&N aerosols on the surface SW radiation over central Europe, of about $-4\,W\,m^{-2}$ in clear-sky and $-2\,W\,m^{-2}$ in all sky conditions, respectively. This direct radiative forcing (DRF) is consistent with the A&N AOD_{550} (0.1–0.15) simulated over this region. Ammonium represents about 35 % of the nitrate AOD over Europe and the Mediterranean Sea, their optical properties being relatively close, and we can estimate that ammonium represents about a third of the direct radiative forcing shown over the

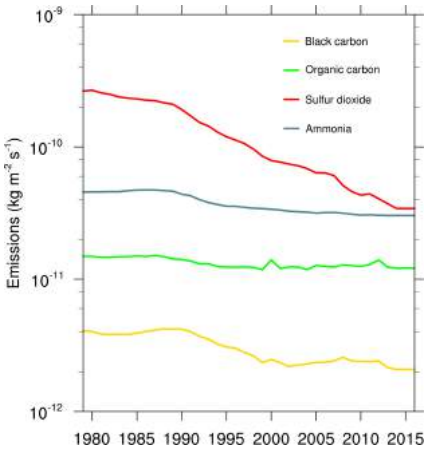

Figure 12. Yearly means of anthropogenic emissions over Europe as defined in Fig. 1 for black carbon (yellow), organic carbon (green), sulfur dioxide (red) and ammonia (blue-grey) over the period 1979–2016.

Euro-Mediterranean region. The most marked season is summer (June, July and August), shown at the top of Fig. 15, with values up to $-5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ over central Europe and $-10\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in the Po Valley at the surface in all sky conditions.

When averaged over Europe, A&N aerosols cause a surface DRF of around $-1.7\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ (all sky conditions). Figure 13 also reveals local maxima in the surface forcing ($-5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$) over Europe (all sky conditions), especially in the Po Valley and Benelux, certainly because of the presence of industrial pollution particles. Over the Po Valley, the A&N surface DRF represents 33 % (all sky conditions) of the total surface DRF. Finally, it should be noted that the maxima of DRF exerted by A&N aerosols is found to occur during summer.

Figure 13 also shows that A&N aerosols cause a mean TOA DRF over Europe of around $-1.4\,\mathrm{W\,m^{-2}}$. Bauer et al. (2007) and Hauglustaine et al. (2014) also indicate a significant nitrate TOA DRF over Europe ($-1\,\mathrm{W\,m^{-2}}$) consistent with the one estimated in this study. This forcing over Europe is 1 order of magnitude larger than the global average for present conditions ($-0.11\,\mathrm{W\,m^{-2}}$; Bauer et al., 2007). At the TOA, local maxima ($-5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$) are detected over the Po Valley and Fig. 13 indicates important TOA DRF of around $-2\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ over Benelux (all sky conditions).

Table 9 summarizes the calculated annual-mean SW DRF exerted at the surface and at TOA for the REF and NIT simulations over the period 2000–2009, compared with those obtained by Nabat et al. (2015b) CNRM-RCSM4 simulations (period 2000–2009) and by Papadimas et al. (2012) using MODIS (period 2000–2007).

First, it should be mentioned that differences between REF and CNRM-RCSM4 simulations are mainly due to different

Table 9. Aerosol SW DRF averages ($\mathrm{W\,m^{-2}}$) in all sky conditions at the surface and at TOA for different datasets over the Mediterranean basin (29° to 46.5°, −10.5° to 38.5°).

SW DRF	REF	NIT	CNRM-RCSM4	MODIS
($\mathrm{W\,m^{-2}}$)	This work		Nabat et al. (2015b)	Papadimas et al. (2012)
Surface	−7.6	−8.7	−19.9	−16.5
TOA	−1.5	−2.4	−7.8	−2.4

versions of the atmospheric model (ALADIN-Climate). In addition, the CNRM-RCSM4 model did not use an interactive aerosol scheme but the Nabat et al. (2013) aerosol climatology. Table 9 also reveals that the NIT simulation improves the DRF estimates, compared to MODIS data. The aerosol DRF evolution over Europe and the Mediterranean Sea is presented in Fig. 14 in all sky and clear-sky conditions, at the surface and at the TOA, over the period 1979–2016. Despite an increase in the A&N DRF, the total surface DRF is found to decrease over Europe from $-12\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in 1979 to $-8\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in 2016 in clear-sky conditions and from $-8\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ (1979) to $-5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ (2016) in all sky conditions. This trend is mainly due to the decrease in sulfate and organic DRF, which is not fully offset by the increase in A&N DRF (from $-1.5\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in 1979 to $-4\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in 2016 over Europe in clear-sky conditions). An important result here concerns the relative importance of the A&N DRF exerted over Europe, both at the surface and at TOA, which is found to be higher than sulfate and organic DRF since 2005. Hence, our simulations indicate, for the first time to our knowledge, that since this specific year (2005), A&N aerosols appear as the most important species in terms of DRF over Europe. Paulot et al. (2018) have estimated the DRF of these different aerosol from 2001 to 2015 using the GFDL chemistry-climate model AM3 driven by CMIP6 historical emissions. They have also shown a decrease in total aerosol DRF over western Europe driven by the decrease in sulfate associated with the decrease in sulfur dioxide emissions. On the other hand, they did not show an increase in A&N aerosols over Europe. In their study, sulfate aerosols always have a stronger AOD and a stronger DRF than nitrate aerosols. In parallel, Fig. 14 shows a moderate decrease in the total aerosol DRF over the Mediterranean (both at the surface and TOA), mainly due to the decrease in sulfate and organic DRF. The A&N DRF is also found to increase in this area from $-1\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in 1979 to $-2\,\mathrm{W\,m^{-2}}$ in 2016, with an equivalent DRF to sulfate and organic aerosols in 2016.

5.2 Effects on the regional climate

We investigate here the consequences of the direct radiative forcing of A&N aerosols on near-surface air temperature at 2 m and precipitation over the model domain.

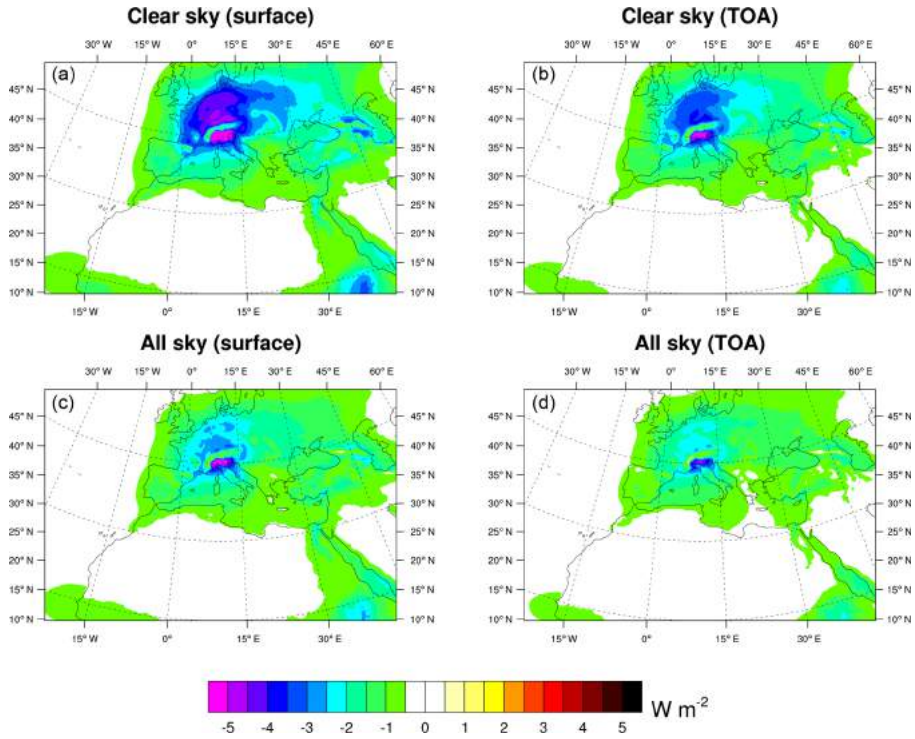

Figure 13. Clear-sky **(a, b)** and all sky **(c, d)** SW direct radiative forcing (W m^{-2}) due to A&N aerosols at the surface **(a, c)** and at the top of the atmosphere, TOA **(b, d)**, estimated over the period 1979–2016 by difference between the REF and NIT simulations.

Figure 15 presents the differences (averaged over the period 1979–2016) between the NIT and REF simulations for 2 m temperature and surface DRF SW (all sky conditions) during summer (June, July and August). A t test has been applied to the Fig. 15 using the 38 years of the simulation with a significant level of 95 %. Furthermore, areas with high temperature differences are areas with high A&N AOD so the model's internal variability does not seem to be causing these differences. Figure 15 shows a moderate temperature impact due to A&N surface dimming of about −0.2 °C over Europe, due to the radiation drop (−1.7 W m^{-2} on average over Europe). A larger decline takes place (−0.4 °C) in regions with large A&N AOD_{550} associated with a significant DRF (Benelux, Po Valley). For other seasons, no significant drop in temperature has been found. As a comparison, Nabat et al. (2015b) reported that 2 m temperature could be reduced by 0.4 °C on average over Europe (−0.2 °C in winter and −0.4 °C for each other seasons) because of the presence of different aerosols (sea salt, desert dust, sulfate, black and organic carbon) over the period 2003–2009. Therefore, only for the summer, the A&N impact on 2 m temperature is about half as strong as the effect of all other aerosols. Zanis (2009) has also shown a negative surface radiative forcing associated with the anthropogenic aerosols (carbonaceous particles and sulfates), during the summer of 2000 throughout the European domain. Anthropogenic aerosols cause a temperature decrease at the lower troposphere of up to 1.2 °C over southeastern Europe and the Balkan Peninsula, about 3 times more than summer A&N impact on 2 m temperature. More recently, Zanis et al. (2012) have shown, over the period 1996–2007, a limited direct shortwave effect of anthropogenic aerosols (carbonaceous particles and sulfate) on the European climate with the greatest negative temperature difference of −0.2 °C over the Balkan Peninsula.

Finally, no significant difference has been found regarding precipitation between REF and NIT simulations (not shown).

6 Conclusions

In this work, we have developed a new configuration of the aerosol scheme TACTIC in ALADIN-Climate model, notably by adding ammonium and nitrate (A&N) aerosols. The objective is to present the implementation and the evaluation of this simplified A&N module and to assess the direct radiative effect and climatic impact of A&N aerosols over the Euro-Mediterranean region for past–present conditions. Two

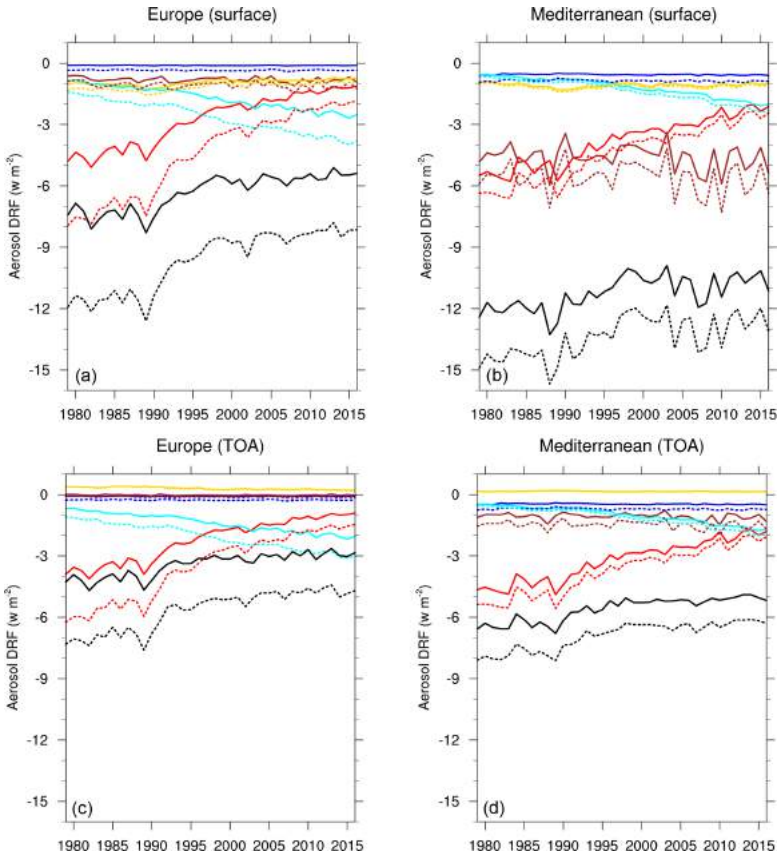

Figure 14. Yearly means of aerosol DRF over Europe **(a, c)** and the Mediterranean Sea **(b, d)** for nitrate and ammonium (cyan), sulfate and organics (red), black carbon (yellow), dust (brown), sea salt (blue), and total (black) in all sky (solid lines) and clear-sky (dotted lines) conditions over the period 1979–2016.

main parallel simulations have been realized: the REF simulation which includes all aerosols except A&N (dust, sea salt, black carbon, organic carbon and sulfate), and the NIT simulation also including A&N particles. Our results indicate that A&N surface concentrations are relatively well represented (maxima over Benelux and the Po Valley) but some important differences are detected with EMEP data (overestimates over Italy and eastern Europe notably). For total AOD_{550}, A&N aerosols are shown to reduce the model low bias particularly over Europe, notably with the improvement of the annual cycle of total aerosol AOD_{550} (especially in some areas like Benelux). However, some biases have been identified as an overestimate during spring of total AOD_{550} over Europe and the Mediterranean and an underestimate during summer over the Mediterranean. Sensitivity studies suggest that such biases are related to uncertainties associated with the annual cycle of A&N aerosol precursors (ammonia and nitric acid). A lack of other aerosols such as secondary organic aerosols or organic nitrates is also possible in the model. Over Europe, the ALADIN-Climate simulation indicates that A&N aerosols are characterized by a positive trend over the period 1979–2015 (0.012) due to the increase in A&N aerosol production. This could be caused by more "free" ammonia in the lower troposphere due to the decrease in sulfate aerosols over the 38 years. The addition of A&N aerosols has allowed us to estimate the impact of A&N aerosols on SW radiations and surface temperatures. At the surface and for all sky conditions, A&N particles are found to represent about 26 % of the total aerosol DRF over Europe, yielding a decrease in surface. The presence of A&N aerosols is shown to cause a decrease in surface SW radiations of $5\,W\,m^{-2}$ in all sky conditions in the Po Valley over the period 1979–2016. The analysis of the different aerosol trends over the period 1979–2016 indicates that since 2005, the DRF due to A&N particles over Europe has become more important than those exerted by sulfate and organic particles. Finally, our model re-

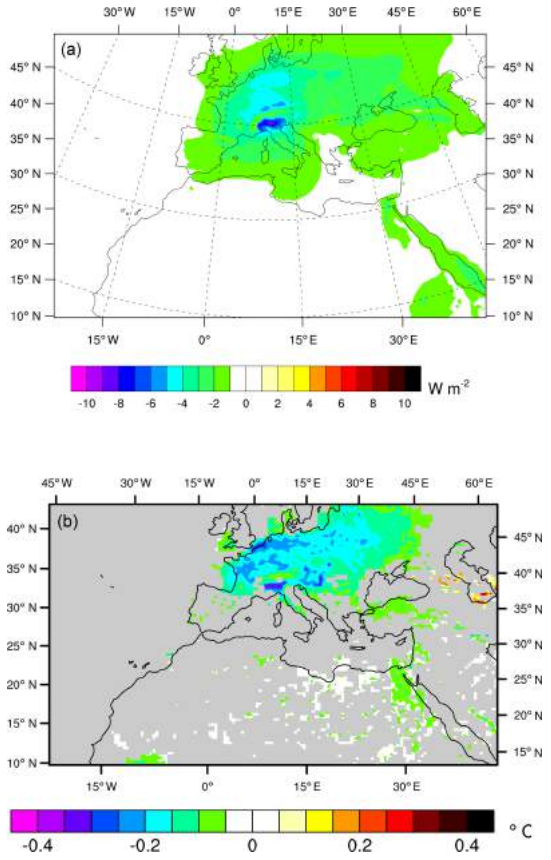

Figure 15. DRF SW (W m^{-2}, **a**) at the surface in all sky conditions and the A&N aerosols impact on the near-surface air temperature at 2 m (°C, **b**) on average over the period 1979–2016 in summer (JJA) obtained by difference between the REF and NIT simulations. For the temperature map, the grey area is not statistically significant at the 0.05 level.

sults indicate that the impact of A&N aerosol on surface SW radiations causes a cooling of $-0.2°$ during summer (June, July, August). But no significant effect of the DRF of A&N aerosols was found on precipitation. To go further, it would now be interesting to study the role of A&N aerosols over the Euro-Mediterranean region in future climate regional projections, as they are expected to have a larger contribution to anthropogenic AOD by the end of this century (Hauglustaine et al., 2014).

Data availability. This study relies entirely on publicly available data. MISR and MODIS AOD products can be obtained from the NASA Earthdata portal at https://earthdata.nasa.gov/ (last access: 19 March 2019). AERONET data are available at AERONET: https://aeronet.gsfc.nasa.gov/ (last access: 28 November 2018). EMEP data are available at EMEP: http://ebas.nilu.no/ (last access: 28 November 2018). Model outputs are available upon request from the authors (thomas.druge@meteo.fr). The HNO_3 comes from the CAMS Reanalysis (Flemming et al., 2017) and its annual cycle comes from Kasper and Puxbaum (1998). NH_3 data come from CMIP6 data at https://esgf-node.llnl.gov/search/cmip6/ (last access: 19 March 2019) and its annual cycle was defined using the MACCity emissions dataset at http://eccad.aeris-data.fr/\T1\textbackslash#DatasetPlace: (last access: 19 March 2019).

Author contributions. All authors designed the simulations and TD carried them out. All authors provided input on data analysis shown in the paper. PN and TD developed the model code. TD prepared the paper with contributions from all co-authors.

Competing interests. The authors declare that they have no conflict of interest.

Special issue statement. This article is part of the special issue "CHemistry and AeRosols Mediterranean EXperiments (ChArMEx) (ACP/AMT inter-journal SI)". It is not associated with a conference.

Acknowledgements. We would like to thank Météo-France and the Occitania region for the financial support of the first author. This work is part of the Med-CORDEX initiative (http://www.medcordex.eu, last access: 19 March 2019) and a contribution to the MISTRALS/ChArMEx programme. We thank the principal investigators of the AERONET and EMEP networks and their staff for establishing and maintaining the different sites used in this investigation. NASA Atmosphere Archive and Distribution System (LAADS, http://ladsweb.nascom.nasa.gov, last access: 19 March 2019) is acknowledged for making available the MODIS/Terra and Aqua Collection 6.1 aerosol datasets, as well as the MISR/Terra dataset. We also acknowledge the Copernicus Climate Change and Atmosphere Monitoring Services for providing us with the CAMS reanalysis and Samuel Remy for his help in integrating the nitrate and ammonium module in our model.

Review statement. This paper was edited by François Dulac and reviewed by two anonymous referees.

References

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

Allen, R. and Sherwood, S.: Aerosol-cloud semi-direct effect and land-sea temperature contrast in a GCM, Geophys. Res. Lett., 37, L07702, https://doi.org/10.1029/2010GL042759, 2010.

Bauer, S., Balkanski, Y., Schulz, M., Hauglustaine, D., and Dentener, F.: Global modeling of heterogeneous chemistry on min-

eral aerosol surfaces: Influence on tropospheric ozone chemistry and comparison to observations, J. Geophys. Res.-Atmos., 109, D02304, https://doi.org/10.1029/2003JD003868, 2004.

Bauer, S. E., Koch, D., Unger, N., Metzger, S. M., Shindell, D. T., and Streets, D. G.: Nitrate aerosols today and in 2030: a global simulation including aerosols and tropospheric ozone, Atmos. Chem. Phys., 7, 5043–5059, https://doi.org/10.5194/acp-7-5043-2007, 2007.

Bauer, S. E., Tsigaridis, K., and Miller, R.: Significant atmospheric aerosol pollution caused by world food cultivation, Geophys. Res. Lett., 43, 5394–5400, https://doi.org/10.1002/2016GL068354, 2016.

Bellouin, N., Rae, J., Jones, A., Johnson, C., Haywood, J., and Boucher, O.: Aerosol forcing in the Climate Model Intercomparison Project (CMIP5) simulations by HadGEM2-ES and the role of ammonium nitrate, J. Geophys. Res.-Atmos., 116, D20206, https://doi.org/10.1029/2011JD016074, 2011.

Bian, H., Chin, M., Hauglustaine, D. A., Schulz, M., Myhre, G., Bauer, S. E., Lund, M. T., Karydis, V. A., Kucsera, T. L., Pan, X., Pozzer, A., Skeie, R. B., Steenrod, S. D., Sudo, K., Tsigaridis, K., Tsimpidi, A. P., and Tsyro, S. G.: Investigation of global particulate nitrate from the AeroCom phase III experiment, Atmos. Chem. Phys., 17, 12911–12940, https://doi.org/10.5194/acp-17-12911-2017, 2017.

Bouwman, A., Lee, D., Asman, W., Dentener, F., Van Der Hoek, K., and Olivier, J.: A global high-resolution emission inventory for ammonia, Global Biogeochem. Cy., 11, 561–587, https://doi.org/10.1029/97GB02266, 1997.

Bréon, F.-M., Vermeulen, A., and Descloitres, J.: An evaluation of satellite aerosol products against sunphotometer measurements, Remote Sens. Environ., 115, 3102–3111, https://doi.org/10.1016/j.rse.2011.06.017, 2011.

Claquin, T., Schulz, M., and Balkanski, Y.: Modeling the mineralogy of atmospheric dust sources, J. Geophys. Res.-Atmos., 104, 22243–22256, https://doi.org/10.1029/1999JD900416, 1999.

Coakley Jr., J. A., Cess, R. D., and Yurevich, F. B.: The effect of tropospheric aerosols on the Earth's radiation budget: A parameterization for climate models, J. Atmos. Sci., 40, 116–138, https://doi.org/10.1175/1520-0469(1983)040<0116:TEOTAO>2.0.CO;2, 1983.

Daniel, M., Lemonsu, A., Deque, M., Somot, S., Alias, A., and Masson, V.: Benefits of explicit urban parametrization in regional climate modelling to study climate and city interactions, Clim. Dynam., 52, 2745–2764, https://doi.org/10.1007/s00382-018-4289-x, 2018.

Decharme, B., Alkama, R., Douville, H., Becker, M., and Cazenave, A.: Global evaluation of the ISBA-TRIP continental hydrological system. Part II: Uncertainties in river routing simulation related to flow velocity and groundwater storage, J. Hydrometeorol., 11, 601–617, https://doi.org/10.1175/2010JHM1212.1, 2010.

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, Atmos. Chem. Phys., 6, 4321–4344, https://doi.org/10.5194/acp-6-4321-2006, 2006.

Dentener, F. J. and Crutzen, P. J.: Reaction of N_2O_5 on tropospheric aerosols: Impact on the global distributions of NO_x, O_3, and OH, J. Geophys. Res.-Atmos., 98, 7149–7163, https://doi.org/10.1029/92JD02979, 1993.

Dimitroulopoulou, C. and Marsh, A.: Modelling studies of NO_3 nighttime chemistry and its effects on subsequent ozone formation, Atmos. Environ., 31, 3041–3057, https://doi.org/10.1016/S1352-2310(97)00033-2, 1997.

Eck, T., Holben, B., Reid, J., Dubovik, O., Smirnov, A., O'Neill, N., Slutsker, I., and Kinne, S.: Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban, and desert dust aerosols, J. Geophys. Res.-Atmos., 104, 31333–31349, https://doi.org/10.1029/1999JD900923, 1999.

Fairlie, T. D., Jacob, D. J., Dibb, J. E., Alexander, B., Avery, M. A., van Donkelaar, A., and Zhang, L.: Impact of mineral dust on nitrate, sulfate, and ozone in transpacific Asian pollution plumes, Atmos. Chem. Phys., 10, 3999–4012, https://doi.org/10.5194/acp-10-3999-2010, 2010.

Flemming, J., Benedetti, A., Inness, A., Engelen, R. J., Jones, L., Huijnen, V., Remy, S., Parrington, M., Suttie, M., Bozzo, A., Peuch, V.-H., Akritidis, D., and Katragkou, E.: The CAMS interim Reanalysis of Carbon Monoxide, Ozone and Aerosol for 2003–2015, Atmos. Chem. Phys., 17, 1945–1983, https://doi.org/10.5194/acp-17-1945-2017, 2017.

Foret, G., Bergametti, G., Dulac, F., and Menut, L.: An optimized particle size bin scheme for modeling mineral dust aerosol, J. Geophys. Res.-Atmos., 111, D17310, https://doi.org/10.1029/2005JD006797, 2006.

Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Van Dorland, R.: 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, Cambridge University Press, Cambridge, UK and New York, NY, USA, 2007.

Fouquart, Y. and Bonnel, B.: Computations of solar heating of the earth's atmosphere – A new parameterization, Beitraege zur Physik der Atmosphaere, 53, 35–62, 1980.

Georgoulias, A., Alexandri, G., Kourtidis, K., Lelieveld, J., Zanis, P., and Amiridis, V.: Differences between the MODIS Collection 6 and 5.1 aerosol datasets over the greater Mediterranean region, Atmos. Environ., 147, 310–319, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.10.014, 2016.

Georgoulias, A. K., van der A, R. J., Stammes, P., Boersma, K. F., and Eskes, H. J.: Trends and trend reversal detection in two decades of tropospheric NO_2 satellite observations, Atmos. Chem. Phys. Discuss., https://doi.org/10.5194/acp-2018-988, in review, 2018.

Gibson, E. R., Hudson, P. K., and Grassian, V. H.: Aerosol chemistry and climate: Laboratory studies of the carbonate component of mineral dust and its reaction products, Geophys. Res. Lett., 33, L13811, https://doi.org/10.1029/2006GL026386, 2006.

Hansen, J., Sato, M., and Ruedy, R.: Radiative forcing and climate response, J. Geophys. Res.-Atmos., 102, 6831–6864, https://doi.org/10.1029/96JD03436, 1997.

Hauglustaine, D. A., Balkanski, Y., and Schulz, M.: A global model simulation of present and future nitrate aerosols and their direct radiative forcing of climate, Atmos. Chem. Phys., 14, 11031–11063, https://doi.org/10.5194/acp-14-11031-2014, 2014.

Hilboll, A., Richter, A., and Burrows, J. P.: Long-term changes of tropospheric NO_2 over megacities derived from multiple satellite instruments, Atmos. Chem. Phys., 13, 4145–4169, https://doi.org/10.5194/acp-13-4145-2013, 2013.

Holben, B. N., Tanré, D., Smirnov, A., Eck, T., Slutsker, I., Abuhassan, N., Newcomb, W., Schafer, J., Chatenet, B., Lavenu, F., Kaufman, Y. J., Vande Castle, J., Setzer, A., Markham, B., Clark, D., Frouin, R., Halthore, R., Karneli, A., O'Neill, N. T., Pietras, C., Pinker, R. T., Voss, K., and Zibordi, G.: An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol optical depth from AERONET, J. Geophys. Res.-Atmos., 106, 12067–12097, https://doi.org/10.1029/2001JD900014, 2001.

Jacobson, M. Z.: Studying the effects of calcium and magnesium on size-distributed nitrate and ammonium with EQUISOLV II, Atmos. Environ., 33, 3635–3649, https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00105-3, 1999.

Jordan, C., Dibb, J. E., Anderson, B., and Fuelberg, H.: Uptake of nitrate and sulfate on dust aerosols during TRACE-P, J. Geophys. Res.-Atmos., 108, 8817, https://doi.org/10.1029/2002JD003101, 2003.

Kahn, R. A. and Gaitley, B. J.: An analysis of global aerosol type as retrieved by MISR, J. Geophys. Res.-Atmos., 120, 4248–4281, https://doi.org/10.1002/2015JD023322, 2015.

Kahn, R. A., Gaitley, B. J., Garay, M. J., Diner, D. J., Eck, T. F., Smirnov, A., and Holben, B. N.: Multiangle Imaging SpectroRadiometer global aerosol product assessment by comparison with the Aerosol Robotic Network, J. Geophys. Res.-Atmos., 115, D23209, https://doi.org/10.1029/2010JD014601, 2010.

Karydis, V. A., Tsimpidi, A. P., Bacer, S., Pozzer, A., Nenes, A., and Lelieveld, J.: Global impact of mineral dust on cloud droplet number concentration, Atmos. Chem. Phys., 17, 5601–5621, https://doi.org/10.5194/acp-17-5601-2017, 2017.

Kasper, A. and Puxbaum, H.: Seasonal variation of SO_2, HNO_3, NH_3 and selected aerosol components at Sonnblick (3106 m a.s.l.), Atmos. Environ., 32, 3925–3939, https://doi.org/10.1016/S1352-2310(97)00031-9, 1998.

Kaufman, Y. J., Tanré, D., Remer, L. A., Vermote, E., Chu, A., and Holben, B.: Operational remote sensing of tropospheric aerosol over land from EOS moderate resolution imaging spectroradiometer, J. Geophys. Res.-Atmos., 102, 17051–17067, https://doi.org/10.1029/96JD03988, 1997.

Kiendler-Scharr, A., Mensah, A. A., Friese, E., Topping, D., Nemitz, E., Prévôt, A. S. H., Äijälä, M., Allan, J., Canonaco, F., Canagaratna, M., Carbone, S., Crippa, M., Dall Osto, M., Day, D. A., De Carlo, P., Di Marco, C. F., Elbern, H., Eriksson, A., Freney, E., Hao, L., Herrmann, H., Hildebrandt, L., Hillamo, R., Jimenez, J. L., Laaksonen, A., McFiggans, G., Mohr, C., O'Dowd, C., Otjes, R., Ovadnevaite, J., Pandis, S. N., Poulain, L., Schlag, P., Sellegri, K., Swietlicki, E., Tiitta, P., Vermeulen, A., Wahner, A., Worsnop, D., and Wu, H. C.: Ubiquity of organic nitrates from nighttime chemistry in the European submicron aerosol, Geophys. Res. Lett., 43, 7735–7744, https://doi.org/10.1002/2016GL069239, 2016.

Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P. J., Dentener, F. J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P. J., Heland, J., Holzinger, R., Korrmann, R., Lawrence, M. G., Levin, Z., Markowicz, K. M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., de Reus, M., Roelofs, G. J., Scheeren, H.A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E. G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., and Ziereis, H.: Global air pollution crossroads over the Mediterranean, Science, 298, 794–799, https://doi.org/10.1126/science.1075457, 2002.

Li, J., Wang, W.-C., Liao, H., and Chang, W.: Past and future direct radiative forcing of nitrate aerosol in East Asia, Theor. Appl. Climatol., 121, 445–458, https://doi.org/10.1007/s00704-014-1249-1, 2014.

Lohmann, U. and Feichter, J.: Global indirect aerosol effects: a review, Atmos. Chem. Phys., 5, 715–737, https://doi.org/10.5194/acp-5-715-2005, 2005.

Manktelow, P. T., Carslaw, K. S., Mann, G. W., and Spracklen, D. V.: The impact of dust on sulfate aerosol, CN and CCN during an East Asian dust storm, Atmos. Chem. Phys., 10, 365–382, https://doi.org/10.5194/acp-10-365-2010, 2010.

Masson, V., Le Moigne, P., Martin, E., Faroux, S., Alias, A., Alkama, R., Belamari, S., Barbu, A., Boone, A., Bouyssel, F., Brousseau, P., Brun, E., Calvet, J.-C., Carrer, D., Decharme, B., Delire, C., Donier, S., Essaouini, K., Gibelin, A.-L., Giordani, H., Habets, F., Jidane, M., Kerdraon, G., Kourzeneva, E., Lafaysse, M., Lafont, S., Lebeaupin Brossier, C., Lemonsu, A., Mahfouf, J.-F., Marguinaud, P., Mokhtari, M., Morin, S., Pigeon, G., Salgado, R., Seity, Y., Taillefer, F., Tanguy, G., Tulet, P., Vincendon, B., Vionnet, V., and Voldoire, A.: The SURFEXv7.2 land and ocean surface platform for coupled or offline simulation of earth surface variables and fluxes, Geosci. Model Dev., 6, 929–960, https://doi.org/10.5194/gmd-6-929-2013, 2013.

Metzger, S., Dentener, F., Pandis, S., and Lelieveld, J.: Gas/aerosol partitioning: 1. A computationally efficient model, J. Geophys. Res.-Atmos., 107, 4312, https://doi.org/10.1029/2001JD001102, 2002.

Michou, M., Nabat, P., and Saint-Martin, D.: Development and basic evaluation of a prognostic aerosol scheme (v1) in the CNRM Climate Model CNRM-CM6, Geosci. Model Dev., 8, 501–531, https://doi.org/10.5194/gmd-8-501-2015, 2015.

Mitchell, J. M.: The effect of atmospheric aerosols on climate with special reference to temperature near the Earth's surface, J. Appl. Meteorol., 10, 703–714, https://doi.org/10.1175/1520-0450(1971)010<0703:TEOAAO>2.0.CO;2, 1971.

Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J., and Clough, S. A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave, J. Geophys. Res.-Atmos., 102, 16663–16682, https://doi.org/10.1029/97JD00237, 1997.

Moffet, R. C., Qin, X., Rebotier, T., Furutani, H., and Prather, K. A.: Chemically segregated optical and microphysical properties of ambient aerosols measured in a single-particle mass spectrometer, J. Geophys. Res.-Atmos., 113, D12213, https://doi.org/10.1029/2007JD009393, 2008.

Morcrette, J., Barker, H., Cole, J., Iacono, M., and Pincus, R.: Impact of a new radiation package, McRad, in the ECMWF Integrated Forecasting System, Mon. Weather Rev., 136, 4773–4798, https://doi.org/10.1175/2008MWR2363.1, 2008.

Morcrette, J.-J., Boucher, O., Jones, L., Salmond, D., Bechtold, P., Beljaars, A., Benedetti, A., Bonet, A., Kaiser, J. W., Razinger, M., Schulz, M., Serrar, S., Simmons, A. J., Sofiev, M., Suttie, M., Tompkins, A. M., and Untch, A.: Aerosol analysis and forecast in the European Centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system: Forward modeling, J. Geophys. Res.-

Atmos., 114, D06206, https://doi.org/10.1029/2008JD011235, 2009.

Moulin, C., Lambert, C., Dayan, U., Masson, V., Ramonet, M., Bousquet, P., Legrand, M., Balkanski, Y., Guelle, W., Marticorena, B., Bergametti, G., and Dulac, F.: Satellite climatology of African dust transport in the Mediterranean atmosphere, J. Geophys. Res.-Atmos., 103, 13137–13144, https://doi.org/10.1029/98JD00171, 1998.

Mozurkewich, M.: The dissociation constant of ammonium nitrate and its dependence on temperature, relative humidity and particle size, Atmos. Environ. A-Gen., 27, 261–270, https://doi.org/10.1016/0960-1686(93)90356-4, 1993.

Myhre, G., Grini, A., and Metzger, S.: Modelling of nitrate and ammonium-containing aerosols in presence of sea salt, Atmos. Chem. Phys., 6, 4809–4821, https://doi.org/10.5194/acp-6-4809-2006, 2006.

Myhre, G., Samset, B. H., Schulz, M., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T. K., Bian, H., Bellouin, N., Chin, M., Diehl, T., Easter, R. C., Feichter, J., Ghan, S. J., Hauglustaine, D., Iversen, T., Kinne, S., Kirkevåg, A., Lamarque, J.-F., Lin, G., Liu, X., Lund, M. T., Luo, G., Ma, X., van Noije, T., Penner, J. E., Rasch, P. J., Ruiz, A., Seland, Ø., Skeie, R. B., Stier, P., Takemura, T., Tsigaridis, K., Wang, P., Wang, Z., Xu, L., Yu, H., Yu, F., Yoon, J.-H., Zhang, K., Zhang, H., and Zhou, C.: Radiative forcing of the direct aerosol effect from AeroCom Phase II simulations, Atmos. Chem. Phys., 13, 1853–1877, https://doi.org/10.5194/acp-13-1853-2013, 2013.

Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Chiapello, I., Morcrette, J. J., Solmon, F., Szopa, S., Dulac, F., Collins, W., Ghan, S., Horowitz, L. W., Lamarque, J. F., Lee, Y. H., Naik, V., Nagashima, T., Shindell, D., and Skeie, R.: A 4-D climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the Mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products, Atmos. Meas. Tech., 6, 1287–1314, https://doi.org/10.5194/amt-6-1287-2013, 2013.

Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech, F., Meloni, D., di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., Sicard, M., Léon, J.-F., and Bouin, M.-N.: Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol–atmosphere–ocean model over the Mediterranean, Atmos. Chem. Phys., 15, 3303–3326, https://doi.org/10.5194/acp-15-3303-2015, 2015a.

Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Sevault, F., Chiacchio, M., and Wild, M.: Direct and semi-direct aerosol radiative effect on the Mediterranean climate variability using a coupled regional climate system model, Clim. Dynam., 44, 1127–1155, https://doi.org/10.1007/s00382-014-2205-6, 2015b.

Nabat, P., Somot, S., and Mallet, M.: Les aérosols, composants essentiels du système climatique régional: illustrations pour le climat méditerranéen (prix Prud'homme 2015), La météorologie, France, https://doi.org/10.4267/2042/60701, 2016.

Noilhan, J. and Mahfouf, J.-F.: The ISBA land surface parameterisation scheme, Global Planet. Change, 13, 145–159, https://doi.org/10.1016/0921-8181(95)00043-7, 1996.

Olivier, J. G. J., Bouwman, A. F., Van der Hoek, K. W., and Berdowski, J. J. M.: Global air emission inventories for anthropogenic sources of NO_x, NH_3 and N_2O in 1990, Environ. Pollut., 102, 135–148, https://doi.org/10.1016/B978-0-08-043201-4.50024-1, 1998.

O'Neill, B. C., Tebaldi, C., van Vuuren, D. P., Eyring, V., Friedlingstein, P., Hurtt, G., Knutti, R., Kriegler, E., Lamarque, J.-F., Lowe, J., Meehl, G. A., Moss, R., Riahi, K., and Sanderson, B. M.: The Scenario Model Intercomparison Project (ScenarioMIP) for CMIP6, Geosci. Model Dev., 9, 3461–3482, https://doi.org/10.5194/gmd-9-3461-2016, 2016.

Papadimas, C. D., Hatzianastassiou, N., Matsoukas, C., Kanakidou, M., Mihalopoulos, N., and Vardavas, I.: The direct effect of aerosols on solar radiation over the broader Mediterranean basin, Atmos. Chem. Phys., 12, 7165–7185, https://doi.org/10.5194/acp-12-7165-2012, 2012.

Paulot, F., Jacob, D. J., Pinder, R., Bash, J., Travis, K., and Henze, D.: Ammonia emissions in the United States, European Union, and China derived by high-resolution inversion of ammonium wet deposition data: Interpretation with a new agricultural emissions inventory (MASAGE_NH3), J. Geophys. Res.-Atmos., 119, 4343–4364, https://doi.org/10.1002/2013JD021130, 2014.

Paulot, F., Paynter, D., Ginoux, P., Naik, V., and Horowitz, L. W.: Changes in the aerosol direct radiative forcing from 2001 to 2015: observational constraints and regional mechanisms, Atmos. Chem. Phys., 18, 13265–13281, https://doi.org/10.5194/acp-18-13265-2018, 2018.

Prospero, J. M., Ginoux, P., Torres, O., Nicholson, S. E., and Gill, T. E.: 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, 2–1, https://doi.org/10.1029/2000RG000095, 2002.

Putaud, J., Raes, F., van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M. C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hüglin, C., Laj, P., Lorbeer, G., Maenhaut, W., Mihalopoulos, N., Müller, K., Querol, X., Rodriguez, S., Schneider, J., Spindler, G., tenBrink, H., Torseth, K., and Wiedensohler, A.: A European aerosol phenomenology – 2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe, Atmos. Environ., 38, 2579–2595, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.01.041, 2004.

Radu, R., Déqué, M., and Somot, S.: Spectral nudging in a spectral regional climate model, Tellus A, 60, 898–910, https://doi.org/10.1111/j.1600-0870.2008.00341.x, 2008.

Sayer, A., Munchak, L., Hsu, N., Levy, R., Bettenhausen, C., and Jeong, M.-J.: MODIS Collection 6 aerosol products: Comparison between Aqua's e-Deep Blue, Dark Target, and "merged" data sets, and usage recommendations, J. Geophys. Res.-Atmos., 119, 13965–13989, https://doi.org/10.1002/2014JD022453, 2014.

Schaap, M., Müller, K., and Ten Brink, H.: Constructing the European aerosol nitrate concentration field from quality analysed data, Atmos. Environ., 36, 1323–1335, https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00556-8, 2002.

Schaap, M., van Loon, M., ten Brink, H. M., Dentener, F. J., and Builtjes, P. J. H.: Secondary inorganic aerosol simulations for Europe with special attention to nitrate, Atmos. Chem. Phys., 4, 857–874, https://doi.org/10.5194/acp-4-857-2004, 2004.

Seinfeld, J. H., Pandis, S. N., and Noone, K.: Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change, Phys. Today, 51, p. 88, https://doi.org/10.1063/1.882420, 1998.

Shindell, D. T., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Flanner, M., Jiao, C., Chin, M., Young, P. J., Lee, Y. H., Rotstayn, L., Mahowald, N., Milly, G., Faluvegi, G., Balkanski, Y., Collins, W. J., Conley,

A. J., Dalsoren, S., Easter, R., Ghan, S., Horowitz, L., Liu, X., Myhre, G., Nagashima, T., Naik, V., Rumbold, S. T., Skeie, R., Sudo, K., Szopa, S., Takemura, T., Voulgarakis, A., Yoon, J.-H., and Lo, F.: Radiative forcing in the ACCMIP historical and future climate simulations, Atmos. Chem. Phys., 13, 2939–2974, https://doi.org/10.5194/acp-13-2939-2013, 2013.

Tang, I. N.: Deliquescence properties and particle size change of hygroscopic aerosols, Tech. rep., Brookhaven National Lab., Upton, NY (USA), available at: https://www.osti.gov/servlets/purl/5527062 (last access: 19 March 2019), 1979.

Tang, T., Shindell, D., Samset, B. H., Boucher, O., Forster, P. M., Hodnebrog, Ø., Myhre, G., Sillmann, J., Voulgarakis, A., Andrews, T., Faluvegi, G., Fläschner, D., Iversen, T., Kasoar, M., Kharin, V., Kirkevåg, A., Lamarque, J.-F., Olivié, D., Richardson, T., Stjern, C. W., and Takemura, T.: Dynamical response of Mediterranean precipitation to greenhouse gases and aerosols, Atmos. Chem. Phys., 18, 8439–8452, https://doi.org/10.5194/acp-18-8439-2018, 2018.

Tanré, D., Kaufman, Y., Herman, M., and Mattoo, S.: Remote sensing of aerosol properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances, J. Geophys. Res.-Atmos., 102, 16971–16988, https://doi.org/10.1029/96JD03437, 1997.

Toon, O. B. and Ackerman, T.: Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres, Appl. Optics, 20, 3657–3660, https://doi.org/10.1364/AO.20.003657, 1981.

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

Trail, M., Tsimpidi, A., Liu, P., Tsigaridis, K., Rudokas, J., Miller, P., Nenes, A., Hu, Y., and Russell, A.: Sensitivity of air quality to potential future climate change and emissions in the United States and major cities, Atmos. Environ., 94, 552–563, https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2014.05.079, 2014.

Twomey, S.: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, J. Atmos. Sci., 34, 1149–1152, https://doi.org/10.1175/1520-0469(1977)034<1149:TIOPOT>2.0.CO;2, 1977.

Zanis, P.: A study on the direct effect of anthropogenic aerosols on near surface air temperature over Southeastern Europe during summer 2000 based on regional climate modeling, Ann. Geophys., 27, 3977–3988, https://doi.org/10.5194/angeo-27-3977-2009, 2009.

Zanis, P., Ntogras, C., Zakey, A., Pytharoulis, I., and Karacostas, T.: Regional climate feedback of anthropogenic aerosols over Europe using RegCM3, Clim. Res., 52, 267–278, https://doi.org/10.3354/cr01070, 2012.

Zhuang, H., Chan, C. K., Fang, M., and Wexler, A. S.: Size distributions of particulate sulfate, nitrate, and ammonium at a coastal site in Hong Kong, Atmos. Environ., 33, 843–853, https://doi.org/10.1016/S1352-2310(98)00305-7, 1999.

2.4 Conclusions et perspectives

Ce premier travail a donc permis de développer une nouvelle configuration du schéma d'aérosols TACTIC du modèle régional ALADIN-Climat en y ajoutant les aérosols de nitrate et d'ammonium. Ces nouvelles particules ont permis d'améliorer le modèle en terme de représentation des aérosols notamment en réduisant le biais du cycle annuel de l'AOD totale. Cette amélioration est surtout visible sur les zones à forte concentration de nitrate et d'ammonium comme le Benelux et la vallée du Pô. Néanmoins, quelques biais sont encore présents comme une surestimation de l'AOD durant le printemps sur l'Europe ou une sous-estimation durant l'été sur la Méditerranée. Des cycles annuels de précurseurs de nitrate et d'ammonium comme l'ammoniac et l'acide nitrique encore plus réalistes pourraient permettre à l'avenir de réduire ces biais. Concernant l'acide nitrique, une meilleure prise en compte de sa variabilité notamment entre le jour et la nuit pourrait rendre la climatologie plus réaliste. Un test supplémentaire pourrait également être envisagé en utilisant les données des différents modèles du projet CCMI (Chemistry–Climate Model Initiative, Morgenstern et al. 2017). Pour finir, les différents biais observés ici peuvent être aussi dûs à l'absence de certaines particules dans le schéma d'aérosols TACTIC comme les aérosols organiques secondaires ou les nitrates d'origine organique.

Ce nouveau schéma d'aérosols a permis de mettre en évidence le rôle relativement important des aérosols de nitrate et d'ammonium, qui dépassent les sulfates et le carbone organique en terme de forçage radiatif direct à partir de l'année 2005 sur l'Europe. Cela serait dû à la baisse de la production des aérosols de sulfate sur l'Europe depuis les années 1980, qui conduirait à une hausse de l'ammoniac libre dans l'atmosphère, entraînant donc une augmentation de la production de nitrate et d'ammonium. En moyenne, sur l'ensemble de la période 1979-2016, les particules de nitrate et d'ammonium ont un forçage radiatif direct dans les courtes longueurs d'onde de -1.7 W m^{-2} à la surface et de -1.4 W m^{-2} au sommet de l'atmosphère, avec un maximum régional en surface localisé sur la vallée du Pô (-5 W m^{-2}). Cet effet assombrissant des particules de nitrate et d'ammonium entraîne un refroidissement sur l'Europe durant l'été pouvant atteindre 0.4°C sur la vallée du Pô. Cette étude a donc montré que les aérosols de nitrate et d'ammonium étaient importants à prendre en compte dans l'étude du climat présent de la région méditerranéenne. De plus, comme mentionné précédemment, leur contribution à l'AOD anthropique va augmenter au cours de ce siècle. Grâce à l'implémentation de ces aérosols dans le schéma d'aérosols TACTIC, le modèle régional ALADIN-Climat permet maintenant de s'intéresser à la question de l'évolution future des aérosols sur la région méditerranéenne ainsi qu'à l'impact de ces différentes particules sur le climat futur

de la région. En outre, la mise en place d'un schéma de chimie troposphérique dans le modèle ALADIN-Climat permettrait, notamment, une meilleure prise en compte des aérosols de nitrate et d'ammonium au travers une paramétrisation plus élaborée des émissions ou de la production de leurs précurseurs comme l'ammoniac ou l'acide nitrique. Un autre travail intéressant, qui n'a pas pu être effectué au cours de cette thèse par manque de temps, serait de faire varier la climatologie d'acide nitrique utilisée ici en fonction de l'évolution des oxydes d'azote (NOx) qui sont l'un des principaux précurseurs de l'acide nitrique, ce qui permettrait d'avoir une climatologie d'HNO^3 plus réaliste en période future.

Chapitre 3

Évolution des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne entre la période 1971-2000 et 2021-2050

Sommaire

3.1 Méthodologie 85
3.2 Émissions CMIP6 88
3.3 Étude de l'évolution des aérosols avec le modèle régional ALADIN-Climat 94
3.4 Comparaison de l'évolution de l'AOD entre le modèle CNRM-ESM2-1 et ALADIN-Climat 120

Le chapitre précédent nous a permis de présenter et d'évaluer le schéma d'aérosols TACTIC dans lequel ont été implémentées les particules de nitrate et d'ammonium. Grâce à ce nouveau schéma d'aérosols, nous allons étudier dans ce troisième chapitre de thèse l'évolution des différents aérosols entre la période passée allant de 1971 à 2000 et la période future, qui elle va de 2021 à 2050. Cette période a été sélectionnée dans un futur proche car, contrairement aux gaz à effet de serre, les changements d'aérosols les plus importants sont attendus d'ici le milieu du siècle. De plus cet horizon proche est la période la plus adaptée pour aider les décideurs publics à appréhender au mieux les enjeux du changement climatique. Dans un premier temps, avant l'étude de l'évolution des aérosols grâce au modèle ALADIN-Climat, le choix des différents scénarios et simulations utilisés durant ce travail ainsi que l'évolution des émissions CMIP6 des aérosols ou précurseurs d'aérosols anthropiques sur le XXI$^{\text{ème}}$ siècle seront discutés.

3.1 Méthodologie

Afin d'étudier l'évolution des différents aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne, nous avons fait le choix de réaliser une simulation sur la période passée (1971-

2000) ainsi que trois simulations sur la période future (2021-2050) en fonction de trois combinaisons différentes de SSP et de RCP qui sont le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5. Le choix de ces combinaisons est expliqué dans la partie 3.2, ci-dessous. Ces quatre simulations seront respectivement nommées Hist, SSP119, SSP370 et SSP585. Une quatrième simulation a aussi été réalisée avec le SSP 5-8.5, nommée SSP585cst, qui est similaire à la simulation SSP585 mais avec des émissions d'aérosols constantes qui correspondent à la moyenne des émissions historiques. Pour rappel, ces cinq simulations de 50 km de résolution ont été réalisées avec le modèle ALADIN-Climat incluant le schéma d'aérosols TACTIC, en étant non couplé à l'océan et en utilisant le jeu de données CMIP6 pour l'émission des différents aérosols ou précurseurs d'aérosols. De plus, les changements d'usage des sols ne sont pas considérés ici. Le Tableau 3.1 résume les différentes caractéristiques de ces cinq simulations utilisées au cours de ce chapitre ainsi qu'au cours du chapitre 4.

	Hist	**SSP119**	**SSP370**	**SSP585**	**SSP585cst**
Émission des aérosols anthropiques	CEDS	CMIP6	CMIP6	CMIP6	CEDS (moyenne)
Scénario	/	SSP 1-1.9	SSP 3-7.0	SSP 5-8.5	SSP 5-8.5
Période	1971-2000	2021-2050	2021-2050	2021-2050	2021-2050

Table 3.1 – Présentation des principales caractéristiques des cinq simulations utilisées au cours des chapitres 3 et 4 de la thèse.

Ces différentes simulations sont toutes forcées par le modèle de Système Terre d'une résolution de 150 km, nommé CNRM-ESM2-1 (Séférian et al., in prep.) et présenté sur la Figure 3.1, qui est développé par le groupe de modélisation CNRM / CERFACS (Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique). Le coeur physique de ce modèle Système Terre est le modèle couplé océan-atmosphère global CNRM-CM, incluant une représentation du cycle du carbone global ainsi que de la chimie stratosphérique, dont la version 6 est utilisée ici (Voldoire et al., 2019). CNRM-ESM2-1 est principalement dédié à la réalisation de scénarios climatiques et est constitué de plusieurs modèles différents. Comme présenté sur la Figure 3.1, ce modèle intègre le modèle ARPEGE-Climat (action de recherche petite échelle grande échelle, Déqué et al. 1994) ainsi que le schéma de chimie atmosphérique interactive REPROBUS (Reactive Processes Ruling the Ozone Budget in the Stratosphere, Lefevre et al. 1994) pour la modélisation de l'atmosphère. Tout comme le modèle ALADIN-Climat, celui-ci utilise un schéma pronos-

tique d'aérosols incluant l'ensemble des aérosols présents dans le modèle ALADIN-Climat à l'exception des nitrates et de l'ammonium. La Figure 3.1 montre que le modèle CNRM-ESM2-1 intègre également la plateforme de modélisation de surfaces continentales SURFEX (Masson et al., 2013), déjà présentée au début du chapitre 2, incluant le modèle de surfaces terrestres ISBA-CTRIP (Decharme et al., 2019) ainsi qu'une version revisitée du modèle de lac Flake (Fresh-water Lake model). Ces différents modèles sont aussi couplés, à l'aide du coupleur OASIS-MCT (Craig et al., 2017), avec le modèle océanique NEMO (Nucleus for European Modelling of the Ocean, Madec et al. 2017) mais aussi avec le schéma de glace de mer GELATO (Global Experimental Leads and Ice for Atmosphere and Ocean, Mélia 2002 ainsi que le module de biogéochimie marine PISCES (Pelagic Interaction Scheme for Carbon and Ecosystem Studies, Aumont and Bopp 2006).

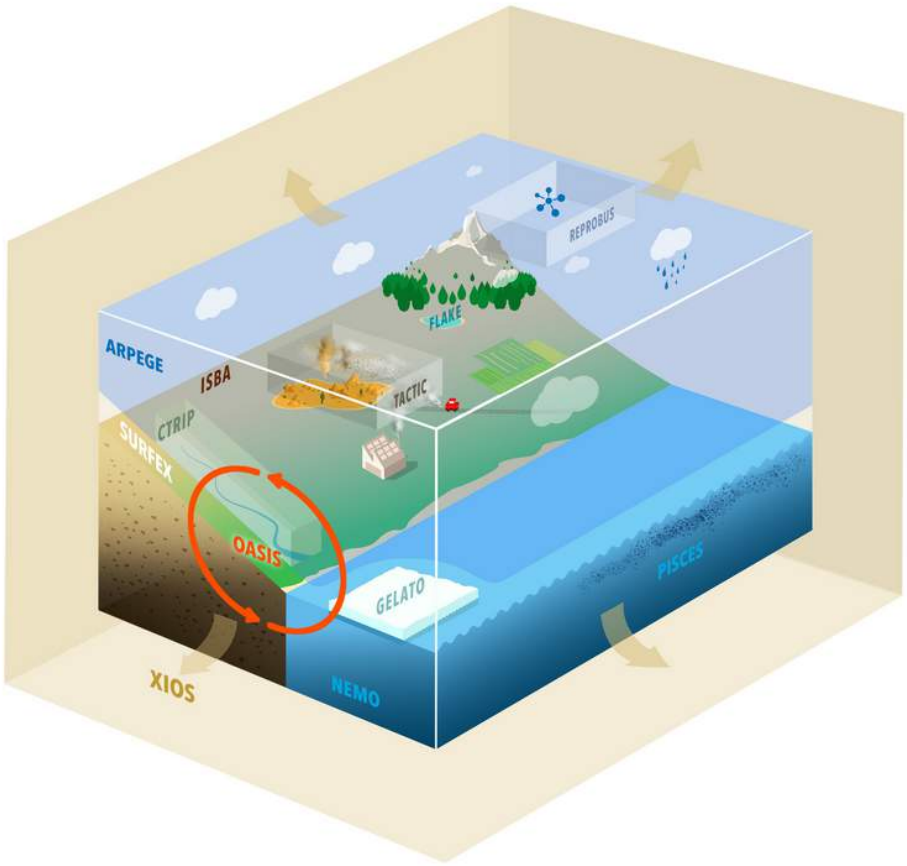

Figure 3.1 – Le modèle global CNRM-ESM2-1 et ses différentes composantes.

Pour finir, le modèle CNRM-ESM2-1 est interfacé avec XIOS (Y, 2018), un logiciel permettant d'avoir des sorties de modèle configurées et éliminant ainsi presque totalement la nécessité d'un post-traitement. Toutes ces composantes du modèle CNRM-ESM2-1 sont présentées plus en détail dans Voldoire et al. (2019).

Suite à la présentation des émissions CMIP6 des aérosols et des précurseurs d'aérosols anthropiques, qui vont par ailleurs expliquer le choix des différents scénarios utilisés au cours de ce travail, les simulations Hist, SSP119, SSP370 et SSP585 permettront d'étudier l'évolution des émissions, de la concentration (massique et à la surface), de l'AOD ainsi que du forçage radiatif direct des différents aérosols entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 sur la région Euro-Méditerranéenne. Suite à cela, la comparaison des simulations SSP585 et SSP585cst nous permettra de s'intéresser à la question de l'impact de l'évolution des aérosols sur le climat européen. Il est à noter que le test statistique utilisé sur l'ensemble des figures des chapitres 3 et 4 est le test FDR (False Discovery Rate) détaillé dans Wilks (2006).

3.2 Émissions CMIP6

Comme mentionné dans l'introduction, les scénarios CMIP6 sont construits en parallèle entre les climatologues et les sociologues-économistes, et reposent sur l'idée que les différents RCPs peuvent résulter de plusieurs combinaisons d'évolutions à la fois sociétales, économiques et politiques représentées par les SSPs (Gidden et al., 2019). Les émissions d'aérosols ou précurseurs d'aérosols CMIP6 historiques (CEDS), déjà évoquées dans le chapitre 2, se basent sur deux sources principales. En effet, Hoesly et al. (2018) et Van Marle et al. (2017) fournissent à la fois les émissions anthropiques des différents aérosols et de leurs précurseurs provenant des principaux secteurs d'activité (résidentiel, agriculture, énergie, industriel, transport terrestre et maritime, déchets, solvant, aérien), pour chaque pays, ainsi que les émissions provenant des feux de biomasse (naturels et anthropiques) sur la période 1750-2014. Quant aux émissions futures, elles sont issues des différents SSP présentés dans la section 1.3.1 du chapitre 1. L'intégralité des émissions CMIP6 sont décrites plus en détail dans Gidden et al. (2019).

Les émissions CEDS et CMIP6 des différents aérosols ou précurseurs d'aérosols anthropiques (carbone suie, carbone organique, ammoniac et dioxyde de soufre), de 1971 à 2100 sur l'Europe, sont présentées sur les Figures 3.2 et 3.3 en fonction des différents scénarios existants. Ces émissions sont divisées entre celles provenant des différents secteurs d'activité humaine que nous appellerons émissions anthropiques (Figure 3.2) et celles provenant des feux de biomasse qui nous appellerons émissions feux (Figure 3.3).

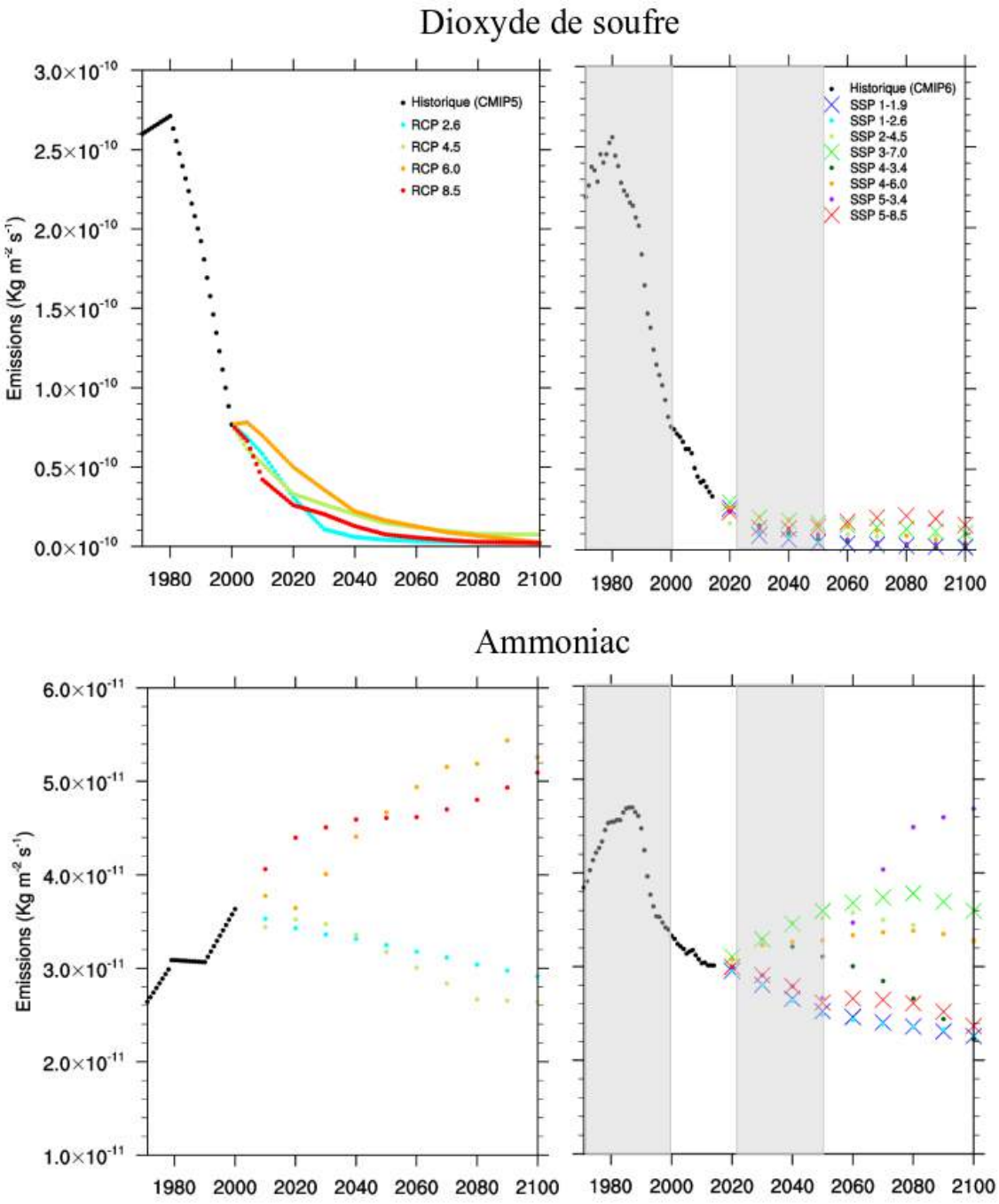

Figure 3.2 – Émissions ($\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$) CEDS et CMIP6 (droite), sur l'Europe, provenant des principaux secteurs d'activité humaine (résidentiel, agriculture, énergie, industriel, transport terrestre et maritime, déchets, solvant, aérien) comparées aux émissions CMIP5 (gauche) pour le dioxyde de soufre, l'ammoniac, le carbone suie et le carbone organique. Les croix symbolisent les 3 scénarios choisis pour ce travail de thèse (SSP 1-1.9, SSP 3-7.0 et SSP 5-8.5). Les barres grisées mettent en évidence la période passée et future des simulations.

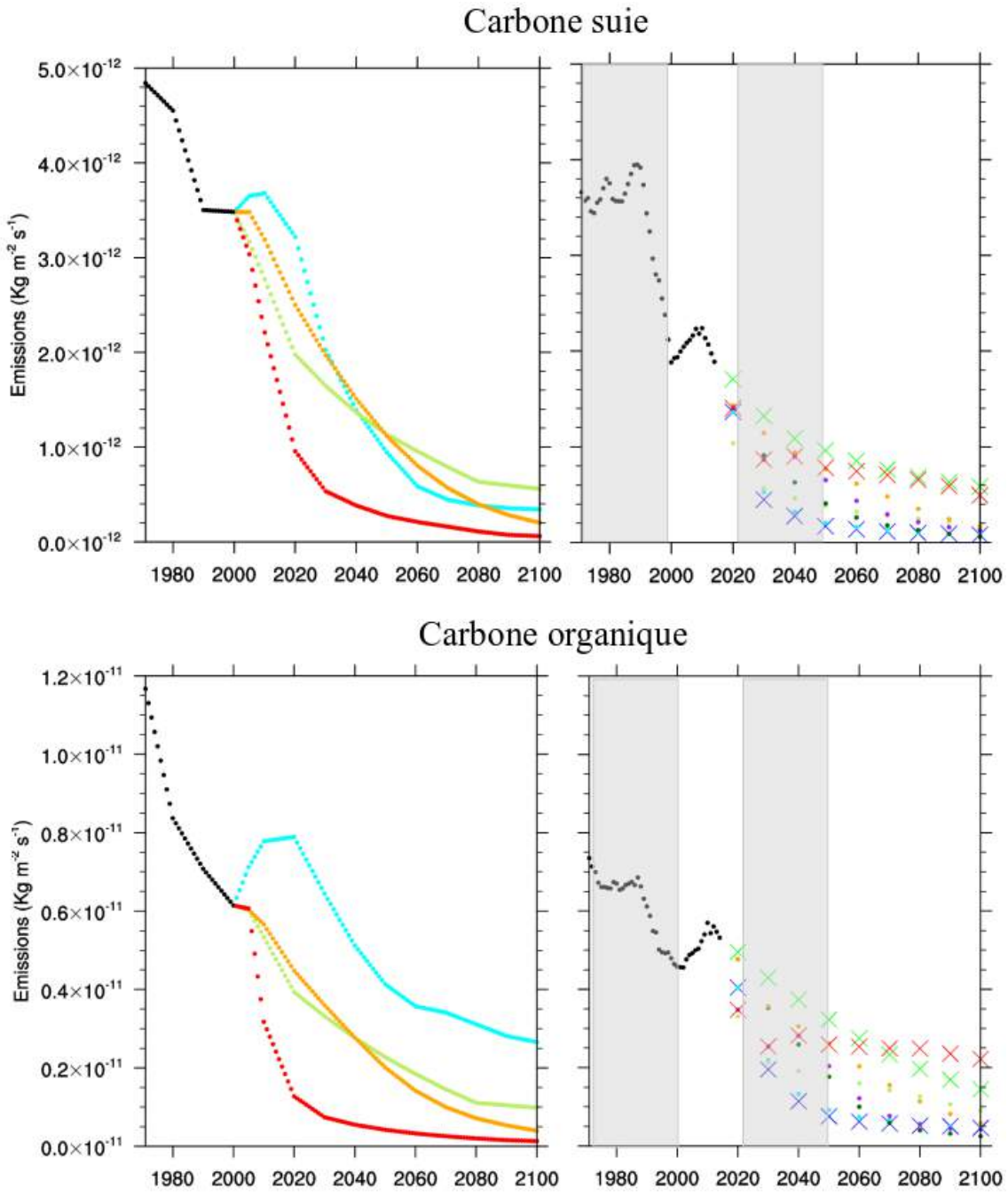

Figure 3.2 – Suite.

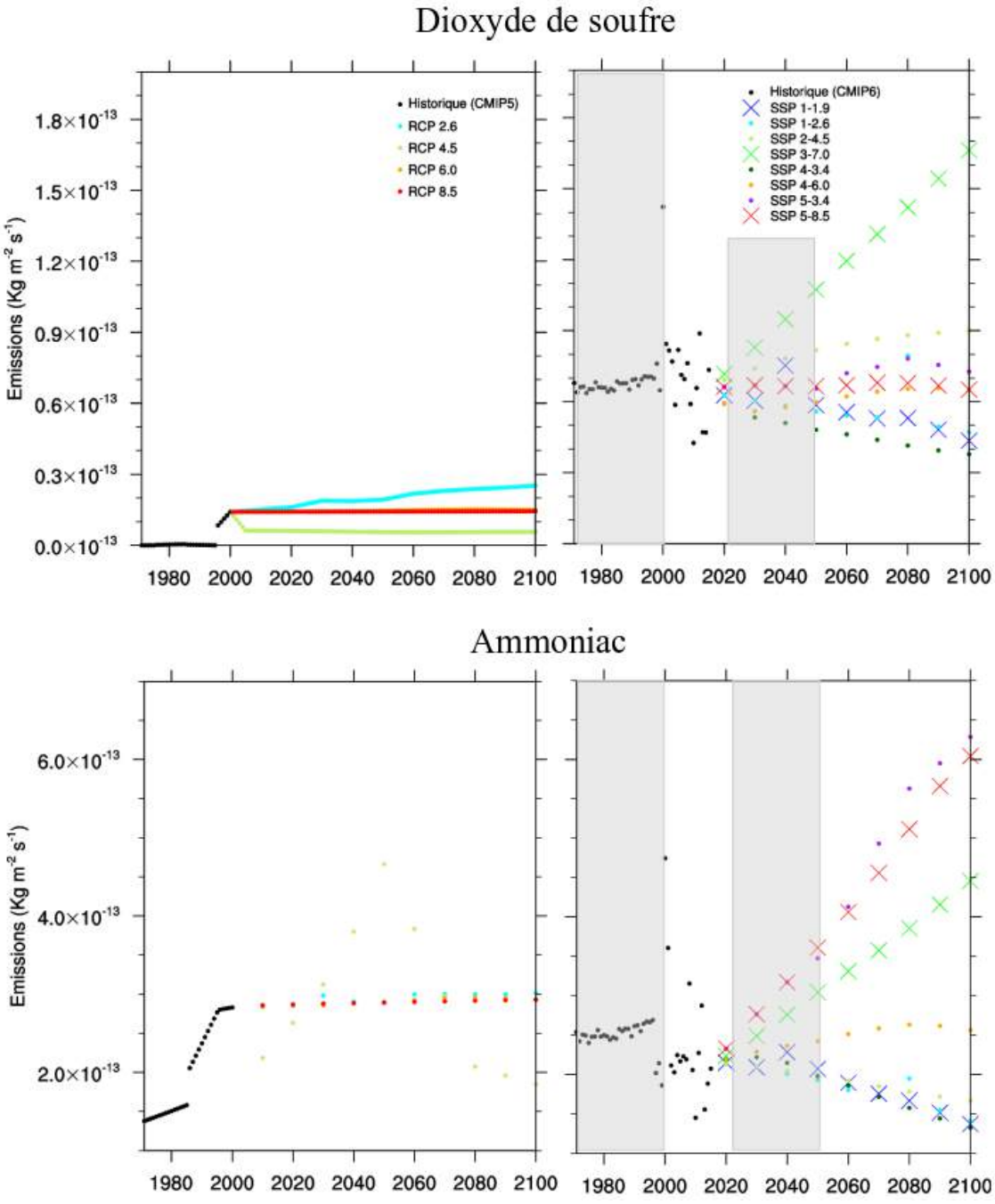

Figure 3.3 – Émissions ($\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$) CEDS et CMIP6 (droite), sur l'Europe, provenant des feux (naturels et anthropiques) comparées aux émissions CMIP5 (gauche) pour le dioxyde de soufre, l'ammoniac, le carbone suie et le carbone organique. Les croix symbolisent les 3 scénarios choisis pour ce travail de thèse (SSP 1-1.9, SSP 3-7.0 et SSP 5-8.5). Les barres grisées mettent en évidence la période passée et future des simulations.

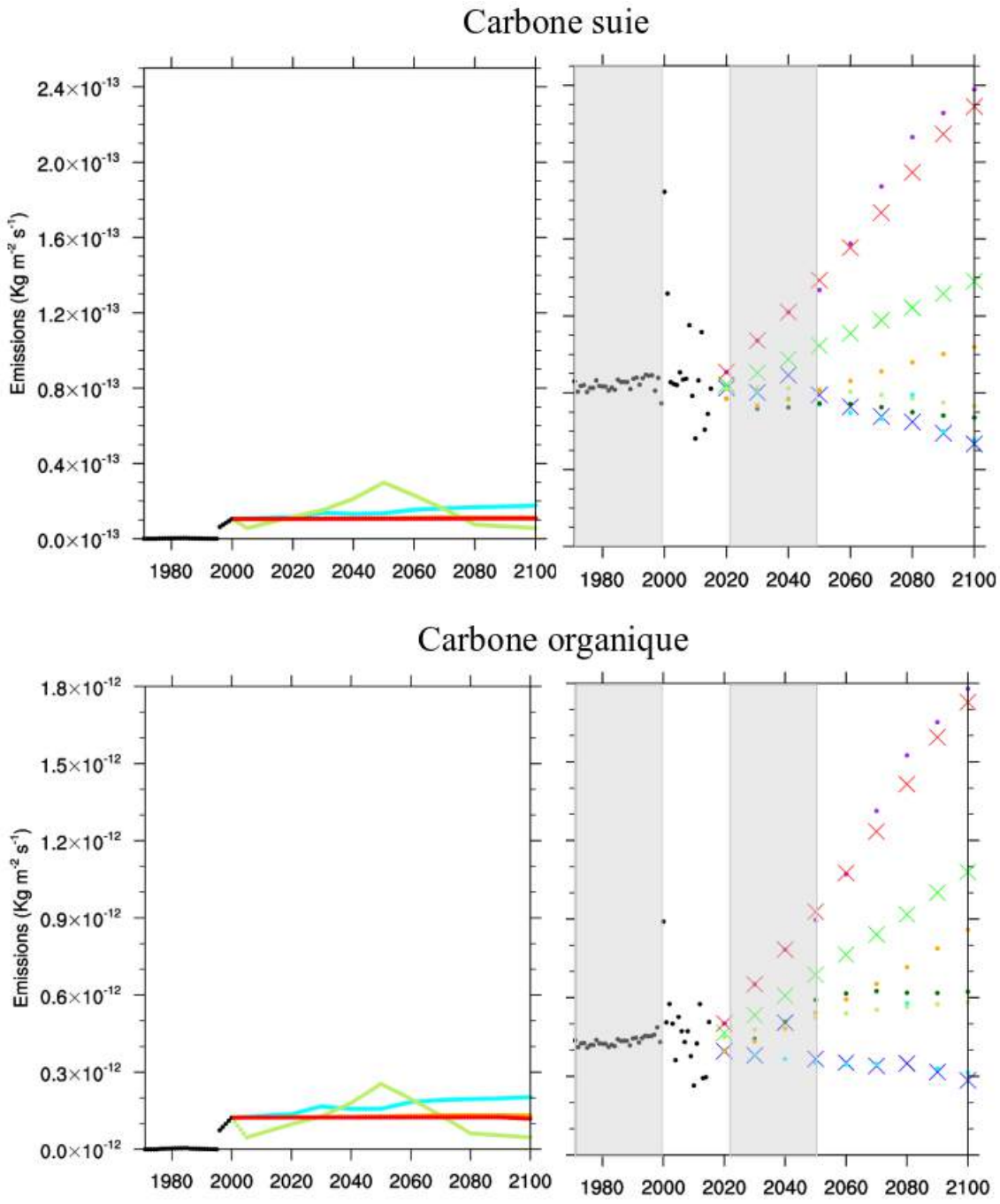

Figure 3.3 – Suite.

Pour information, ces émissions CMIP6 (anthropiques et feux) sont comparées aux émissions CMIP5 sur chaque figure. Comme nous l'avons vu précédemment, les anciens inventaires CMIP5 ont été améliorés grâce à une meilleure prise en compte des différents secteurs d'émissions ainsi qu'à des facteurs d'émission qui ont été réévalués, ce qui explique les différences qui peuvent être observées entre les émissions CMIP5 et CMIP6 que ce soit dans le cas des émissions anthropiques ou des émissions provenant des feux. On peut par exemple noter un changement important concernant les émissions anthropiques d'ammoniac durant la période historique. En effet, le nouveau jeu de données (CMIP6) dont les émissions ont été réévaluées, montre maintenant une baisse de ces émissions à partir des années 1990 sur l'Europe tandis que l'ancien inventaire montrait une augmentation à cette période. En revanche, les émissions anthropiques CMIP5 et CMIP6 de dioxyde de soufre sont relativement proches avec un pic au début des années 1980 suivi par une forte baisse.

Néanmoins, certains scénarios CMIP6, comme le SSP 5-8.5, montrent une évolution différente des scénarios CMIP5 avec une hausse des émissions aux alentours des années 2070-2080. Des différences peuvent aussi être observées entre les émissions CMIP5 et CMIP6 des aérosols carbonés. En effet, certains des scénarios avec des forçages radiatifs équivalents comme le RCP 8.5 et le SSP 5-8.5 ont des trajectoires différentes, le RCP 8.5 présentant la baisse la plus forte des émissions tandis que le SSP 5-8.5 est l'une des trajectoires ayant les émissions les plus élevées en fin de siècle.

D'autres différences entre les émissions CMIP5 et CMIP6 sont aussi présentes en ce qui concerne les émissions de feux de biomasse. En effet, ces émissions ont été revues à la hausse sur la période historique mais aussi sur la période future en fonction des différents scénarios et tout particulièrement avec les SSPs 3-7.0 et 5-8.5. Il est cependant important de noter que, dans le cadre des inventaires CMIP5 et CMIP6, les émissions provenant des feux sont nettement moins importantes en terme de quantité que les émissions anthropiques.

Concernant les émissions anthropiques CMIP6, on remarque une baisse des émissions sur la période historique de l'ensemble des aérosols notamment à partir des années 1990. La baisse la plus importante concerne le dioxyde de soufre, un précurseur des aérosols de sulfates, qui présentait les émissions les plus élevées. Concernant les différents scénarios, à l'exception de l'ammoniac, la majorité d'entre eux prévoient une baisse des différentes émissions dans le futur. En revanche, dans le cas de l'ammoniac, plusieurs scénarios comme le SSP 5-3.4, le SSP 3-7.0 ou encore le SSP 4-6.0 prévoient une hausse des émissions d'ici 2100.

Le choix des trois scénarios utilisés dans le cadre de cette thèse a été fait de

sorte à avoir une gamme de valeur en terme de forçage radiatif mais aussi en terme d'émissions d'aérosols ou de précurseurs d'aérosols assez contrastée. Les SSP 1-1.9 et SSP 5-8.5 ont donc été choisis afin d'avoir la gamme de forçages radiatifs futurs la plus grande possible. De plus, le SSP 1-1.9 est intéressant à étudier car il est l'une des rares combinaisons permettant de respecter l'Accord de Paris et ainsi de limiter la hausse de la température globale à 1.5°C d'ici 2100. Quant au SSP 3-7.0, il a été choisi d'une part car il correspond à un scénario intermédiaire entre le SSP 1-1.9 et le SSP 5-8.5 et d'autre part car il est l'un des scénarios présentant des émissions d'ammoniac en augmentation. Ces différents scénarios ont permis d'avoir une large gamme de futurs possibles en terme de concentration et d'épaisseur optique des différents aérosols. L'évolution des différents aérosols en fonction de ces trois scénarios en terme d'émission, de concentration et d'épaisseur optique, va être présentée ci-dessous.

3.3 Étude de l'évolution des aérosols avec le modèle régional ALADIN-Climat

3.3.1 Les aérosols naturels

Pour commencer nous allons nous intéresser à l'évolution des aérosols naturels entre la période historique (1971-2000) et future (2021-2050) en fonction des trois scénarios sélectionnés précédemment, à savoir le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 2 lors de la présentation du schéma d'aérosols TACTIC, les aérosols naturels comme les poussières désertiques ou les sels marins sont émis de façon dynamique et vont donc être dépendants de différentes caractéristiques comme la vitesse du vent, l'humidité du sol ou encore la température de surface de la mer. L'évolution de ces différents paramètres sera donc aussi abordée au cours de ce chapitre.

3.3.1.1 Les poussières désertiques

Nous allons commencer par étudier l'évolution des émissions et de la concentration massique en surface des poussières désertiques avec le scénario le plus pessimiste qui est le SSP 5-8.5. Suite à cela nous étudierons l'évolution de l'épaisseur optique

que nous comparerons aussi avec les deux autres scénarios.

Évolution des émissions et de la concentration massique de surface des poussières désertiques selon le scénario SSP 5-8.5

Pour commencer, nous pouvons nous intéresser aux différences d'émissions et de concentration, moyennées sur l'année, entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050) en fonction du scénario le plus pessimiste (SSP 5-8.5). Celles-ci sont présentées sur la Figure 3.4 avec l'évolution des émissions à gauche et celle de la concentration de surface à droite. En moyenne sur l'année, les émissions de poussières désertiques restent relativement constantes. Néanmoins, plusieurs zones à l'ouest du domaine montrent une augmentation des émissions tandis que la partie est présente plutôt une baisse de ces émissions, notamment sur la péninsule arabique.

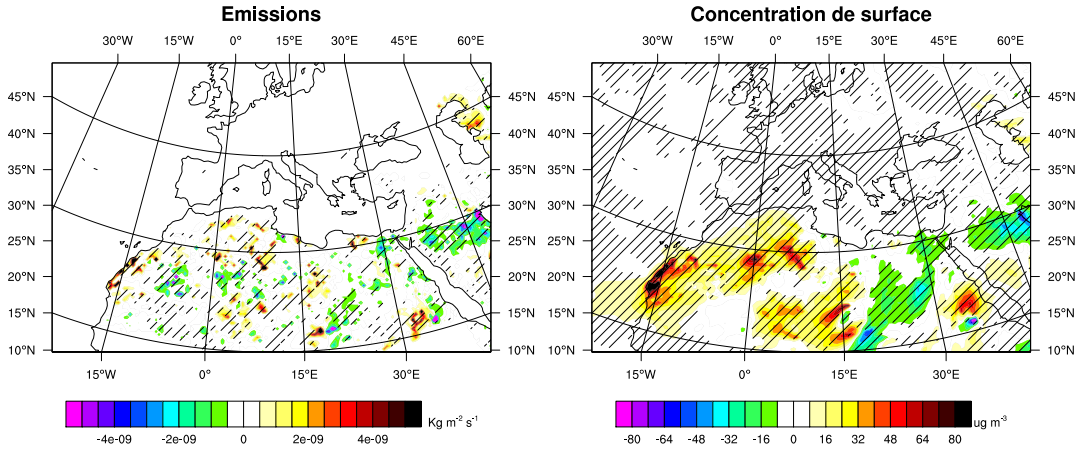

Figure 3.4 – Évolution des émissions (gauche, $\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$) et de la concentration de surface (droite, $\mathrm{\mu g\,m^{-3}}$) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), moyennées sur l'année, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

Ces changements d'émissions de poussières désertiques entre les deux périodes vont par conséquent impacter la concentration de ces aérosols avec notamment une augmentation de la concentration allant jusqu'à 80 $\mathrm{\mu g\,m^{-3}}$ sur l'Afrique de l'ouest là où sont localisées les principales sources, ce qui équivaut à 40% de la concentration historique moyenne en Afrique de l'ouest. La partie Est de l'Afrique du Nord est plutôt soumise à une baisse de la concentration des aérosols de poussières désertiques allant jusqu'à - 30 $\mathrm{\mu g\,m^{-3}}$, soit 11% de la concentration historique moyenne en Afrique de l'est. Une autre augmentation de la concentration, jusqu'à 18%, est présente à l'ouest de la mer Rouge. Cependant aucun changement de concentration

des poussières désertiques, en moyenne annuelle, n'est à noter sur l'Europe ou la mer Méditerranée. Certaines études, comme celle de Evan et al. (2016) ont montré que les concentrations des poussières désertiques auraient tendance à diminuer avec un climat plus chaud. Mahowald and Luo (2003) ont également montré une baisse des émissions des poussières désertiques entre 20 et 60% à l'échelle globale d'ici 2090 suite à la baisse des surfaces désertiques dans le futur. Néanmoins, à l'heure actuelle, il n'y a pas de consensus sur le signe et l'ampleur des futurs changements régionaux dans les concentrations des poussières désertiques affectant la région Euro-Méditerranéenne (Tegen et al., 2004; Thiébault and Moatti, 2016).

La Figure 3.5 présente les changements d'émissions, à l'origine des changements de concentration entre la période passée et la période future, moyennés saison par saison. Celle-ci montre que les changements d'émissions les plus importants entre la période 1971-2000 et 2021-2050 se font durant l'hiver (décembre, janvier et février) et le printemps (mars, avril et mai).

La Figure 3.5 montre que les simulations indiquent une future hausse des émissions de poussières désertiques sur la zone du Bodélé de l'ordre de 5% ainsi qu'une baisse de ces émissions sur la Libye et la péninsule Arabique pendant l'hiver. Cette baisse des émissions sur la péninsule Arabique se retrouve également durant le printemps. En revanche, durant cette saison, les tendances d'émissions sur la zone du Bodélé et sur la Libye sont inversées par rapport à l'hiver avec une baisse d'environ 5% des émissions sur la zone du Bodélé et plutôt une hausse de celles-ci sur la Libye. En hiver, ces tendances d'émissions sont dus aux changements de vitesse du vent comme le montre la Figure 3.6 qui présente les évolutions, saison par saison, de la vitesse du vent entre la période passée et future.

Celle-ci met en évidence une hausse de la vitesse du vent sur la zone du Bodélé en hiver allant jusqu'à 0.5 m s^{-1} ce qui équivaut à une hausse d'environ 10%. Cette figure montre également une baisse de la vitesse du vent sur la Libye et la péninsule Arabique durant cette saison. Ces changements de vitesse du vent en hiver semblent donc bien expliquer l'évolution des émissions et donc des concentrations des poussières désertiques sur l'Afrique durant cette saison.

Durant le printemps, on observe également une baisse de la vitesse du vent sur la zone du Bodélé ainsi que sur la péninsule Arabique. Néanmoins, sur la Libye, même si la Figure 3.6 montre une légère hausse de la vitesse du vent de l'ordre de 0.1 m s^{-1}, la relation entre les émissions des poussières désertiques et la vitesse du vent est moins évidente. Par ailleurs, durant cette saison, les changements de précipitations entre la période passée et la période future (non montrés ici) influent également sur l'évolution des émissions des poussières désertiques. En effet, une baisse des

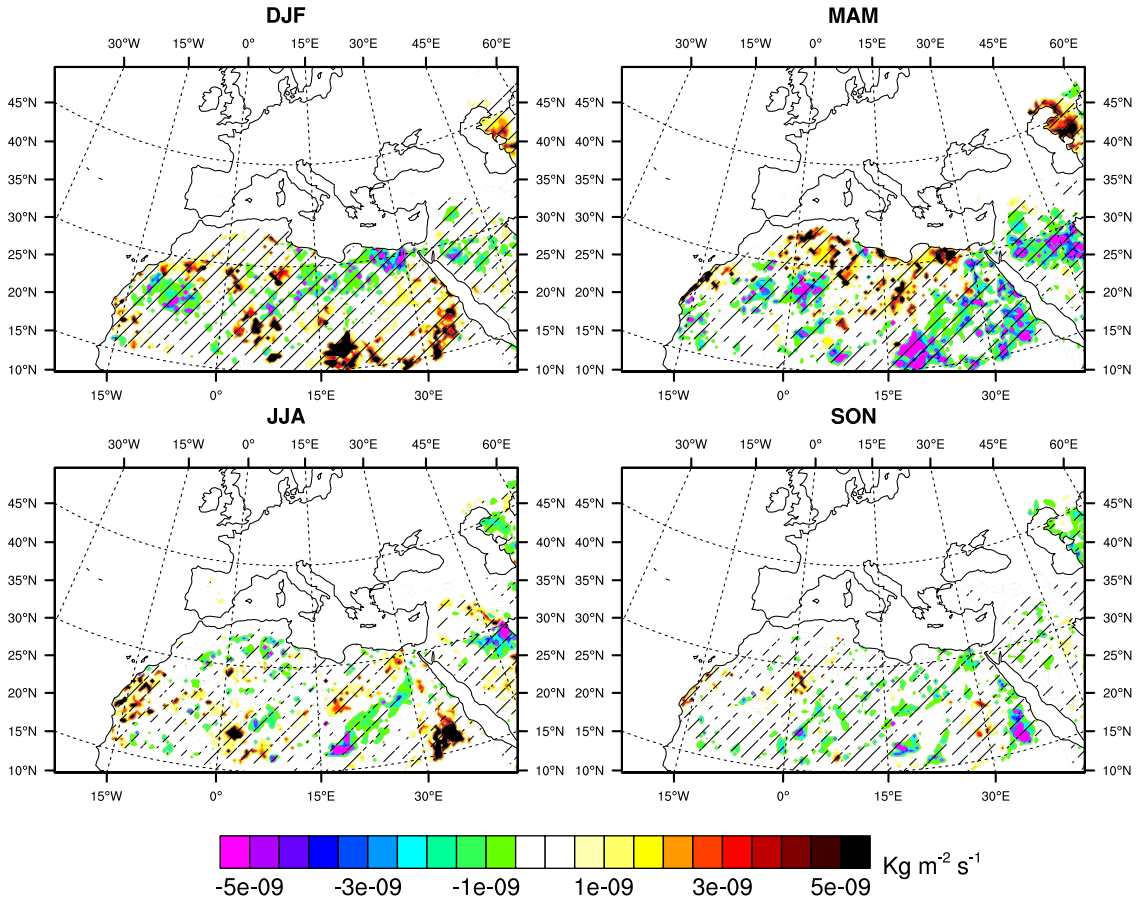

Figure 3.5 – Évolution des émissions ($\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), saison par saison, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

précipitations de l'ordre de 0.1 mm par jour est attendue dans la période future sur la Libye, ce qui pourrait contribuer à augmenter les émissions des poussières désertiques sur cette région. À l'inverse, les simulations indiquent une hausse des précipitations dans la période future de l'ordre de 0.1 mm par jour sur la zone du Bodélé et de 0.3 mm par jour sur la péninsule Arabique. Durant le printemps, une combinaison des changements de la vitesse du vent avec ceux des précipitations entre la période passée et future expliquent donc les différents changements d'émissions et de concentration des poussières désertiques à venir.

Les différents changements d'émissions des poussières désertiques durant l'année vont impacter de manière similaire la concentration de ces particules, comme le montre la Figure 3.7 qui présente, sur la Libye, les changements de concentration des poussières désertiques tout au long de l'année en fonction de leur taille. Pour rap-

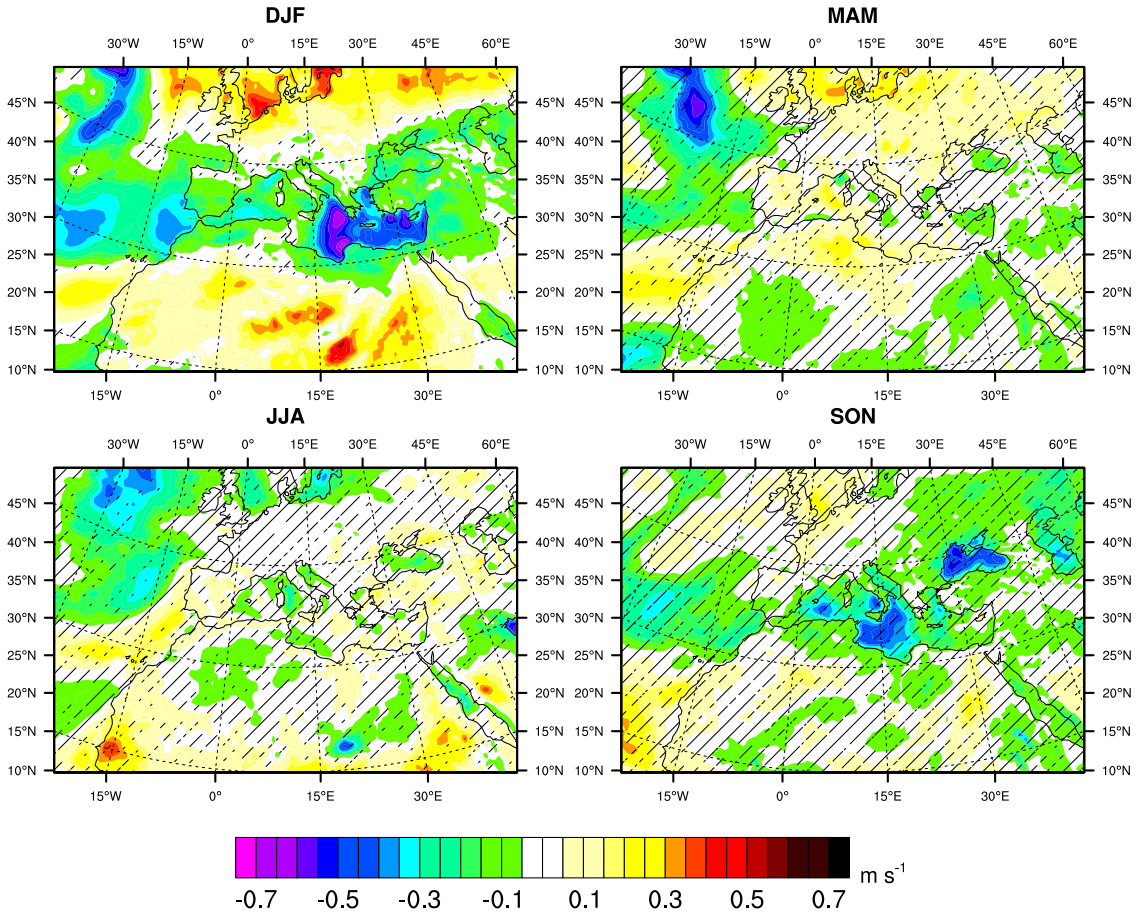

Figure 3.6 – Différence de vitesse de vent (m s^{-1}) entre la période future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 et la période passée (1971-2000) moyennée saison par saison. Les zones non hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

pel, dans cette étude, les poussières désertiques sont divisées en trois bins (0.01-1.0, 1.0-2.5 et 2.5-20.0 µm). La Figure 3.7 montre bien une baisse de la concentration de ces aérosols en hiver, notamment en janvier où elle atteint - 50 µg m^{-3} puis une hausse de celle-ci au printemps avec un maximum de 50 µg m^{-3} en avril. La Figure 3.7 montre également que les changements de concentration entre les deux périodes sont en grande majorité dus aux aérosols les plus grossiers (bin 3).

Évolution de l'AOD des poussières désertiques et comparaison entre les trois SSPs

Les différents changements d'émissions et de concentration de surface des pous-

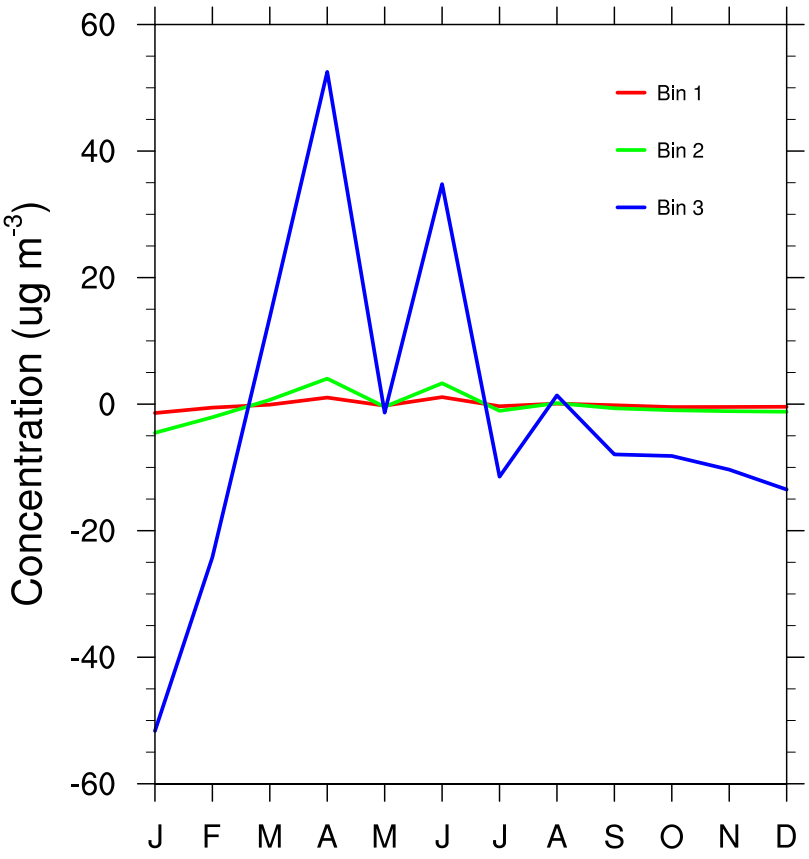

Figure 3.7 – Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) en surface des poussières désertiques en fonction de leur taille (bin 1 en rouge, bin 2 en vert et bin 3 en bleu) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 sur la Libye.

sières désertiques simulées avec le SSP 5-8.5 vont aussi agir sur l'AOD de ces aérosols. La Figure 3.8 montre, avec le SSP 5-8.5 en haut à gauche, une augmentation de l'AOD sur la partie ouest de l'Afrique allant jusqu'à 0.05 ainsi qu'une diminution sur la partie est d'environ 0.02. La hausse de concentration présente à l'ouest de la mer Rouge se traduit par une hausse de l'AOD de l'ordre de 0.05 sur cette région. La Figure 3.8 montre aussi l'évolution de l'AOD entre la période passée et la période future suivant les deux autres scénarios, le SSP 3-7.0 (haut à droite) et le SSP 1-1.9 (bas). On remarque une évolution d'AOD semblable entre les trois SSPs étudiés avec la création d'un dipôle entre le bassin ouest et le bassin est de l'Afrique qui semble robuste. Néanmoins, les trois scénarios présentent aussi quelques différences. En effet, seuls le SSP 5-8.5 et le SSP 3-7.0 présentent une hausse assez marquée de l'AOD de l'ordre de 0.05 à l'ouest de la mer Rouge due à l'augmentation du vent en été.

Concernant le SSP 1-1.9, cette hausse est plus modérée, de l'ordre de 0.02. Malgré

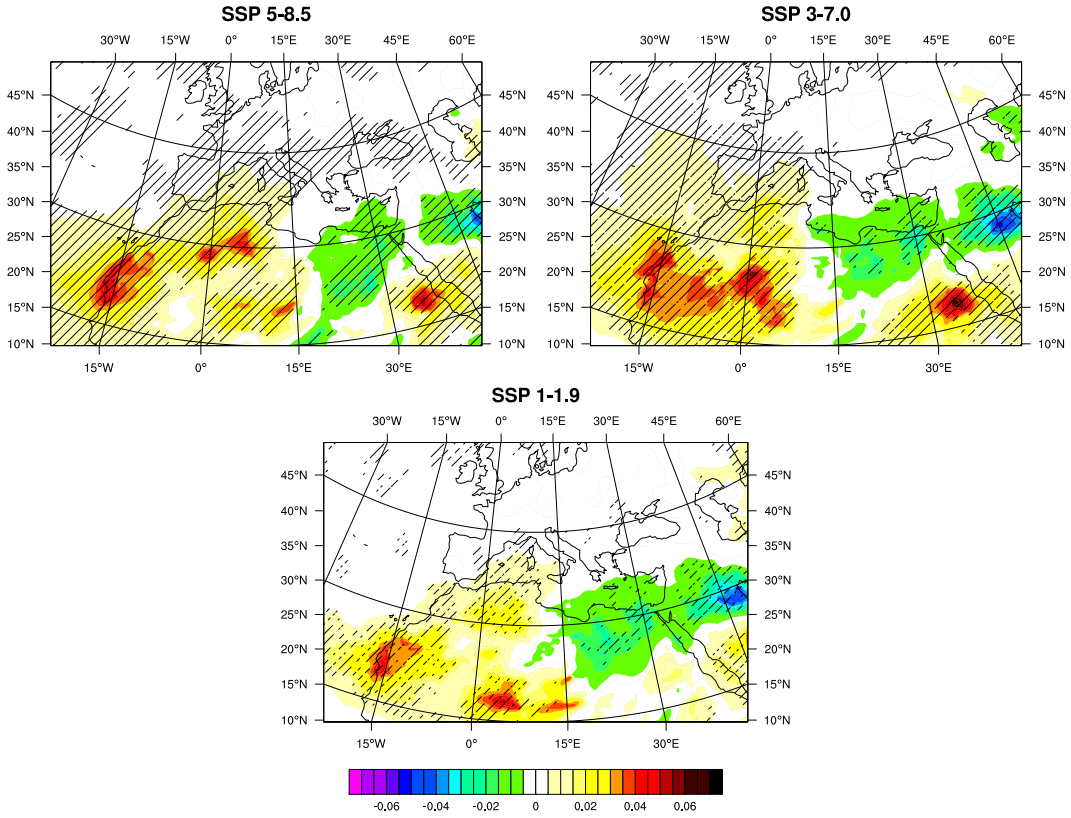

Figure 3.8 – Évolution de l'AOD (550 nm) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 (haut à gauche), le SSP 3-7.0 (haut à droite) et le SSP 1-1.9 (bas) moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

cela, excepté sur le bassin occidental au printemps, ces changements d'AOD ont lieu sur le sud du domaine et devraient donc avoir un impact assez faible sur la région Euro-Méditerranéenne.

Ces changements d'AOD, moyennés par saison sur la partie ouest et la partie est de la mer Méditerranée et de l'Afrique, entre la période 1971-2000 et 2021-2050 selon les différents scénarios sont présentés dans le Tableau 3.2. Ce tableau indique aussi la présence d'un dipôle entre le bassin ouest et le bassin est de l'Afrique et de la mer Méditerranée avec une augmentation bien marquée à l'ouest quelque soit le scénario envisagé. En revanche, la partie est de ces deux régions présente plutôt une baisse ou une stagnation de l'AOD des poussières désertiques entre les deux périodes. Néanmoins, cette baisse d'AOD présente sur la partie est de l'Afrique et de la mer Méditerranée est en partie compensée par la hausse d'AOD, notamment en juin, juillet et août, à l'ouest de la mer Rouge. Concernant la hausse d'AOD présente sur la partie ouest de l'Afrique, le Tableau 3.2 indique que celle-ci est la plus élevée durant le printemps pour les SSPs 1-1.9 (0.03) et 3-7.0 (0.04). En revanche, le

SSP 5-8.5 présente la hausse d'AOD sur l'Afrique la plus élevée durant l'hiver avec une augmentation de 0.04. La hausse la plus forte sur la mer Méditerranée a aussi lieu au printemps et atteint 0.02 pour les SSPs 3-7.0 et 5-8.5. Contrairement aux autres saisons, ces trois scénarios ne montrent aucune augmentation de l'AOD des poussières désertiques en automne que ce soit sur l'Afrique ou la mer Méditerranée.

		Afrique		**Méditerranée**	
		Ouest	**Est**	**Ouest**	**Est**
SSP 1-1.9	DJF	0.02	0	0	- 0.01
	MAM	0.03	- 0.01	0.01	- 0.01
	JJA	0.01	0	0.01	0
	SON	0	0	0	0
SSP 3-7.0	DJF	0.02	0	0.01	- 0.01
	MAM	0.04	0	0.02	- 0.02
	JJA	0.02	0.02	0.01	0
	SON	0	0	0	0
SSP 5-8.5	DJF	0.04	0.01	0.01	0
	MAM	0.01	- 0.01	0.02	- 0.01
	JJA	0.02	0.02	0.01	0.01
	SON	0	- 0.01	0	0

Table 3.2 – Évolution de l'AOD (550 nm) des poussières désertiques entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur la partie ouest et est de la mer Méditerranée et de l'Afrique.

L'évolution de l'AOD des poussières désertiques, entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050) est donc finalement semblable entre les trois SSPs, avec une augmentation sur l'ouest de l'Afrique (0.02 en moyenne avec les trois SSPs) ainsi qu'une hausse plus modérée sur l'ouest de la mer Méditerranée (0.01), qui a surtout lieu en hiver et au printemps. La partie est de l'Afrique et de la mer Méditerranée a plutôt tendance à montrer une baisse de l'AOD, qui reste relativement faible notamment à cause d'une augmentation de l'AOD durant l'été sur une zone localisée vers la mer Rouge. Ces différents changements d'AOD entre la période passée et future sont principalement dus, à l'origine, aux changements de la vitesse du vent mais aussi aux changements de précipitations qui ont lieu notamment durant l'hiver et le printemps et qui vont influer sur les émissions et les concentrations des poussières désertiques. Pour finir, à l'exception d'une hausse de l'AOD des poussières désertiques sur l'ouest de la mer Méditerranée qui a essentiellement lieu au printemps, l'évolution (émissions, concentration et AOD) des poussières désertiques n'affecte que très peu la région Euro-Méditerranéenne dans les simulations réalisées pour cette étude.

3.3.1.2 Les sels marins primaires

Comme pour les poussières désertiques, nous allons commencer ici aussi par étudier l'évolution des émissions et de la concentration de surface des sels marins avec le SSP 5-8.5 qui est le scénario le plus pessimiste. Suite à cela nous nous intéresserons à l'évolution de l'AOD de ces aérosols puis nous comparerons ces changements avec les deux autres scénarios.

Évolution des émissions et de la concentration massique de surface des sels marins selon le scénario SSP 5-8.5

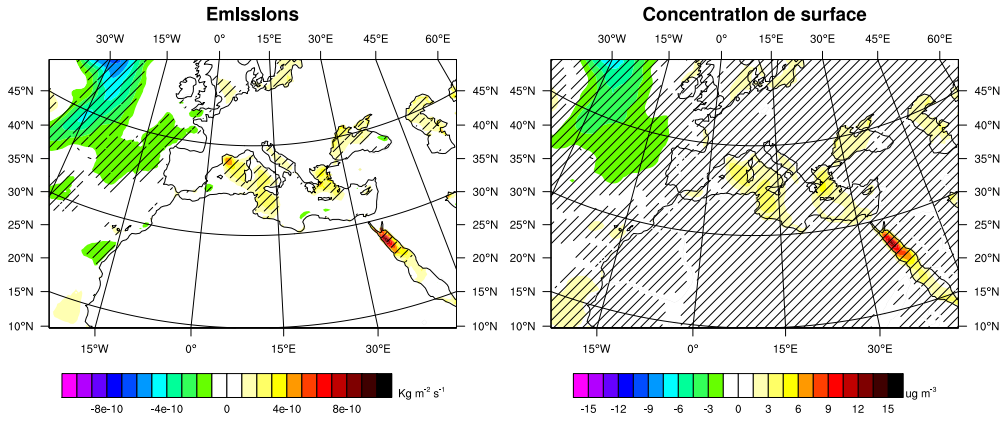

Figure 3.9 – Évolution des émissions (gauche, $\mathrm{kg\,m^{-2}\,s^{-1}}$) et de la concentration de surface (droite, $\mu\mathrm{g\,m^{-3}}$) des sels marins entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), moyennées sur l'année, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

Les sels marins sont la deuxième espèce d'aérosols naturels à être intégrée dans le schéma d'aérosols TACTIC. Tout comme les poussières désertiques, ils sont émis de façon dynamique et dépendent de la vitesse du vent ainsi que de la température de surface de la mer. L'évolution des émissions et de la concentration de surface des sels marins, moyennées sur l'année, entre la période 1971-2000 et 2021-2050 pour le SSP 5-8.5 sont présentées sur la Figure 3.9.

Cette figure montre une évolution contrastée entre une baisse des émissions sur l'océan Atlantique et une hausse sur la mer Méditerranée, notamment au sud de la France et de l'Italie, ainsi que sur la mer Rouge. Cette baisse des émissions dans le futur sur l'océan Atlantique ainsi que la hausse modérée sur la mer Méditerranée vont respectivement engendrer une diminution allant jusqu'à 17% (-6 $\mu\mathrm{g\,m^{-3}}$) en terme de concentration massique sur l'océan Atlantique, et une hausse d'environ 15% (5 $\mu\mathrm{g\,m^{-3}}$) sur la mer Méditerranée. La Figure 3.9 montre également une

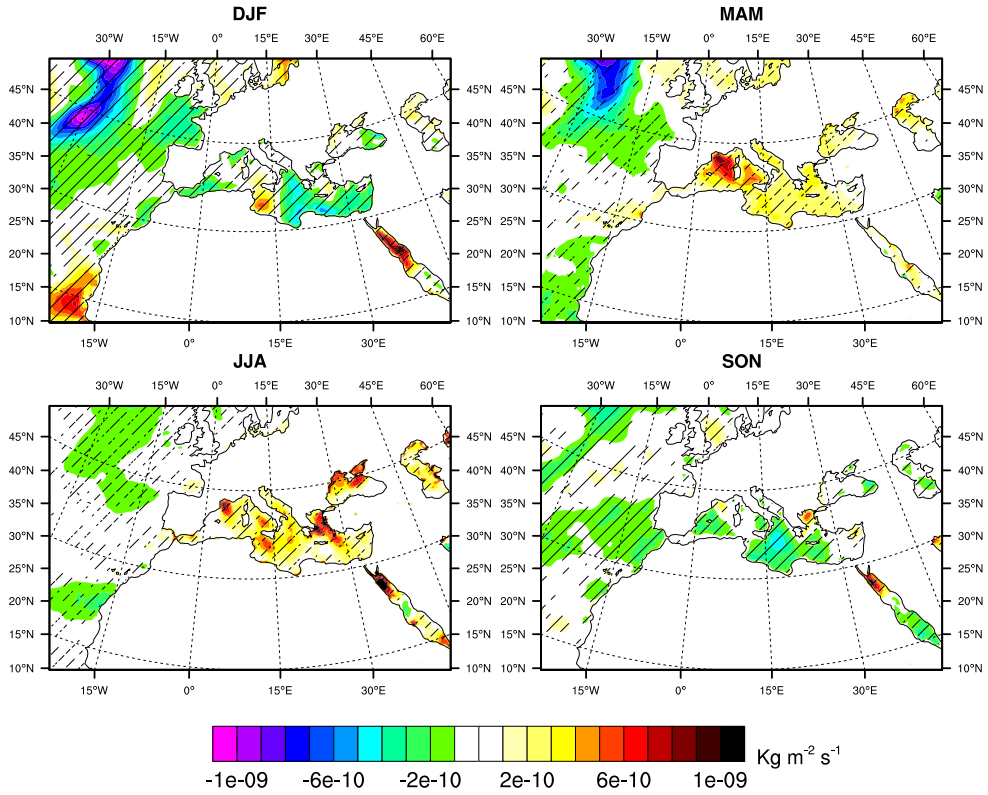

Figure 3.10 – Évolution des émissions des sels marins ($kg\,m^{-2}\,s^{-1}$) saison par saison entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

hausse similaire des émissions des sels marins sur la mer Noire ainsi que sur la mer Caspienne.

La Figure 3.10 présente maintenant l'évolution des émissions des sels marins, saison par saison, entre la période passée et la période future pour le SSP 5-8.5. Cette figure montre que la hausse la plus élevée des émissions de sels marins sur la mer Méditerranée se fait durant le printemps (MAM) et l'été (JJA). En revanche, la baisse des émissions sur l'océan Atlantique se produit essentiellement en hiver et au printemps. Celle-ci est cohérente avec la diminution de la vitesse du vent sur cette région comme le montre la Figure 3.6. En revanche, sur la zone méditerranéenne où les émissions de sels marins augmentent, la Figure 3.6 ne montre pas d'augmentation significative de la vitesse du vent au printemps et montre même, en été, une baisse de celle-ci. Le changement de la vitesse du vent ne suffit donc pas à expliquer la hausse des émissions visible sur cette zone durant ces saisons. En revanche celle-ci peut s'expliquer par l'augmentation de la température de surface de la mer qui passe, au

printemps par exemple, de 17.8°C en moyenne dans la période passée (1971-2000) à 19.9°C en moyenne dans la période future (2021-2050). Cela va donc avoir pour conséquence d'augmenter le coefficient T_W de 8% et par conséquent les émissions de sels marins au printemps (voir début du chapitre 2 pour la paramétrisation des émissions des sels marins) comme illustré sur la Figure 3.11.

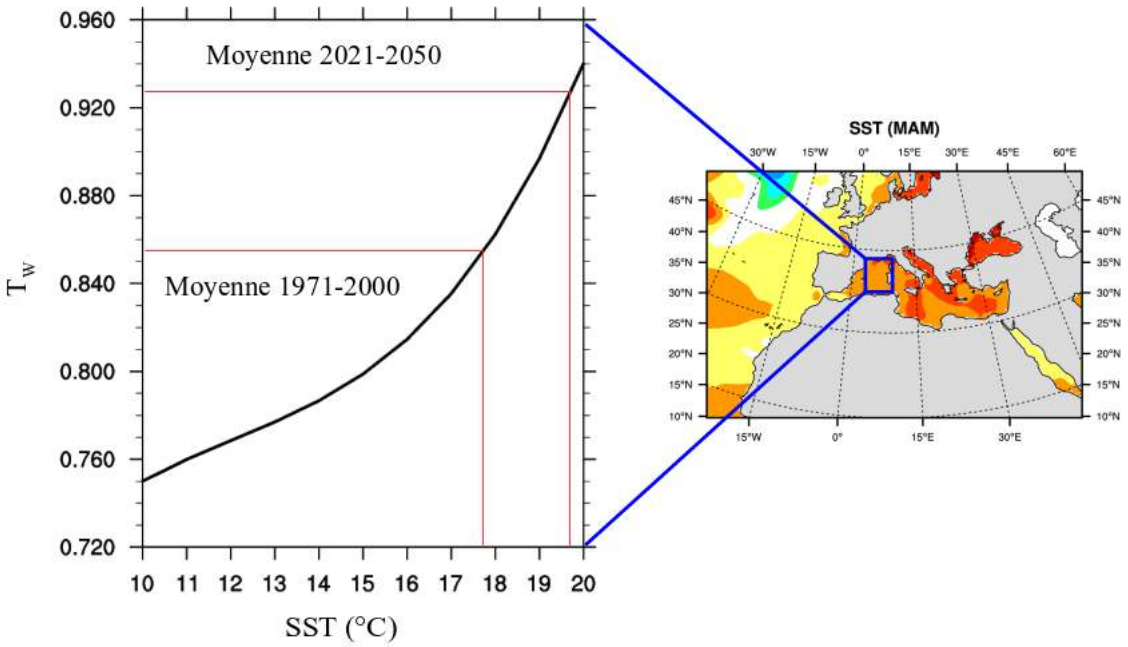

Figure 3.11 – Dépendance du coefficient T_W à la SST (°C), dont dépendent les émissions de sels marins entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) avec le SSP 5-8.5 sur la zone de la Méditerranée avec la plus forte hausse des émissions.

L'augmentation des émissions de sels marins en été s'explique également par l'augmentation de la température de surface de la mer. En revanche, durant l'hiver et l'automne, les baisses d'émissions de sels marins observées sur la mer Méditerranée sont bien corrélées avec les baisses de la vitesse du vent.

Évolution de l'AOD des sels marins et comparaison entre les trois SSPs

La Figure 3.12 présente l'évolution de l'AOD des sels marins entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5, moyennée sur l'année.

Cette figure montre que les faibles changements de concentration vus précédemment ont peu d'impact sur l'AOD de ces aérosols. En effet, malgré une hausse des émissions sur une partie de la mer Méditerranée, le changement d'AOD avec ce SSP 5-8.5 est quasiment nul. La baisse d'AOD la plus forte enregistrée sur l'océan Atlantique atteint seulement 0.004, ce qui reste très faible. L'augmentation d'AOD

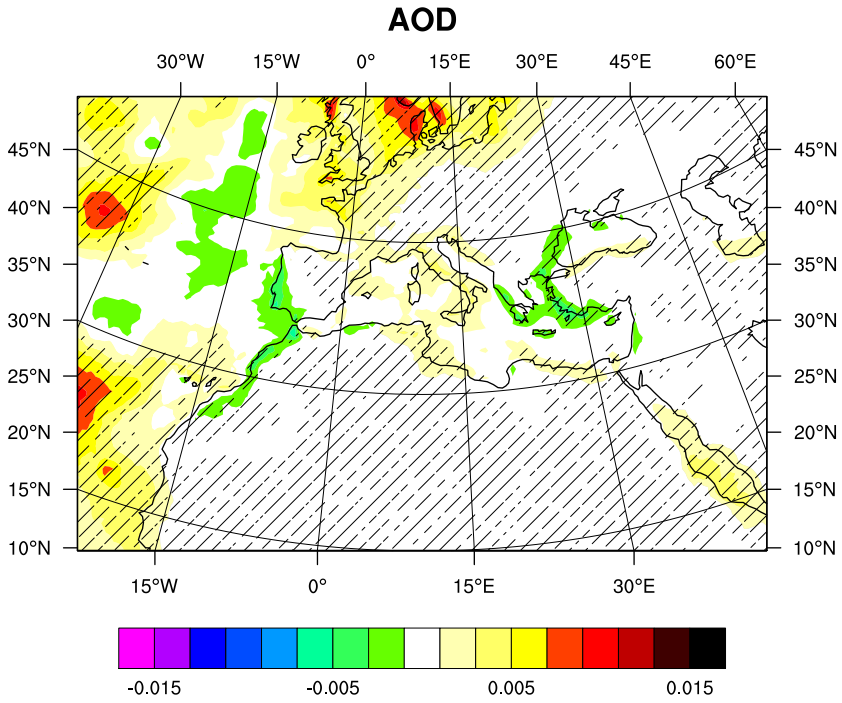

Figure 3.12 – Évolution de l'AOD (550 nm) des sels marins entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050), moyennées sur l'année, suivant le SSP 5-8.5. Les zones hachurées sont statistiquement significatives avec un seuil de 10%.

observée à l'ouest du domaine sur l'océan Atlantique est due à une hausse de l'humidité relative sur cette région qui va avoir pour conséquence d'augmenter le coefficient d'extinction des particules de sels marins et donc leur épaisseur optique. L'évolution de l'AOD des sels marins en fonction des SSPs 1-1.9 et 3-7.0 est très semblable à celle simulée suivant le SSP 5-8.5 et n'est donc pas montrée ici.

Quel que soit le scénario envisagé, les changements d'AOD des sels marins entre la période passée et la période future sont donc très faibles, comme le montre le Tableau 3.3. Ce tableau montre aussi que, outre la mer Méditerranée, les changements d'AOD des sels marins restent également faibles sur la mer rouge, la mer Noire ainsi que la mer du Nord même si cette dernière présente des hausses d'AOD allant jusqu'à 0.01 en hiver avec les SSPs 3-7.0 et 5-8.5. Certaines études, comme celle de Korhonen et al. (2011), n'ont révélé aucune tendance significative concernant la concentration des sels marins dans l'océan Atlantique Nord au cours des dernières décennies et celle-ci ne devrait pas évoluer significativement avec le changement climatique (Jacobson and Streets, 2009).

Malgré quelques changements dans leurs émissions, les sels marins vont donc rester globalement stables entre la période passée et future. Tout comme les poussières désertiques, l'évolution des sels marins va par conséquent avoir un impact

		Mer Méditerranée	**Océan Atlantique**	**Mer Rouge**	**Mer Noire**	**Mer du Nord**
SSP 1-1.9	DJF	0	0	0	0	0.006
	MAM	0	0	0.002	0	0.002
	JJA	0.001	0.003	0.001	0.001	0
	SON	0	0	0	0	0.001
SSP 3-7.0	DJF	- 0.001	0.002	0.002	- 0.002	0.010
	MAM	- 0.001	0	0.003	0	0.004
	JJA	0.002	0.002	0.002	0	0
	SON	- 0.001	0.002	0	0	0
SSP 5-8.5	DJF	- 0.002	0.002	0.002	0	0.010
	MAM	0.001	0.001	0.002	0	0.004
	JJA	0.003	0.001	0.003	0.001	0
	SON	0	0.002	0.002	- 0.002	0.003

Table 3.3 – Évolution de l'AOD (550 nm) des sels marins entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur la mer Méditerranée, l'océan Atlantique, la mer Rouge, la mer Noire et la mer du Nord.

assez limité sur la région Euro-Méditerranéenne.

3.3.2 Les aérosols anthropiques

Tout comme les particules naturelles, les aérosols d'origine anthropique dont les émissions sur l'Europe ont été présentées au début de ce chapitre, vont évoluer au cours du temps. Le chapitre précédent a mis en évidence la relation forte entre les sulfates, les nitrates et l'ammonium qui sont issus de l'ammoniac, dont les régions sources et les concentrations sont présentées sur la Figure 3.13. Cette figure montre donc que les régions sources des émissions d'ammoniac, en Europe, se localisent essentiellement sur la plaine du Pô, le Benelux ou encore dans la région du delta du Nil. De par leur lien, les aérosols de sulfate, de nitrate et d'ammonium vont être traités ensemble ci-dessous. Suite à cela, nous verrons l'évolution des autres particules anthropiques comme le carbone suie ou encore le carbone organique.

3.3.2.1 Le couplage ammonium-nitrate-sulfate

Comme pour les aérosols naturels, nous commencerons ici par étudier l'évolution des émissions et de la concentration de surface des sulfates, des nitrates et de l'ammonium avec le SSP 5-8.5.

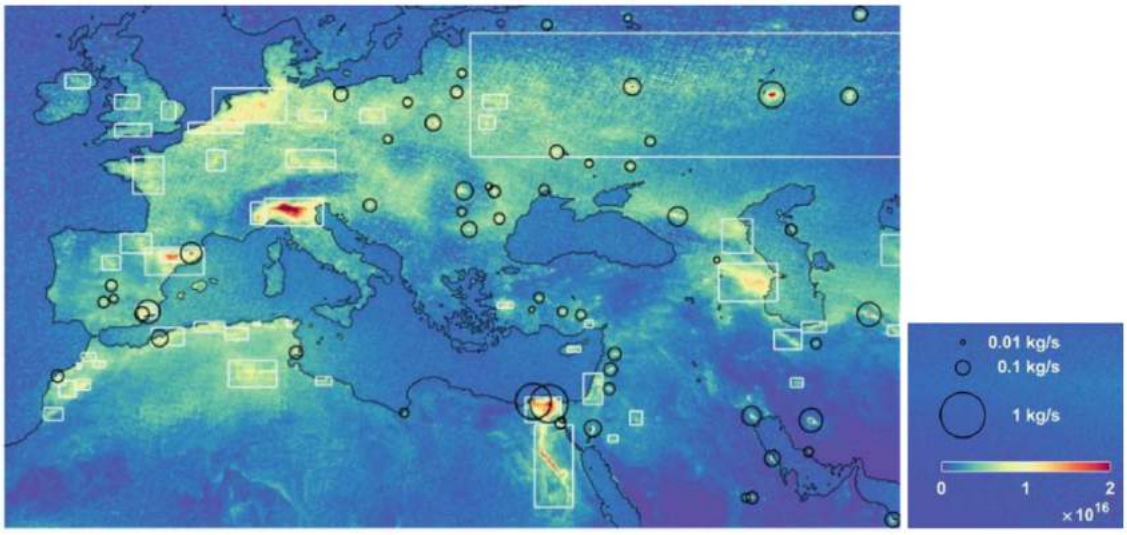

Figure 3.13 – Concentrations (molécules cm^{-2}) en ammoniac mesurée par l'instrument IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge) équipé sur les satellites météorologiques européens. Les régions sources sont délimitées par les cadres blancs. Les cercles noirs identifient les points sources les plus importants et leur taille quantifie le flux d'émissions ($kg\,s^{-1}$). D'après Van Damme et al. (2018).

Évolution des émissions et de la concentration massique de surface des sulfates, nitrates et ammonium selon le scénario SSP 5-8.5

Les émissions des précurseurs de ces aérosols sont présentées sur les Figures 3.2 et 3.3. Quel que soit le scénario envisagé, les émissions de dioxyde de soufre, précurseur des particules de sulfate, vont fortement diminuer entre la période 1971-2000 et 2021-2050 ce qui va avoir pour conséquence de baisser grandement la concentration de sulfate sur la région Euro-Méditerranéenne comme le montre la Figure 3.14 (gauche) pour le SSP 5-8.5. Ceci est cohérent avec la baisse des particules fines montrée par Markakis et al. (2014), Lacressonnière et al. (2017) ou encore par Cholakian et al. (2019) sur l'Europe d'ici la fin du siècle. En effet, la Figure 3.14 montre que la concentration en surface des sulfates baisse de 90% en moyenne sur l'Europe entre la période historique et la période future selon le SSP 5-8.5, passant ainsi de 7.8 $\mu g\,m^{-3}$ à 0.7 $\mu g\,m^{-3}$. Comme le montre la Figure 3.15, les baisses les plus fortes sur l'Europe sont observées en hiver avec une moyenne de - 8.5 $\mu g\,m^{-3}$. Les diminutions les plus marquées se localisent sur le Benelux et l'Europe de l'est et peuvent atteindre - 25 $\mu g\,m^{-3}$, soit environ trois fois la concentration historique des sulfates sur l'Europe. Cette baisse de la production de sulfate va par conséquent laisser d'avantage d'ammoniac libre dans l'atmosphère, ce qui va permette la production de particules de nitrate et d'ammonium comme mentionné dans le chapitre 2. En effet, la Figure

3.14 montre que la concentration de ces aérosols (nitrate à droite et ammonium en bas) va augmenter de 70% en moyenne sur l'Europe pour les aérosols de nitrate, passant ainsi de 2.9 $\mu g\,m^{-3}$ à 5.0 $\mu g\,m^{-3}$ entre la période passée et la période future. Concernant l'ammonium, il va doubler entre la période passée et la période future sur l'Europe, passant donc de 0.6 $\mu g\,m^{-3}$ à 1.2 $\mu g\,m^{-3}$.

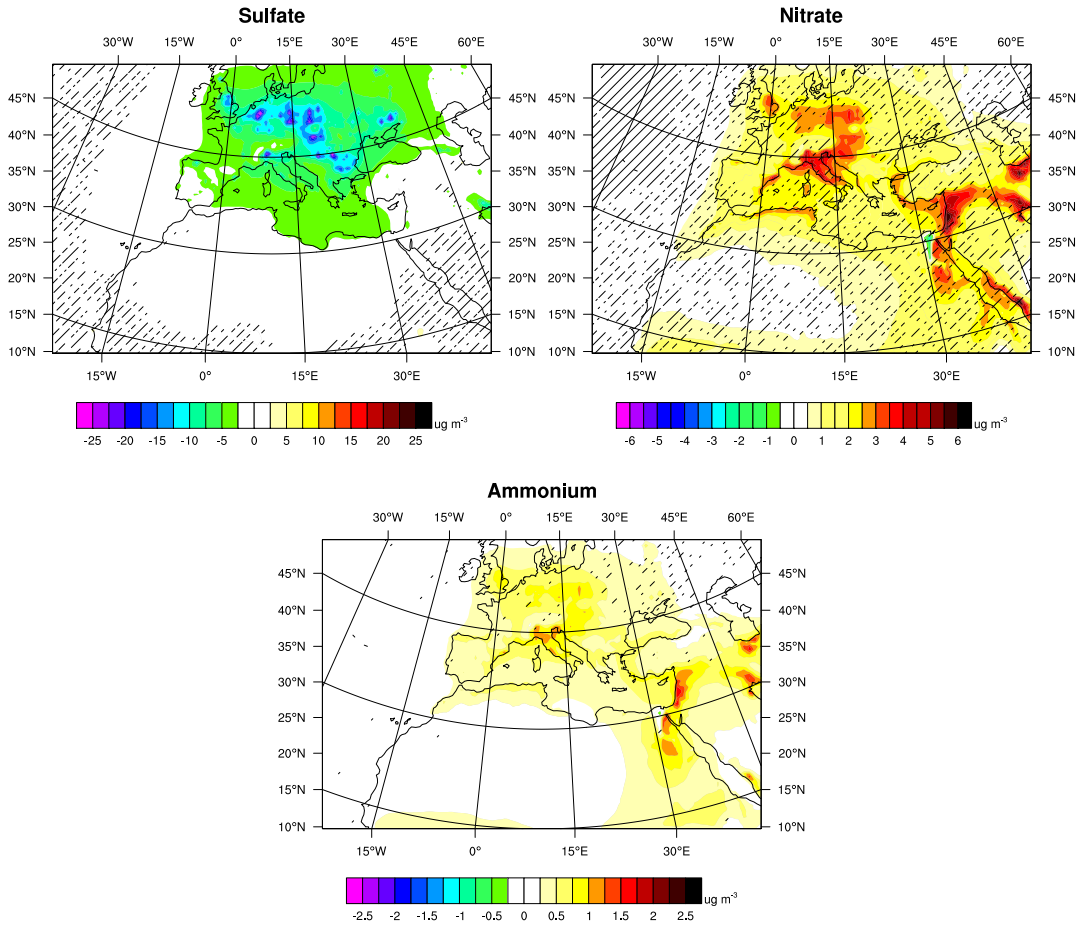

Figure 3.14 – Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) en surface des sulfates (haut à gauche), des nitrates (haut à droite) et de l'ammonium (bas) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 et moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

La Figure 3.15 montre que, malgré deux légers pics au printemps et en été, la hausse de concentration des aérosols de nitrate est assez homogène sur l'année avec une moyenne sur l'Europe de 3 $\mu g\,m^{-3}$. Comme montré au cours du chapitre 2, l'évolution de la concentration des nitrates est expliquée à la fois par la concentration de l'acide nitrique (élevée au printemps et en été) et par celle de l'ammoniac, qui est dépendante de l'évolution de la concentration des aérosols de sulfate. L'évolution de la concentration des particules d'ammonium entre la période passée et la période

future est plus faible mais présente aussi, comme avec les aérosols de nitrate, une hausse plus forte au printemps et en été.

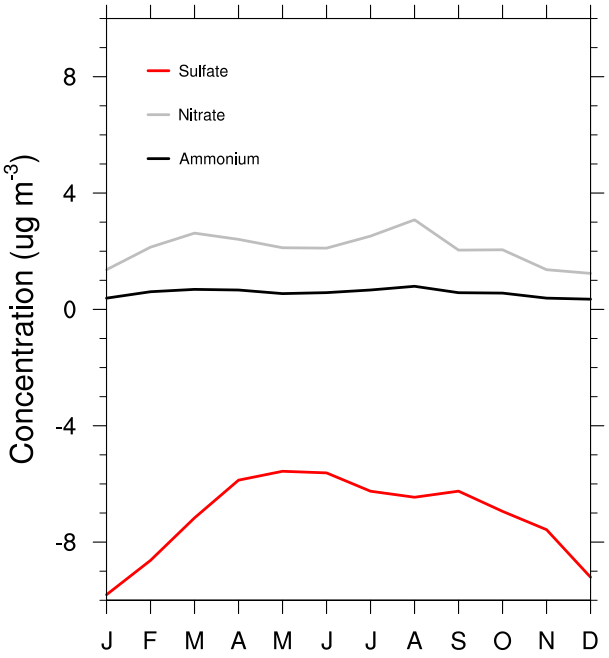

Figure 3.15 – Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) en surface des sulfates (rouge), des nitrates (gris) et de l'ammonium (noir) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 sur l'Europe.

Évolution de l'AOD des sulfates, des nitrates et de l'ammonium et comparaison entre les trois SSPs

Cette baisse de la concentration de sulfate induisant une hausse de la concentration de nitrate et d'ammonium va par conséquent modifier l'AOD de ces différentes espèces. La Figure 3.16 montre les différences d'AOD entre la période future et passée de ces différents aérosols en fonction des trois SSPs utilisés. Comme attendu, l'AOD des sulfates va diminuer tandis que celui des nitrates et de l'ammonium va augmenter dans le cas des 3 scénarios. La baisse de l'AOD des sulfates est localisée sur l'Europe et la Méditerranée tandis que la hausse de l'AOD des nitrates et de l'ammonium a lieu en Europe et la Méditerranée, avec un maximum dans la vallée du Pô, qui est l'une des régions les plus polluées en Europe de par ses activités anthropiques comme les industries ou l'agriculture (Chu et al., 2003; Barnaba and Gobbi, 2004; Schaap et al., 2004; Bigi and Ghermandi, 2014; Fuzzi et al., 2015; Diémoz et al., 2019) mais aussi aux alentours de la mer Rouge. Cependant, quelques

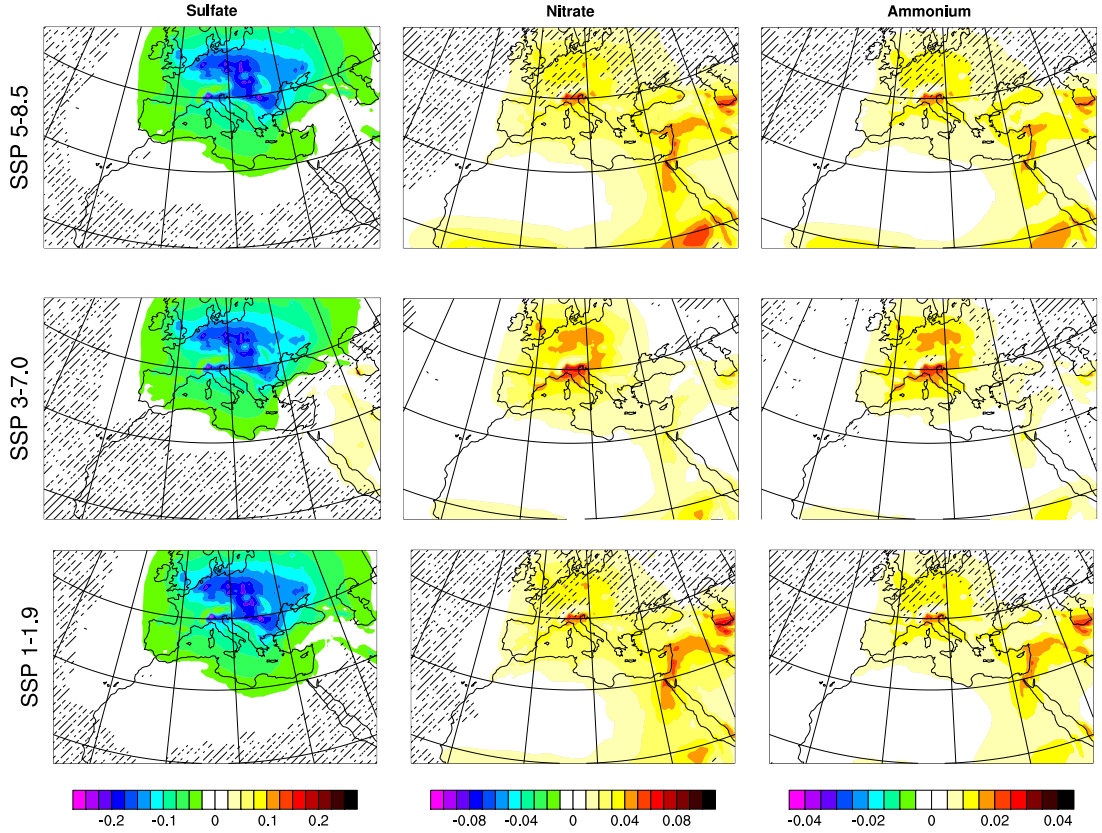

Figure 3.16 – Évolution de l'AOD (550 nm) des sulfates (gauche), des nitrates (milieu) et de l'ammonium (droite) entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 5-8.5 (haut), le SSP 3-7.0 (milieu) et le SSP 1-1.9 (bas) moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

différences sont observables en fonction des scénarios. Concernant les sulfates, on remarque que la baisse d'AOD est légèrement moins élevée avec le SSP 3-7.0 (- 0.10 en moyenne sur l'Europe avec le SSP 3-7.0 contre - 0.11 avec le SSP 1-1.9) car ce scénario présente la plus faible baisse des émissions de dioxyde de soufre dans le futur (Figure 3.2). Ce scénario présente aussi une autre caractéristique qui est une augmentation de l'AOD au nord de la mer Rouge de l'ordre de 0.05, due à une hausse des émissions de dioxyde de soufre avec ce scénario sur cette région. Quant aux nitrates et à l'ammonium, ils ont une évolution similaire en fonction des différents scénarios. La hausse d'AOD de ces particules est légèrement plus élevée avec le SSP 3-7.0 (+ 0.03 en moyenne sur l'Europe pour les nitrates et + 0.01 pour l'ammonium) car, ici aussi, il s'agit du scénario présentant les émissions d'ammoniac les plus élevées (Figure 3.2). Ce scénario présente aussi la hausse la plus faible d'AOD de nitrate et d'ammonium aux alentours de la mer Rouge. Cela s'explique par la hausse des sulfates sur cette région qui va par conséquent limiter la production de

nitrate et d'ammonium. Il est aussi important de noter que l'AOD future des nitrates va également être dépendante de l'évolution de la concentration des aérosols naturels, comme le montre Chen et al. (2019) avec les sels marins. En effet cette étude montre que, lors d'épisodes de forte concentration en sels marins sur l'Europe, une quantité supérieure de nitrate grossiers et une quantité inférieure de nitrate fins sont produites, induisant une baisse de l'AOD des nitrates d'environ 20 ou 30%.

Le Tableau 3.4 présente l'évolution de l'AOD des sulfates, des nitrates et de l'ammonium entre la période passée et future en fonction des trois SSPs et moyennée par saison sur l'Europe (en rouge) et sur la mer Méditerranée (en bleu).

		Sulfate	**Nitrate**	**Ammonium**
SSP 1-1.9	DJF	- 0.11 - 0.05	0.02 0.02	0.007 0.006
	MAM	- 0.11 - 0.05	0.03 0.03	0.010 0.012
	JJA	- 0.12 - 0.09	0.03 0.03	0.013 0.011
	SON	- 0.11 - 0.06	0.02 0.02	0.009 0.008
SSP 3-7.0	DJF	- 0.10 - 0.04	0.02 0.01	0.006 0.005
	MAM	- 0.10 - 0.04	0.03 0.03	0.012 0.012
	JJA	- 0.11 - 0.07	0.04 0.03	0.012 0.012
	SON	- 0.10 - 0.04	0.02 0.01	0.009 0.006
SSP 5-8.5	DJF	- 0.11 - 0.05	0.02 0.02	0.006 0.006
	MAM	- 0.10 - 0.05	0.03 0.03	0.010 0.012
	JJA	- 0.12 - 0.08	0.03 0.03	0.013 0.011
	SON	- 0.11 - 0.05	0.02 0.02	0.009 0.008

Table 3.4 – Évolution de l'AOD (550 nm) des sulfates, des nitrates et de l'ammonium entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur l'Europe (en rouge) et la mer Méditerranée (en bleu).

Ce tableau montre que, peu importe le scénario, la baisse de l'AOD des sulfates sur l'Europe est assez constante au cours de l'année malgré une baisse légèrement plus élevée en été. En revanche, sur la Méditerranée, la baisse d'AOD des sulfates durant l'été est plus accentuée que sur le reste de l'année. Concernant les nitrates et l'ammonium on remarque que ceux-ci présentent une hausse plus marquée durant le printemps et l'été ce qui est en accord avec la baisse plus forte des sulfates en été ainsi que des émissions d'ammoniac plus élevées durant ces saisons. Ces trois types de particules vont donc fortement évoluer entre la période 1971-2000 et 2021-2050 que ce soit en terme de concentration à la surface ou d'AOD. En effet, avec le scénario SSP 5-8.5, l'AOD des sulfates va baisser jusqu'à être quasiment nulle sur l'Europe dans la période future tandis que l'AOD des nitrates et de l'ammonium va quant à elle augmenter de 50 % entre ces deux périodes. Ces résultats sont donc cohérents

avec l'étude de Hauglustaine et al. (2014) qui montre que l'AOD des aérosols de nitrate va augmenter à l'échelle globale d'ici la fin du siècle notamment suite à la forte baisse des aérosols de sulfate. Nos résultats sont aussi cohérents avec l'étude de Bellouin et al. (2011) qui indique que les particules de nitrate vont devenir l'espèce d'aérosols dominante en Europe.

3.3.2.2 Le carbone suie et le carbone organique

Comme précédemment, nous étudions dans un premier temps l'évolution des émissions et de la concentration massique en surface des aérosols carbonés avec le SSP 5-8.5 puis dans un deuxième temps celle de leurs AOD.

Évolution des émissions et de la concentration massique de surface des aérosols carbonés selon le scénario SSP 5-8.5

Contrairement aux émissions de dioxyde de soufre, la baisse des émissions de carbone organique et de carbone suie est plus modérée sur l'Europe comme le montre la Figure 3.2.

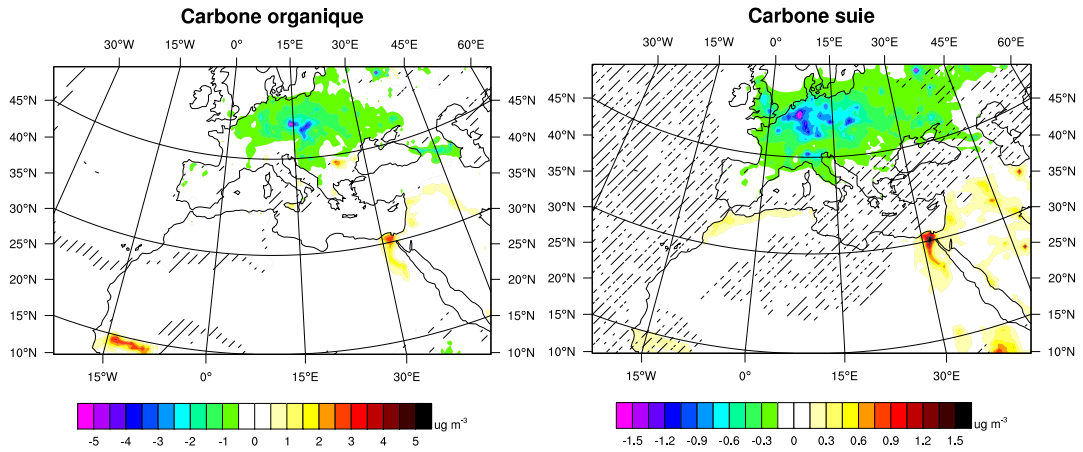

Figure 3.17 – Évolution de la concentration de surface ($\mu g\,m^{-3}$) du carbone organique et du carbone suie entre la période 1971-2000 et 2021-2050 suivant le SSP 5-8.5 et moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

La baisse des émissions de ces deux types d'aérosol a essentiellement lieu en Europe et notamment sur le Benelux. Néanmoins, certaines zones spécifiques comme le delta du Nil montrent des émissions deux fois plus importantes dans la période future que dans la période passée pour ces aérosols. Ces changements d'émissions,

montrés pour le SSP 5-8.5 sur la Figure 3.17, vont entraîner des baisses de concentration de surface de 30% en moyenne sur l'Europe pour le carbone organique et de 60% pour le carbone suie avec un maximum durant l'hiver, qui est la saison avec les baisses d'émissions les plus élevées.

Évolution de l'AOD des aérosols carbonés et comparaison entre les trois SSPs

La Figure 3.2 indique que les baisses d'émissions du carbone suie et du carbone organique sont les plus importantes avec le SSP 1-1.9 suivis par le SSP 5-8.5 et enfin par le SSP 3-7.0 qui présente les émissions les plus élevées pour la période 2021-2050. Ces changements d'émissions se répercutent sur l'évolution de la concentration et de l'AOD de ces aérosols.

		Carbone organique	**Carbone suie**
SSP 1-1.9	DJF	- 0.008	- 0.004
	MAM	- 0.004	- 0.003
	JJA	- 0.003	- 0.003
	SON	- 0.004	- 0.003
SSP 3-7.0	DJF	- 0.004	- 0.002
	MAM	- 0.001	- 0.002
	JJA	- 0.001	- 0.002
	SON	- 0.001	- 0.002
SSP 5-8.5	DJF	- 0.006	- 0.003
	MAM	- 0.002	- 0.002
	JJA	0.001	- 0.002
	SON	0	- 0.002

Table 3.5 – Évolution de l'AOD (550 nm) du carbone organique et du carbone suie entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5 et moyennée par saison sur l'Europe.

En effet, comme nous pouvons le voir sur la Figure 3.18 qui montre l'évolution de l'AOD du carbone organique et du carbone suie en fonction des trois scénarios, la baisse d'AOD la plus importante a lieu avec le SSP 1-1.9 (- 0.005 en moyenne sur l'Europe pour le carbone organique et -0.003 pour le carbone suie). De plus, le Tableau 3.5 montre que les baisses d'AOD des aérosols carbonés les plus importantes sont simulées durant l'hiver avec les trois scénarios. Le SSP 1-1.9 est aussi le scénario entraînant le moins d'augmentation d'AOD sur le delta du Nil ainsi que sur l'ensemble de la partie sud du domaine. À l'inverse, le SSP 3-7.0 montre l'augmentation d'AOD la plus élevée avec notamment une hausse, sur le delta du Nil,

d'environ 0.015 pour le carbone organique et le carbone suie.

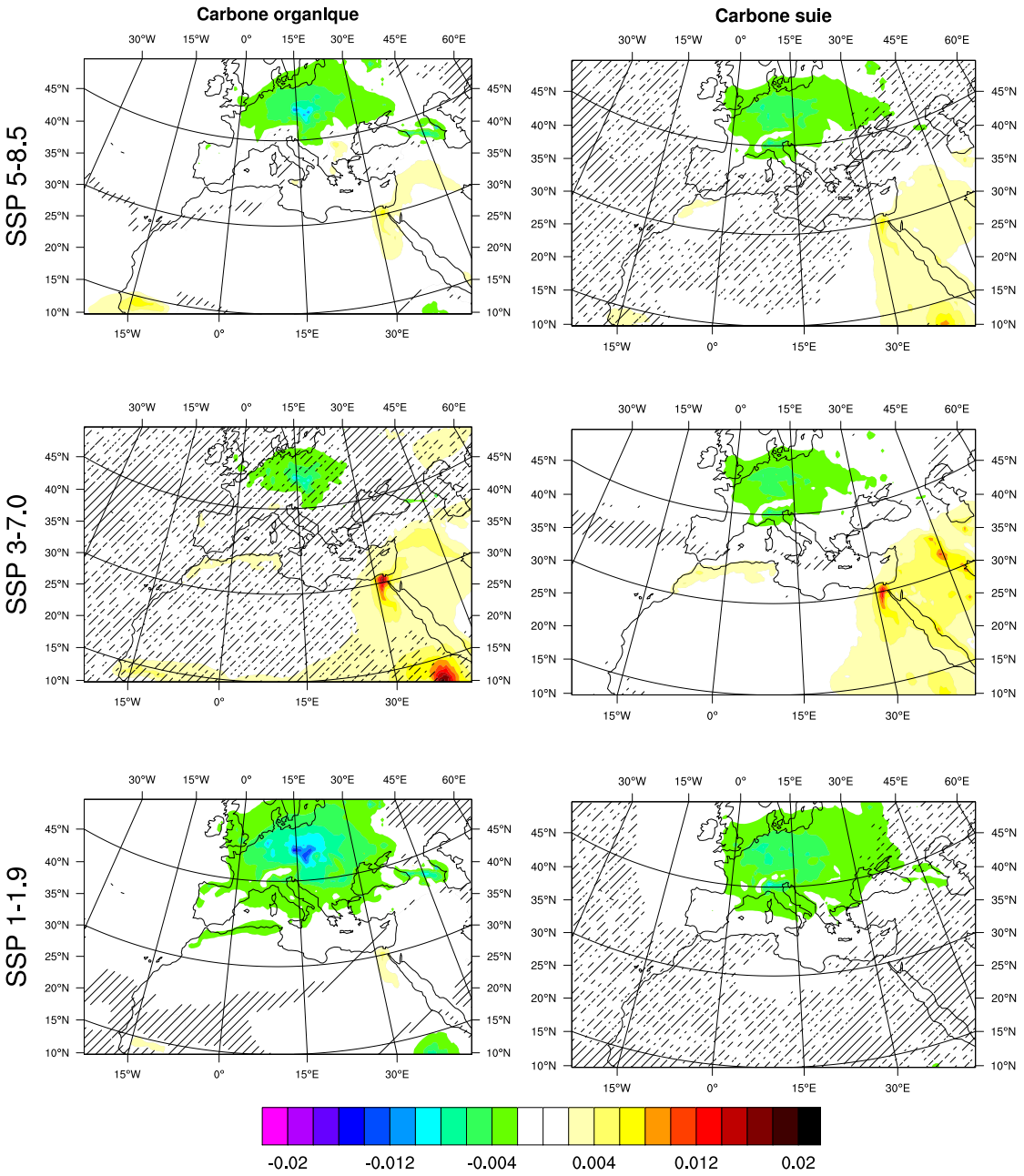

Figure 3.18 – Évolution de l'AOD (550 nm) du carbone organique (gauche) et du carbone suie (droite) entre la période 1971-2000 et 2021-2050 suivant le SSP 5-8.5 (haut), le SSP 3-7.0 (milieu) et le SSP 1-1.9 (bas) moyennée sur l'année. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

Finalement, malgré une baisse de la concentration et de l'AOD des aérosols carbonés sur l'Europe qui atteint les valeurs les plus élevées avec le SSP 1-1.9 durant l'hiver, il est important de noter que ces changements restent faibles, notamment par rapport à ceux obtenus par les particules de sulfate ou bien de nitrate.

3.3.3 Récapitulatif

Nous venons d'analyser l'évolution des différents aérosols entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050, en fonction de différents scénarios. Les Figures 3.19 et 3.20 montrent une synthèse de l'évolution de la concentration de surface et de l'AOD de ces différentes particules entre ces deux périodes sur l'Europe et sur la mer Méditerranée. Premièrement, la Figure 3.20 montre que la concentration totale des aérosols sur la mer Méditerranée est largement supérieure à celle observée sur l'Europe notamment grâce à la forte présence des aérosols naturels comme les poussières désertiques ou les sels marins qui représentent la grande majorité de la concentration totale des aérosols sur cette zone. Néanmoins, en terme d'AOD, sur la période 1971-2000 l'AOD totale sur l'Europe est similaire à celle sur la mer Méditerranée de l'ordre de 0.2. Cela est dû au fait que les particules naturelles qui sont généralement de taille assez importante, présentent une section efficace réduite par rapport aux aérosols fins de pollution. L'AOD, étant une combinaison de la concentration et de la section efficace des aérosols, n'est donc pas directement proportionnelle à la concentration des aérosols.

Concernant l'évolution des aérosols entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050, les Figures 3.19 et 3.20 montrent une future baisse de la concentration ainsi que de l'AOD totale sur l'Europe et sur la mer Méditerranée. En terme d'AOD, cette baisse équivaut à environ - 0.07 en moyenne annuelle selon le SSP 5-8.5 sur l'Europe et - 0.02 sur la mer méditerranée. Cette baisse d'AOD totale s'explique, en partie, par la forte baisse de l'AOD des sulfates qui est observable entre la période passée et la période future sur tous les mois de l'année. En effet, l'AOD de ces particules sur l'Europe passe de 0.12 en moyenne sur la période 1971-2000 à 0.01 sur la période future selon le SSP 5-8.5, ce qui équivaut à une baisse de 90 %. De même, sur la mer Méditerranée, cette baisse est de l'ordre de 85 %. En revanche, cette forte baisse de l'AOD des sulfates et donc de l'AOD totale est compensée à hauteur de 30% par la hausse de l'AOD des nitrates et de l'ammonium comme le montre la Figure 3.20. Sur l'Europe, en moyenne sur l'année, l'AOD des nitrates va passer de 0.03 (0.01 pour l'ammonium) sur la période 1971-2000 à 0.06 (0.02 pour l'ammonium) sur la période 2021-2050, toujours selon le SSP 5-8.5, soit une hausse de 100 %. Sur la mer Méditerranée, l'AOD de ces aérosols va augmenter d'environ 300 % pour les nitrates et d'environ 230 % pour l'ammonium. Les autres aérosols (poussières désertiques, sels marins, carbone organique et carbone suie) ne montrent pas de forts changements de concentration ni d'AOD entre les deux périodes étudiées, que ce soit sur l'Europe ou la mer Méditerranée.

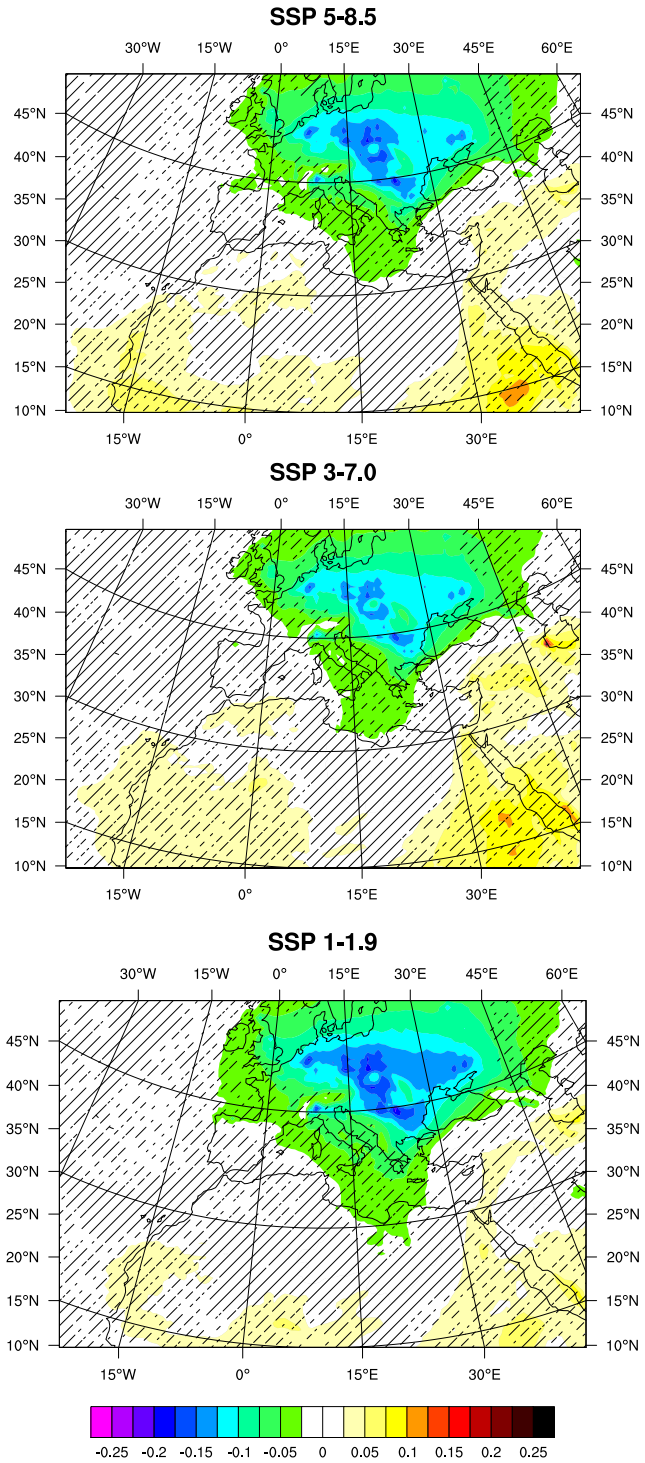

Figure 3.19 – Évolution de l'AOD totale entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5.

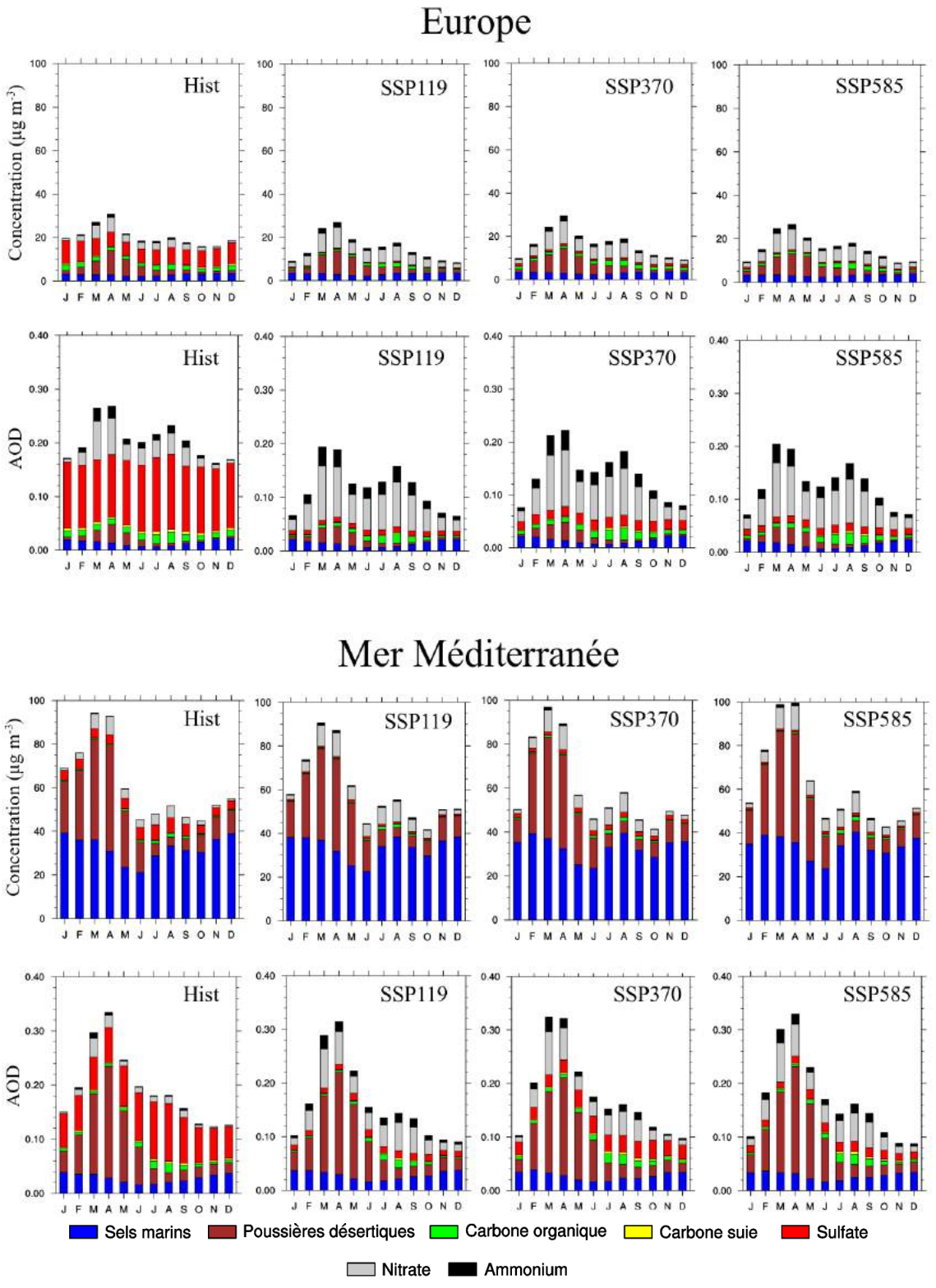

Figure 3.20 – Évolution de la concentration ($\mu g\,m^{-3}$) et de l'AOD des différents aérosols entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) suivant le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5 sur l'Europe et la mer Méditerranée.

Finalement, les changements les plus importants en termes de concentration et d'AOD entre la période passée et la période future ont donc lieu sur l'Europe et s'expliquent essentiellement par une forte baisse de la concentration et de l'AOD des particules de sulfate, qui est partiellement compensée par la hausse de la concentration et de l'AOD des aérosols de nitrate et d'ammonium. Ces changements sont robustes en fonction des trois scénarios utilisés dans ce travail. Néanmoins, le SSP 3-7.0 est celui qui montre la plus faible diminution d'AOD totale sur l'Europe avec une baisse de 0.06, contre 0.07 avec le SSP 5-8.5 et 0.08 avec le SSP 1-1.9. Cela est dû à une baisse plus modérée de l'AOD des sulfates et à une légère hausse de l'AOD des nitrates, initialement dues à des émissions de dioxyde de soufre et d'ammoniac plus élevées avec ce scénario.

Excepté ces quelques variations, l'ensemble de ces résultats a donc montré une baisse de l'AOD totale des aérosols sur l'Europe que ce soit avec le scénario SSP 5-8.5, le SSP 3-7.0 ou encore avec le SSP 1-1.9. Ces résultats sont donc en accord avec les premières études qui ont abordé l'évolution des particules fines, et notamment des PM_{10} et $PM_{2.5}$, prévoyant une diminution de celles-ci sur l'Europe d'ici la fin du siècle (Markakis et al., 2014; Lacressonnière et al., 2017; Cholakian et al., 2019).

Suite à l'évolution spécifique de chaque type d'aérosols, la contribution de ceux-ci à l'AOD totale va donc elle aussi changer entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050). Le chapitre précédent nous avait déjà permis de voir que les nitrates allaient devenir le principal contributeur à l'AOD totale à partir de l'année 2005 sur l'Europe. Ce chapitre nous a permis d'aller plus loin et de simuler quelle sera la contribution relative de chaque type d'aérosol à l'AOD totale future (2021-2050) sur l'Europe et sur la mer Méditerranée en fonction de trois scénarios différents. Le Tableau 3.6 confirme bien que les particules de nitrate deviendront le plus haut contributeur à l'AOD totale, sur l'Europe, à hauteur d'environ 45 % sur la période 2021-2050 en fonction des différents SSPs contre seulement 15 % sur la période 1971-2000. La contribution de ces aérosols à l'AOD totale est la plus élevée (47.5 %) avec le SSP 1-1.9. Ces résultats sont donc cohérents avec ceux de l'étude de Bellouin et al. (2011) qui montrent aussi que les nitrates vont devenir l'espèce d'aérosols dominante en Europe. De plus, à l'échelle globale, Papadimas et al. (2012) ont également montré que les nitrates allaient passer d'une contribution de 23% à l'AOD anthropique en 2000 à une contribution de 56% en 2090 pour le RCP 4.5. Malgré ces études, la question de l'évolution future des aérosols avec un modèle régional sur la région Euro-Méditerranéenne n'a encore été que rarement abordée, il sera donc intéressant de comparer ces résultats avec des études futures utilisant des systèmes de modélisation similaires.

Europe	**Historique**	**SSP 1-1.9**	**SSP 3-7.0**	**SSP 5-8.5**
Sulfate	60	7	13	10
Nitrate	15	47.5	43.5	46
Ammonium	5	17	14.5	15.5
Carbone organique	6	6	8	8
Carbone suie	2	1	1.5	1.5
Sels marins	7	12	10.5	11
Poussières désertiques	5	9.5	9	9
Mer Méditerranée				
Sulfate	38.5	7	16	9
Nitrate	6	23	19	21.5
Ammonium	1.5	7.5	6	7
Carbone organique	4	3.5	5	4.5
Carbone suie	1.5	1	2	1.5
Sels marins	14.5	17	15	16.5
Poussières désertiques	34	41	37	40

Table 3.6 – Contribution relative (en %) des différents aérosols à l'AOD totale (550 nm) sur la période historique (1971-2000) et sur la période future (2021-2050) selon les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5.

Concernant la mer Méditerranée, les aérosols de nitrate vont devenir le deuxième plus haut contributeur à l'AOD totale, à hauteur d'environ 20 % selon les trois SSPs, juste derrière les poussières désertiques qui elles contribueront à environ 40 % à l'AOD totale. La contribution des aérosols d'ammonium à l'AOD totale sur l'Europe montre aussi une nette progression entre les deux période en étant multipliée par trois et passant ainsi de 5 à environ 15 %. Sur la mer Méditerranée, la contribution de ces aérosols à l'AOD totale passe de 1.5 % sur la période passée à environ 7 % sur la période future. À l'inverse, les sulfates qui étaient l'espèce avec la plus forte contribution (60 %) à l'AOD totale durant la période 1971-2000 avec une AOD moyenne de 0.12 sur l'Europe ne contribuent plus qu'à 10 % à l'AOD totale dans la période future avec le SSP 5-8.5 (7 % avec le SSP 1-1.9 et 13 % avec le SSP 3-7.0). Sur la mer Méditerranée, les aérosols de sulfate passent également du plus haut contributeur (38.5 %) à l'AOD totale à l'une des espèces les moins contributives excepté avec le SSP 3-7.0 où les sulfates ont une contribution à l'AOD totale de 16 %, comparable à celle des nitrates (19 %) ou des sels marins (15 %). Concernant les aérosols d'origine naturelle, leur contribution va quant à elle légèrement augmenter entre les deux périodes à la fois sur l'Europe et sur la mer Méditerranée. Grâce à ce travail, nous avons donc pu aborder l'évolution ainsi que la contribution future de chaque type d'aérosol à l'AOD totale. Afin d'élargir la gamme des résultats obtenus

durant cette étude, qui a été réalisée avec un seul modèle pour trois scénarios, nous allons maintenant les comparer à ceux obtenus avec le modèle CNRM-ESM2-1 (modèle forceur du modèle régional ALADIN-Climat) pour huit scénarios différents.

3.4 Comparaison de l'évolution de l'AOD entre le modèle CNRM-ESM2-1 et ALADIN-Climat

Les précédents résultats ont montré une baisse de l'AOD totale des aérosols entre les périodes 1971-2000 et 2021-2050, avec le modèle régional ALADIN-Climat, pour les SSPs 5-8.5, 3-7.0 et 1-1.9 sur l'Europe et la mer Méditerranée. La Figure 3.21 (A) compare, en fonction de différents SSPs, l'évolution de l'AOD totale simulée avec ce modèle régional à celle simulée par son modèle forceur, le modèle Système Terre CNRM-ESM2-1 présenté au début de ce chapitre et qui, pour rappel, ne prend pas en compte les aérosols de nitrate et d'ammonium. Cette figure montre que le modèle ALADIN-Climat présente une AOD totale plus élevée que le modèle CNRM-ESM2-1, que ce soit durant la période historique ou la période future. L'AOD maximale sur l'Europe durant la période historique atteint par exemple 0.23 avec le modèle ALADIN-Climat tandis que la valeur maximale avec le modèle CNRM-ESM2-1 est de 0.15. Sur cette région, la majeure partie de la différence d'AOD totale entre les deux modèles sur la période historique ne provient pas de l'absence des particules de nitrate et d'ammonium dans le modèle global (Figure 3.21, B) mais plutôt, comme le montre la Figure 3.22, d'une différence d'AOD des particules de sulfate sur la période allant de 1971 à 1990. Cette différence s'explique par des émissions de dioxyde de soufre plus élevées, et donc à une production plus forte d'aérosols de sulfate dans le modèle régional ALADIN-Climat. À partir de l'année 1990 ainsi que sur la période future (2021-2050), la différence d'AOD totale entre les deux modèles n'est plus due aux aérosols de sulfate mais résulte principalement de la non prise en compte des aérosols de nitrate et d'ammonium par le modèle global comme le montre la Figure 3.21 (B). Sur la mer Méditerranée, la Figure 3.21 montre également une différence d'AOD totale de l'ordre de 0.05 qui est aussi due à une différence d'AOD des particules de sulfate entre les deux modèles ainsi qu'à la non prise en compte des particules de nitrate et d'ammonium dans le modèle CNRM-ESM2-1.

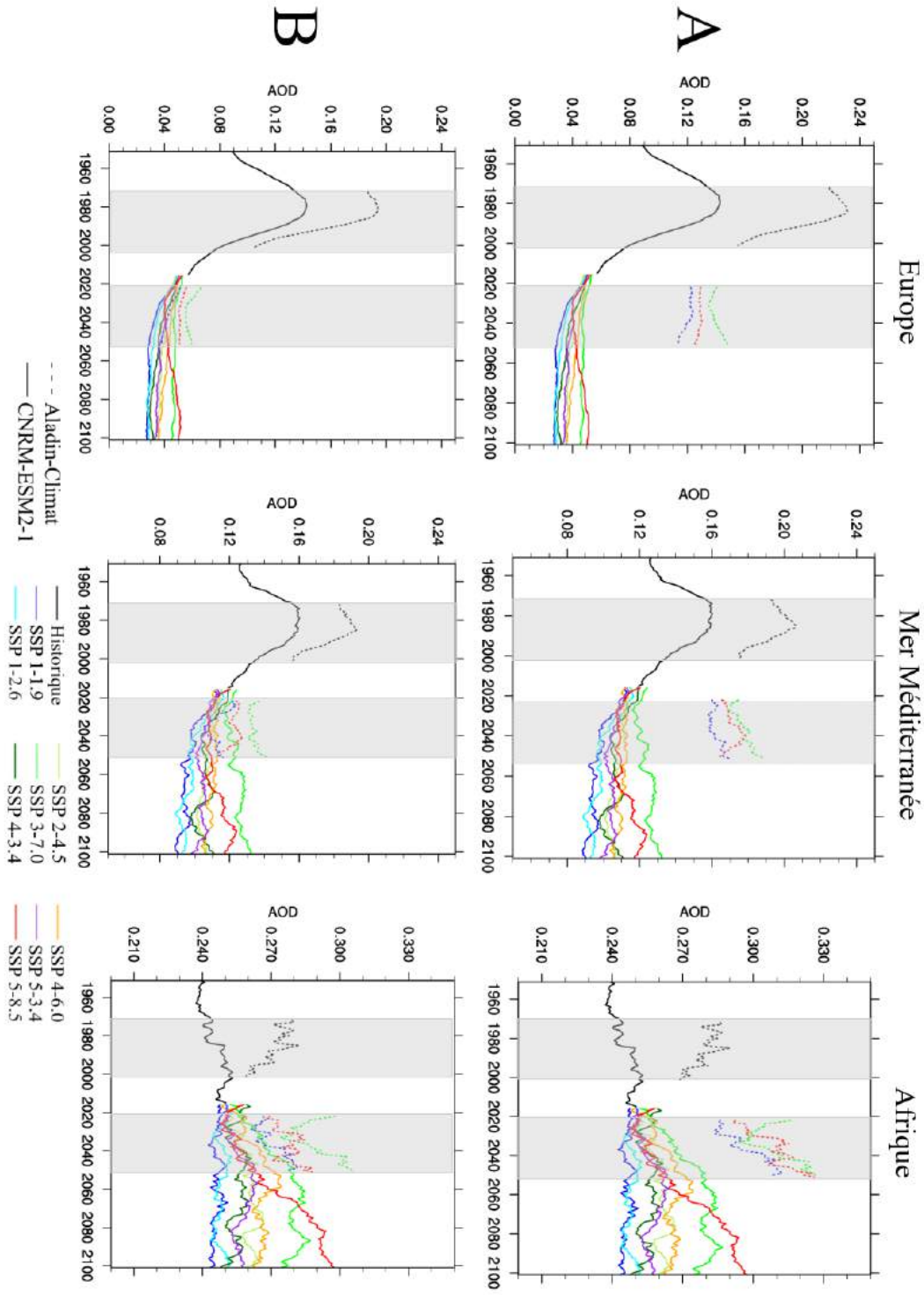

Figure 3.21 – Évolution de l'AOD totale (A) et de l'AOD totale sans les particules de nitrate et d'ammonium (B) sur la période 1950-2100 suivant le modèle global CNRM-ESM2-1 (trait plein) et le modèle régional ALADIN-Climat (trait pointillé) pour différents SSPs sur l'Europe, la mer Méditerranée et l'Afrique. Les barres grisées mettent en évidence la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) des simulations réalisées avec le modèle régional ALADIN-Climat.

Néanmoins, sur ces deux régions et malgré cette différence en terme de valeur d'AOD totale, la Figure 3.21 (A) montre que celle-ci a une évolution similaire entre les deux modèles, notamment durant la période 1971-2000 avec une forte baisse de l'AOD totale correspondante à la baisse de l'AOD des aérosols de sulfate vue précédemment.

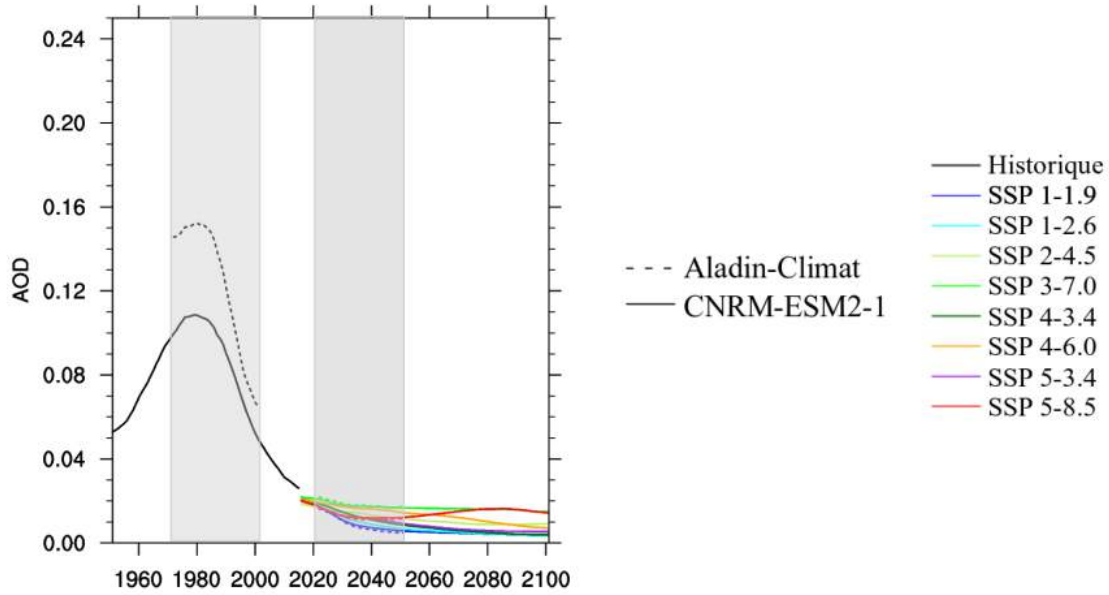

Figure 3.22 – Évolution de l'AOD des sulfates sur l'Europe suivant le modèle global CNRM-ESM2-1 (trait plein) et le modèle régional ALADIN-Climat (trait pointillé) pour différents SSPs sur la période 1950-2100. Les barres grisées mettent en évidence la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) des simulations réalisées avec le modèle régional ALADIN-Climat.

Concernant l'Afrique, la Figure 3.21 (A) montre également une AOD totale plus élevée avec le modèle régional (0.28 en moyenne avec ALADIN-Climat contre 0.25 avec le modèle CNRM-ESM2-1 sur la période historique). Celle-ci est due à la fois à un vent plus fort et à fraction de sol nu plus importante avec le modèle régional comme le montre la Figure 3.23 (B et C) engendrant donc une AOD des poussières désertiques plus élevée (Figure 3.23, A) sur les deux périodes étudiées. Ce vent plus fort simulé par le modèle régional ALADIN-Climat pourrait être attribué à la résolution plus fine de ce modèle régional par rapport au modèle global.

La différence d'AOD des poussières désertiques entre les deux modèles explique aussi en partie l'écart d'AOD totale observée sur la mer Méditerranée. En revanche, contrairement à l'Europe ou à la mer Méditerranée, l'évolution de l'AOD totale sur l'Afrique durant la période historique est différente entre le modèle régional, qui montre une baisse de 0.02 et le modèle global, qui montre lui une hausse de 0.01.

Dans leur étude, Ginoux et al. (2004) n'ont montré aucune tendance significative des poussières désertiques entre 1981 et 1996 à l'échelle globale, malgré une hausse de la quantité de poussières désertiques entre 1981 et 1988. Ici, la différence d'AOD des poussières désertiques entre le modèle régional et le modèle global est en partie due à l'évolution des poussières désertiques car celle-ci diminue plus fortement dans le modèle régional que dans le modèle global comme le montre la Figure 3.23 (A). De plus, l'AOD des aérosols de carbone organique, de sulfate et de carbone suie augmentent plus fortement avec le modèle global durant la période historique sur l'Afrique. Ces changements expliquent donc l'évolution différente de l'AOD totale entre le modèle régional et le modèle global sur l'Afrique pendant la période 1971-2000.

Concernant les différents SSPs, la Figure 3.21 montre une évolution cohérente entre le modèle ALADIN-Climat et le modèle CNRM-ESM2-1. En effet, sur l'Europe, le SSP 3-7.0 est le scénario présentant la plus forte AOD totale, à la fois avec le modèle régional mais aussi avec le modèle global. À l'inverse, le SSP 1-1.9 est, dans les deux cas, le scénario avec l'AOD totale la plus faible. Le SSP 5-8.5 est un scénario intermédiaire dans le cas présent. Cette cohérence entre le modèle régional et le modèle global au niveau des scénarios est aussi retrouvée sur la mer Méditerranée ou encore l'Afrique. Cependant sur l'Afrique, pour le SSP 1-1.9, l'AOD totale va augmenter avec le modèle régional tandis qu'elle va rester constante voir diminuer avec le modèle global malgré une hausse de l'AOD des poussières désertiques avec ces deux modèles (Figure 3.23, A). En effet, cette hausse d'AOD des poussières désertiques est compensée, dans le cas du modèle global CNRM-ESM2-1, par la baisse d'AOD des aérosols de sulfate, de carbone organique et de carbone suie. De plus, la hausse de l'AOD des poussières désertiques est plus modérée, sur la période 2021-2050, avec le modèle global car la fraction de sol nu, présentée sur la Figure 3.23 (C) va diminuer pour l'ensemble des scénarios tandis que celle-ci est fixée constante (90%) pour le modèle régional. Sur la fin du siècle avec le modèle CNRM-ESM2-1, l'AOD des poussières désertiques ne montre plus d'augmentation, excepté pour le SSP 5-8.5, malgré une hausse de la vitesse du vent. En effet, à l'exception du SSP 5-8.5, la fraction de sol nu va baisser sur l'Afrique, jusqu'à 15% pour le SSP 3-7.0, ce qui va limiter la hausse des émissions et donc de l'AOD des particules de poussières désertiques. Pour finir, on remarque que les scénarios utilisés durant ce travail de thèse, soit les SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5, englobent l'intégralité des autres scénarios à la fois sur l'Europe, la mer Méditerranée et l'Afrique, et sont donc par conséquent représentatifs de l'ensemble des scénarios possibles en terme d'évolution d'AOD totale.

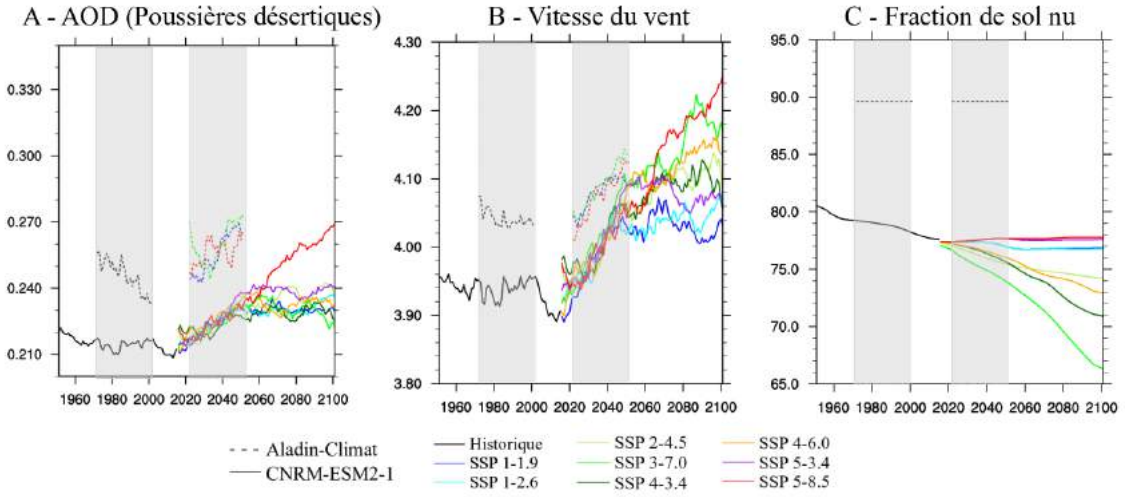

Figure 3.23 – Évolution, sur l'Afrique, de l'AOD des poussières désertiques (A), de la vitesse du vent (m s^{-1}, B) et de la fraction de sol nu (%, C) sur la période 1950-2100 suivant le modèle global CNRM-ESM2-1 (trait plein) et le modèle régional ALADIN-Climat (trait pointillé) pour différents SSPs. Les barres grisées mettent en évidence la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) des simulations réalisées avec le modèle régional ALADIN-Climat.

Cette comparaison entre le modèle régional ALADIN-Climat et le modèle Système Terre CNRM-ESM2-1 nous a permis de mettre en évidence certaines différences en terme d'AOD totale. Sur l'Europe, celle-ci est due à une différence en terme d'AOD des sulfates ainsi qu'à la non prise en compte des aérosols de nitrate et d'ammonium par le modèle global tandis que sur l'Afrique, elle semble essentiellement expliquée par une AOD des particules de poussières désertiques plus élevée avec le modèle régional, qui est due à des vents plus forts. Ces différences entre le modèle ALADIN-Climat et le modèle CNRM-ESM2-1 expliquent aussi celle relevée sur la mer Méditerranée. Malgré cela l'évolution de l'AOD totale est similaire entre les deux modèles, notamment sur l'Europe et la mer Méditerranée.

Le chapitre 3 nous a donc permis de connaître l'évolution ainsi que la contribution future des différents aérosols à l'AOD totale. Premièrement, nous avons vu que la forte baisse de l'AOD totale sur l'Europe, similaire entre les différents scénarios et de 35% en moyenne, est essentiellement due à la diminution de la concentration ainsi que de l'AOD des aérosols de sulfates. Celle-ci est néanmoins compensée d'environ 30% par la hausse des particules de nitrate et d'ammonium. Sur la mer Méditerranée on observe une évolution similaire des aérosols avec une baisse de 85% de l'AOD des sulfates et une hausse environ trois fois plus élevée de l'AOD des nitrates. Excepté ces particules, les autres aérosols ne montrent pas de forts changements que ce soit sur l'Europe ou la mer Méditerranée. Concernant l'Afrique, la hausse d'AOD

totale observée est essentiellement due à l'augmentation de l'AOD des particules de poussières désertiques ainsi qu'à celle des aérosols de nitrate et d'ammonium. Suite à cela nous avons vu que, selon les trois scénarios étudiés, les nitrates allaient être le plus haut contributeur à l'AOD totale sur l'Europe, à hauteur d'environ 45%, sur la période 2021-2050, ce qui est cohérent avec la première étude réalisée dans le chapitre 2. À l'inverse, les aérosols de sulfate passe d'une contribution à l'AOD anthropique de 60% à une contribution de seulement 10% dans la période future sur l'Europe. On retrouve une évolution similaire sur la mer Méditerranée avec un passage de 6 à 20% pour la contribution des nitrates à l'AOD anthropique ainsi qu'une baisse allant de 20 à 30% selon le scénario pour la contribution des sulfates. Le chapitre suivant va maintenant être destiné à étudier l'impact des changements de ces différents aérosols sur le rayonnement, et plus largement sur le climat futur de la région Euro-Méditerranéenne.

Chapitre 4

Impact des aérosols sur le rayonnement et sensibilité du climat futur de la région Euro-Méditerranéenne aux aérosols anthropiques

Sommaire

4.1 Évolution du forçage radiatif direct des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne 128

4.2 Sensibilité du climat Euro-Méditerranéen futur aux aérosols 137

4.3 Comparaison entre deux méthodes : schéma interactif versus AOD climatologiques 150

Le chapitre précédent a permis d'étudier l'évolution des différents aérosols, d'origine naturelle ou anthropique, entre la période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050) en fonction de trois scénarios différents grâce au schéma d'aérosols TACTIC inclus dans le modèle climatique régional ALADIN-Climat. Cette évolution, dominée par la baisse de la concentration des sulfates qui est partiellement compensée par la hausse de la concentration des aérosols de nitrate sur la région Euro-Méditerranéenne, va par conséquent impacter leur forçage radiatif et notamment leur forçage radiatif direct (DRF). Ce changement du DRF exercé à la surface et au sommet de l'atmosphère (Top Of the Atmosphere, TOA) par les différentes particules va être étudié dans une première partie. Sauf mention contraire, au cours de cette étude, les différentes valeurs de forçage radiatif seront calculées en conditions nuageuses (all sky). Suite à cette première partie nous nous intéresserons à l'impact de ces futurs changements sur le climat européen. Pour finir, nous comparerons ces résultats à ceux d'une autre étude, réalisée également à partir du modèle régional ALADIN-Climat, mais utilisant ici des AOD climatologiques en échange du schéma interactif d'aérosols ainsi qu'une version antérieure du modèle forceur CNRM-CM.

4.1 Évolution du forçage radiatif direct des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne

Avant d'étudier l'évolution du forçage radiatif des différents aérosols, nous allons dans un premier temps nous intéresser au DRF exercé par l'ensemble des particules, dans les courtes et les grandes longueurs d'onde, sur la période historique (1971-2000). Celui-ci est présenté sur la Figure 4.1, saison par saison à la fois en surface et au TOA.

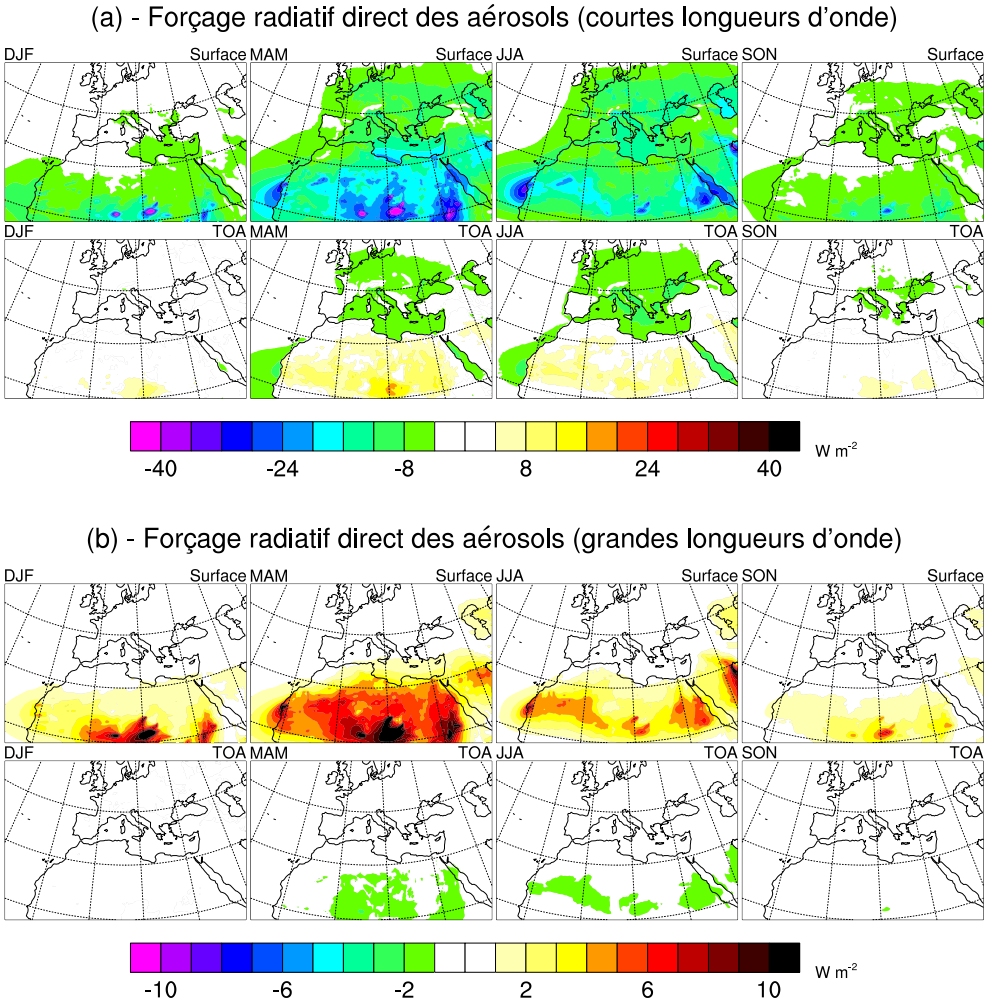

Figure 4.1 – DRF moyen (W m^{-2}), dans les courtes (a) et grandes (b) longueurs d'onde, de l'ensemble des aérosols sur la période 1971-2000 en surface et au TOA.

La Figure 4.1 (a) montre que les aérosols, en absorbant et diffusant le rayonne-

ment solaire incident, provoquent un DRF dans les courtes longueurs d'onde à la surface estimé en moyenne sur l'année à - 5.7 W m^{-2} sur l'Europe, - 8.7 W m^{-2} sur la mer Méditerranée et - 10.6 W m^{-2} sur l'Afrique du Nord. De nombreuses études ont déjà abordé les effets radiatifs des aérosols sur la région méditerranéenne (Formenti et al., 2002; Markowicz et al., 2002; Meloni et al., 2003; Haywood et al., 2003; Balis et al., 2004; Roger et al., 2006; Saha et al., 2008; Bergamo et al., 2008; Santos et al., 2008; Di Biagio et al., 2009; Santese et al., 2010) mais ces études sont généralement limitées spatialement et dans la durée. Néanmoins, certaines études avec des simulations multi-annuelles ont aussi abordé cette question. Par exemple, Nabat et al. (2015b) ont montré un DRF, en surface dans les courtes longueurs d'onde sur la période 2003-2009, de l'ordre de - 14.7 W m^{-2} sur l'Europe, - 20.9 W m^{-2} sur la mer Méditerranée et - 19.7 W m^{-2} sur l'Afrique du Nord. Les différences importantes entre ces deux études sont similaires avec celles observées au cours du chapitre 2 (Drugé et al., 2019) et s'expliquent en grande partie par une version différente du modèle atmosphérique entre les deux exercices mais aussi par la non prise en compte des aérosols de nitrate et d'ammonium ainsi que par l'utilisation, non pas d'un schéma interactif, mais de climatologies d'aérosols dans l'étude de Nabat et al. (2015b). Une autre étude, utilisant le modèle RegCM incluant un schéma pronostique d'aérosols pour cinq espèces (sulfate, carbone organique, carbone suie, poussières désertiques et sels marins) a montré, sur la période 2000-2009, un DRF moyen en surface des aérosols proche de celui simulé dans ce travail de thèse, de l'ordre de -13.6 W m^{-2} sur la mer Méditerranée et de - 14.9 W m^{-2} sur l'Afrique du Nord pour le rayonnement visible (Nabat et al., 2012). En Crète, sur la partie est de la mer Méditerranée, Benas et al. (2013) ont montré, en surface, un DRF moyen des aérosols compris entre - 15 et -30 W m^{-2} sur la période 2000-2010. Enfin, une autre étude, celle de Papadimas et al. (2012), montre également à partir des données MODIS un DRF moyen des aérosols sur le bassin méditerranéen de l'ordre de -16.5 W m^{-2} en surface sur la période 2000-2007 avec un maximum durant le printemps et l'été.

Le Tableau 4.1 ainsi que la Figure 4.1 (a) montre également que le DRF le plus important, dans les courtes longueurs d'onde à la surface, a lieu durant le printemps notamment sur les régions avec de fortes émissions de poussières désertiques ainsi que sur la mer Méditerranée près des côtes. En effet, le Tableau 4.1 montre un DRF de - 13.1 W m^{-2} sur la mer Méditerranée ainsi qu'un DRF de - 17.3 W m^{-2} sur l'Afrique durant le printemps. Ces résultats sont aussi cohérents avec ceux de Nabat et al. (2012). Benas et al. (2013) indiquent, grâce à un modèle de transfert radiatif, un DRF encore plus fort, dû aux particules de poussières désertiques, pouvant aller

de - 40 à - 50 W m^{-2} sur l'est de la mer Méditerranée durant cette saison.

			Europe	**Mer Méditerranée**	**Afrique**
Courtes longueurs d'onde	Surface	DJF	- 2.1	- 4.3	- 7.2
		MAM	- 7.4	- 13.1	- 17.3
		JJA	- 9.2	- 11.9	- 12.1
		SON	- 4.2	- 5.5	- 5.8
		Moyenne	**- 5.7**	**- 8.7**	**- 10.6**
	TOA	DJF	- 1.1	- 2.6	1.2
		MAM	- 4.0	- 5.9	5.3
		JJA	- 5.3	- 7.1	3.6
		SON	- 2.8	- 3.6	1.3
		Moyenne	**- 3.3**	**- 4.8**	**2.8**
Grandes longueurs d'onde	Surface	DJF	0.2	0.5	2.5
		MAM	0.4	1.4	5.3
		JJA	0.3	0.5	2.7
		SON	0.2	0.3	1.5
		Moyenne	**0.3**	**0.7**	**3**
	TOA	DJF	0	- 0.1	- 0.1
		MAM	- 0.1	- 0.3	- 0.9
		JJA	- 0.1	- 0.1	- 0.7
		SON	0	- 0.1	- 0.3
		Moyenne	**0.05**	**- 0.1**	**0.5**

Table 4.1 – DRF moyen (W m^{-2}) en fonction des différentes saisons, dans les courtes et grandes longueurs d'onde, de l'ensemble des aérosols sur la période 1971-2000 en surface et au TOA sur l'Europe, la mer Méditerranée et l'Afrique.

Au TOA, le DRF des aérosols dans les courtes longueurs d'onde est également négatif (- 3.3 W m^{-2} sur l'Europe et - 4.8 W m^{-2} sur la mer Méditerranée en moyenne sur l'année) avec un maximum en été, excepté sur l'Afrique du Nord où il est légèrement positif (+ 2.8 W m^{-2}) en raison d'un albédo de surface élevé dans cette région et de l'albédo de simple diffusion des poussières désertiques fixé à 0.90 (550 nm) dans le modèle. Ceci est cohérent avec l'étude de Bellouin et al. (2011), réalisée à l'échelle globale, qui montre un forçage radiatif des aérosols (direct et premier effet indirect) de l'ordre de - 4 W m^{-2} au TOA sur l'Europe pour l'année 2000. De plus, sur la période 2000-2007, Papadimas et al. (2012) ont estimé un DRF au TOA sur le bassin méditerranéen de - 2.4 W m^{-2} ainsi qu'un DRF positif sur les zones désertiques de + 4.1 W m^{-2}. Pour finir, sur la période 2000-2010 en Crète, Benas et al. (2013) ont montré un DRF au TOA allant de - 4 à - 12 W m^{-2}.

Concernant le DRF des aérosols dans les grandes longueurs d'onde, qui est très largement dû aux poussières désertiques, la Figure 4.1 (b) et le Tableau 4.1 montrent

qu'il est positif en surface dû aux poussières désertiques essentiellement présentes dans la basse troposphère. Il atteint ses valeurs les plus fortes sur l'Afrique du Nord (+ 3 W m^{-2} en moyenne sur l'année) notamment au printemps avec une valeur de + 5.3 W m^{-2}. La Figure 4.1 (b) et le Tableau 4.1 montrent également que, sur l'Europe et la mer Méditerranée, le forçage radiatif des aérosols exercé dans les courtes longueurs d'onde est très largement supérieur à celui exercé dans les grandes longueurs d'onde. Comme mentionné dans le chapitre 2, le forçage radiatif des aérosols exercé dans les grandes longueurs d'onde est certainement sous-estimé car seuls les effets d'absorption y sont pris en compte (Dufresne et al., 2002). Néanmoins, les résultats montrés ici sont similaires à ceux de l'étude de Nabat et al. (2015b) qui montre un DRF des poussières désertiques dans les grandes longueurs d'onde positif de + 4.8 W m^{-2} sur l'Afrique du Nord.

Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution de ce forçage radiatif direct total, que ce soit dans les courtes ou les grandes longueurs d'onde, entre cette période passée (1971-2000) et la période future (2021-2050) en fonction des trois scénarios déjà présentés dans le chapitre précédent. Dans un premier temps nous allons commencer par l'évolution du DRF des aérosols dans les courtes longueurs d'ondes qui est présentée sur la Figure 4.2 en fonction du SSP 5-8.5 (a), du SSP 3-7.0 (b) et du SSP 1-1.9 (c). Cette figure montre une évolution du DRF total assez similaire en fonction des trois scénarios avec une baisse significative, en valeur absolue, de ce forçage radiatif direct en surface et au TOA sur l'Europe notamment durant l'été sur la plaine du Pô, le Benelux et l'Europe de l'est, allant jusqu'à 6 W m^{-2}. La baisse du DRF de l'ensemble des aérosols en surface sur l'Europe est de 1.6 W m^{-2} en moyenne avec le SSP 5-8.5, 1.2 W m^{-2} avec le SSP 3-7.0 et 2 W m^{-2} avec le SSP 1-1.9. Ce dernier présente donc, sur l'Europe, la baisse du DRF total la plus forte, ce qui est cohérent avec l'évolution de l'AOD totale vu précédemment dans le chapitre 3. En effet, le SSP 1-1.9 est le scénario parmi les trois étudiés qui présentait la baisse d'AOD totale la plus élevée sur l'Europe (0.08 pour le SSP 1-1.9 contre 0.07 avec le SSP 5-8.5 et 0.06 avec le SSP 3-7.0).

Sur l'Afrique du Nord, en revanche, la Figure 4.2 montre une hausse en valeur absolue du DRF des aérosols dans les courtes longueurs d'onde, en surface, allant de 0.5 W m^{-2} avec le SSP 1-1.9 jusqu'à 1.4 W m^{-2} avec le SSP 3-7.0. Au TOA, on retrouve ces mêmes évolutions mais avec des valeurs plus faibles de l'ordre de 1 W m^{-2} sur l'Europe et 0.2 W m^{-2} sur l'Afrique du Nord. Comme nous l'avons vu, ces changements de forçage radiatif sont similaires à ceux de l'AOD totale présentés précédemment au cours du chapitre 3. De plus, ces résultats sont aussi cohérents avec ceux de Shindell et al. (2013) qui montrent, avec la majorité des modèles ACCMIP,

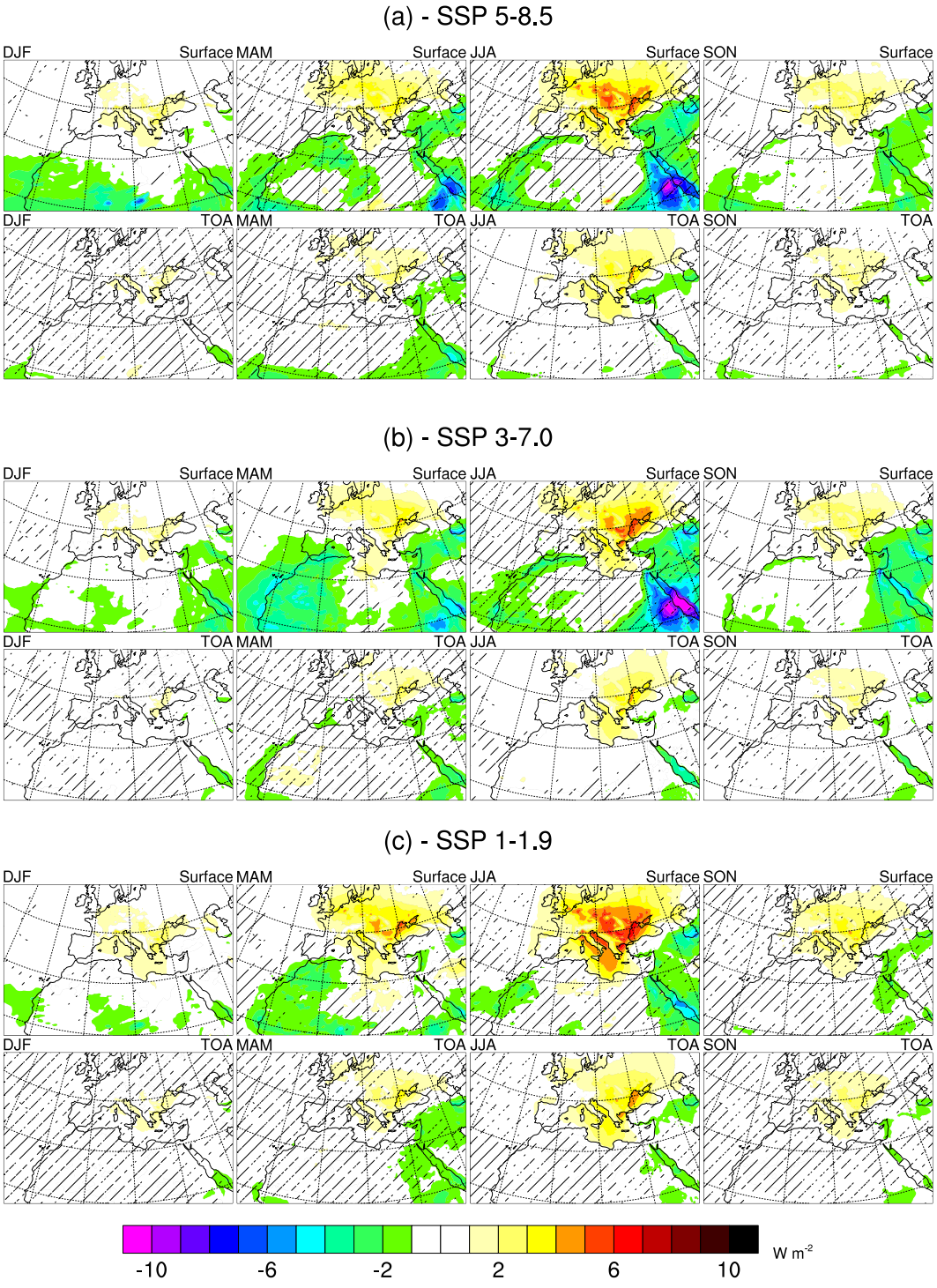

Figure 4.2 – Évolution du forçage radiatif (W m^{-2}) direct moyen, dans les courtes longueurs d'onde en surface et au TOA, de l'ensemble des aérosols entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 en fonction du SSP 5-8.5 (a), du SSP 3-7.0 (b) et du SSP 1-1.9 (c). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

un forçage radiatif des aérosols (effets direct et indirects) plus faible en 2030 qu'en 1980 sur l'Europe, d'environ 1 W m^{-2} avec le RCP 2.6 et le RCP 8.5. Pour finir, en conditions de ciel clair et dans les courtes longueurs d'onde, ce travail indique une baisse, en valeur absolue, du forçage radiatif des aérosols au TOA sur l'Europe de l'ordre de 0.7 W m^{-2} en moyenne entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050. À titre de comparaison, l'étude de Paulot et al. (2018) montre, dans ces mêmes conditions sur la période allant de 2001 à 2015, une baisse du forçage radiatif des aérosols de 0.7-1 W m^{-2} par décennie sur l'Europe de l'ouest.

Avant d'étudier l'évolution du DRF de chaque type d'aérosols, nous pouvons faire la même comparaison pour les grandes longueurs d'onde entre la période passée et future. Cette évolution, très largement dominée par celle des poussières désertiques, est présentée sur la Figure 4.3 pour le SSP 5-8.5 (a), le SSP 3-7.0 (b) et le SSP 1-1.9 (c). Cette figure montre que les changements du DRF ont surtout lieu en surface, notamment en hiver avec le SSP 5-8.5 et au printemps avec les SSPs 3-7.0 et 1-1.9. La Figure 4.3 montre une baisse du DRF des aérosols sur la partie ouest de l'Afrique du Nord allant jusqu'à 1.2 W m^{-2} et, à l'inverse, une hausse de ce forçage radiatif sur la partie est d'environ 0.5 W m^{-2}. Ces résultats sont cohérents avec les changements de concentrations et d'AOD des poussières désertiques présentés dans le chapitre précédent. Outre les changements observés sur l'Afrique du Nord, la Figure 4.3 ne montre quasiment aucune modification du DRF des aérosols dans les grandes longueurs d'onde sur la mer Méditerranée ou sur l'Europe.

Afin d'étudier plus en détail l'évolution du DRF des aérosols entre la période 1971-2000 et 2021-2050, nous allons maintenant différencier chaque type d'aérosol. Au vu des résultats précédents indiquant que les changements de forçage radiatif les plus importants ont lieu dans les courtes longueurs d'onde en surface, nous allons donc nous concentrer sur ceux-ci. Pour cela, la Figure 4.4 présente l'évolution du DRF des sulfates et du carbone organique (en rouge), des sels marins (en bleu), des poussières désertiques (en marron), du carbone suie (en jaune) et des nitrates et de l'ammonium (en gris) entre la période passée et la période future en surface dans les courtes longueurs d'onde. Comme vu précédemment, on observe une baisse du DRF des aérosols sur l'Europe entre les deux périodes, qui est largement due aux aérosols de sulfate et de carbone organique qui, combinés, montrent une baisse de leur forçage radiatif de 2.6 W m^{-2} en moyenne. En revanche, comme dans le chapitre précédent, les aérosols de nitrate et d'ammonium viennent partiellement compenser cette baisse du forçage radiatif des sulfates et du carbone organique avec une contribution de 1.4 W m^{-2} en moyenne avec les trois SSPs. L'évolution du DRF des différents aérosols est similaire en fonction des différents scénarios. Néanmoins,

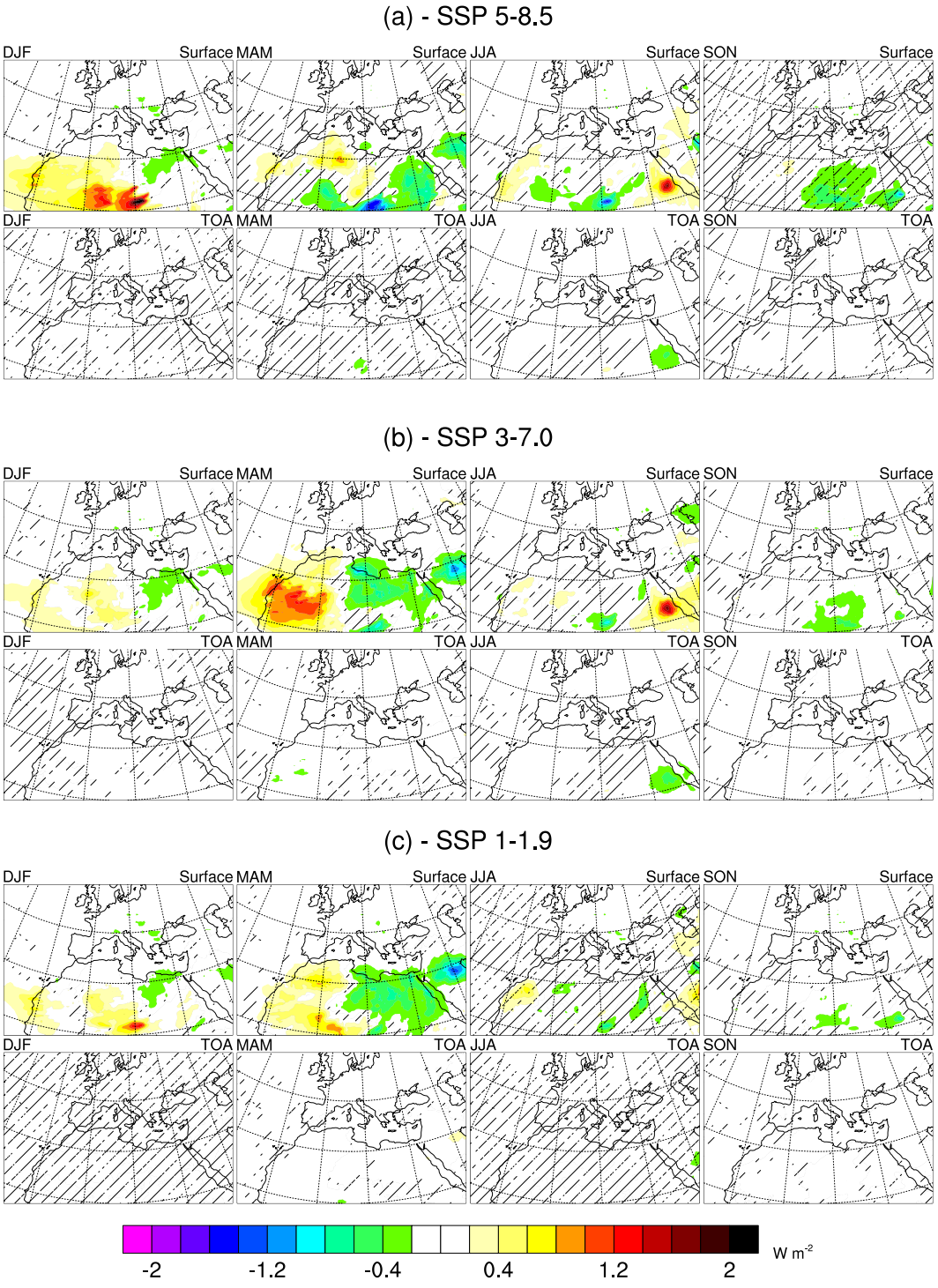

Figure 4.3 – Idem Figure 4.2 pour les grandes longueurs d'onde.

le scénario SSP 3-7.0 montre une baisse du DRF des aérosols de sulfate sur l'Europe légèrement moins forte que pour les deux autres scénarios car celui-ci présente, comme montré au début du chapitre 2, la plus faible baisse des émissions de dioxyde

de soufre dans le futur. Ce scénario 3-7.0 présente également le DRF des particules de nitrate et d'ammonium le plus fort car il s'agit aussi du scénario présentant les émissions d'ammoniac les plus élevées. La Figure 4.4 montre aussi que la baisse du DRF des aérosols de sulfate et de carbone organique ainsi que la hausse de celui des particules de nitrate et d'ammonium ont surtout lieu durant le printemps et l'été. L'évolution des différents aérosols observée ici est cohérente avec celle obtenue à l'échelle globale par Hauglustaine et al. (2014). En effet, leur étude montre une future baisse du DRF des aérosols de sulfate au TOA, en fonction de quatre scénarios passant ainsi de 0.3 W m^{-2} en 2000 à 0.1 W m^{-2} en 2050 avec le RCP 2.6 et 0.2 W m^{-2} avec les RCPs 4.5, 6.0 et 8.5. Nos résultats concernant le DRF des aérosols de nitrate sont aussi cohérents avec les études déjà réalisées à l'échelle globale. En effet, actuellement, le DRF des nitrates à l'échelle globale est estimé entre - 0.08 et - 0.19 W m^{-2} (Adams et al., 2001; Jacobson, 2001; Liao et al., 2004; Liao and Seinfeld, 2005; Bauer et al., 2007; Forster et al., 2007; Haywood and Schulz, 2007; Xu and Penner, 2012; IPCC, 2013; Myhre et al., 2013; Streets et al., 2013) et est estimé entre - 0.4 et 1.3 W m^{-2} d'ici la fin du siècle, devenant ainsi l'aérosol avec le plus fort pouvoir refroidissant (Adams et al., 2001; Bellouin et al., 2011). Hauglustaine et al. (2014) mettent également en évidence une hausse du DRF des particules de nitrate allant jusqu'à 0.05 W m^{-2} entre 2000 et 2050 avec le RCP 8.5. Pour finir, Bellouin et al. (2011) montrent aussi une hausse du DRF des aérosols de nitrate, au TOA à l'échelle globale, passant de - 0.2 W m^{-2} en 2000 à un DRF allant de - 0.4 à -0.7 W m^{-2} en 2090 selon différents scénarios.

La Figure 4.4 montre également que le DRF des aérosols d'origine naturelle reste relativement stable entre les deux périodes. Le DRF du carbone suie, en revanche, va légèrement diminuer (en valeur absolue) sur l'Europe entre la période passée et la période future d'environ 0.6 W m^{-2} avec le SSP 1-1.9 et d'environ 0.4 W m^{-2} avec les SSPs 3-7.0 et 5-8.5. Cette baisse du DRF des aérosols de carbone suie est due à la diminution de la concentration et de l'AOD de ces particules mise en évidence sur l'Europe dans le chapitre 3. Ce résultat est cohérent avec la baisse de l'AOD des aérosols de carbone suie montrée à l'échelle globale par Hauglustaine et al. (2014).

Sur la mer Méditerranée, la Figure 4.4 montre une évolution du DRF des aérosols qui est similaire à celle sur l'Europe avec une baisse du forçage radiatif des aérosols de sulfate et de carbone organique, de l'ordre de 2.6 W m^{-2} en moyenne, et une hausse de celui des nitrates et de l'ammonium d'environ 1.7 W m^{-2}. Que ce soit sur l'Europe ou sur la mer Méditerranée, la baisse du DRF des aérosols de sulfate et de carbone organique la plus forte a lieu avec le SSP 1-1.9 (2.8 W m^{-2} en moyenne sur l'Europe et 3.0 W m^{-2} sur la mer Méditerranée) car, comme nous l'avons vu dans

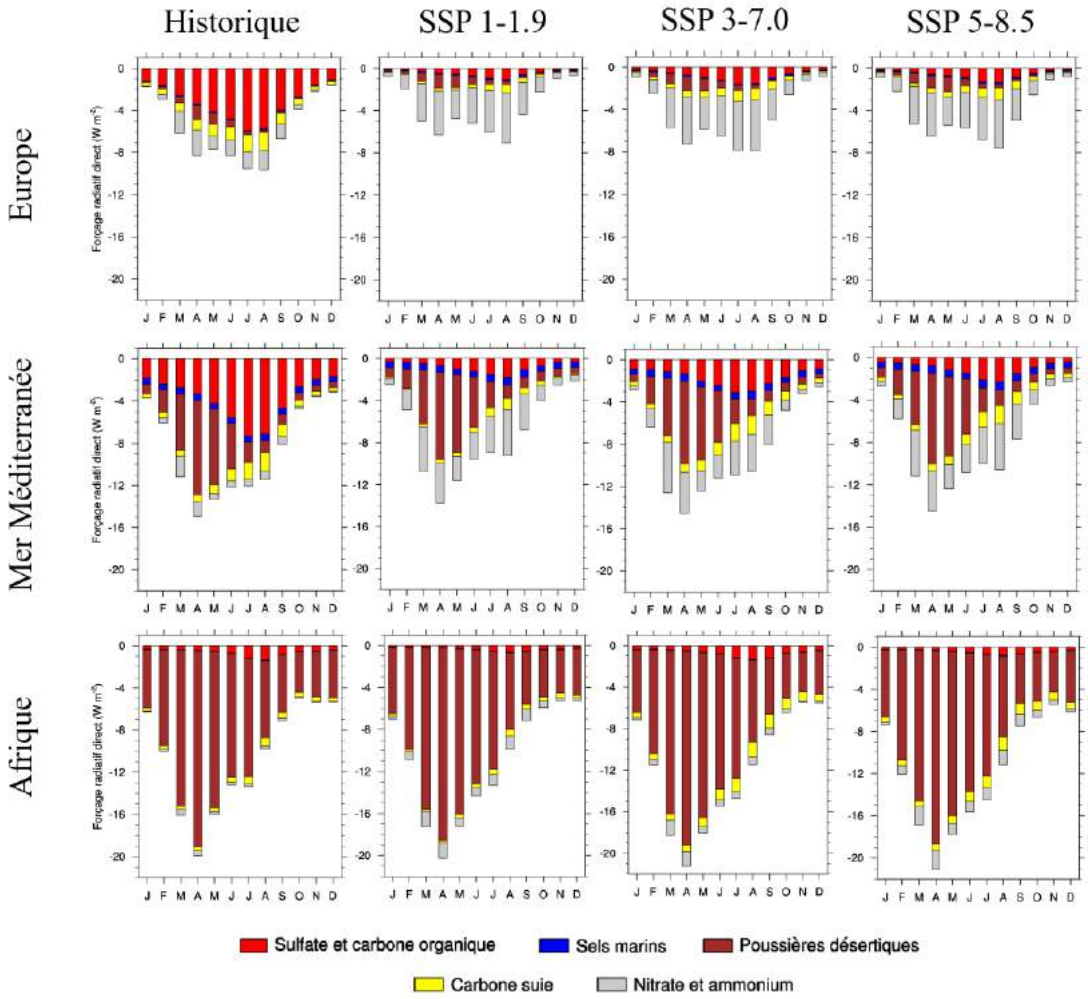

Figure 4.4 – Évolution du DRF (W m^{-2}) des sulfates et du carbone organique (en rouge), des sels marins (en bleu), des poussières désertiques (en marron), du carbone suie (en jaune) et des nitrates et de l'ammonium (en gris), dans les courtes longueurs d'onde en surface, entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050) en fonction des SSPs 1-1.9, 3-7.0 et 5-8.5.

le chapitre précédent, ce scénario présente la plus forte baisse de la concentration de ces particules sur ces deux régions. Concernant l'Afrique du Nord, la Figure 4.4 ne montre pas de changements du DRF importants. En revanche, contrairement aux deux autres régions étudiées, on observe une hausse du DRF total qui est due en partie à l'augmentation du forçage radiatif des aérosols de nitrate et d'ammonium, de 0.6 W m^{-2} en moyenne avec les trois scénarios mais aussi de celui du carbone suie notamment avec les SSP 3-7.0 et 5-8.5 (0.3-0.4 W m^{-2}). Cette hausse du DRF total sur l'Afrique du Nord entre les deux périodes étudiées est également due à l'augmentation du forçage radiatif des particules de poussière désertique, qui est en moyenne de 0.3-0.4 W m^{-2} sur cette région.

Les changements d'émissions, de concentration et d'AOD des différents aérosols entre la période passée (1971-2000) et future (2021-2050) présentés dans le chapitre 3 ont par conséquent des impacts sur le DRF de ces particules. Cette première partie du chapitre 4 nous a permis de mettre en évidence une baisse du DRF total sur l'Europe, dans les courtes longueurs d'onde, d'environ 1.6 W m^{-2} en surface et d'environ 1 W m^{-2} au TOA entre la période 1971-2000 et 2021-2050 qui est essentiellement due à la baisse du forçage radiatif des aérosols de sulfate, partiellement compensée par la hausse de celui des particules de nitrate qui vont devenir l'espèce d'aérosol avec le plus fort forçage radiatif sur l'Europe dans la période future. L'évolution des différents aérosols (émissions, concentration, AOD et forçage radiatif) va par conséquent impacter le climat futur de la région Euro-Méditerranéenne, cette question va donc être abordée ci-dessous.

4.2 Sensibilité du climat Euro-Méditerranéen futur aux aérosols

Après avoir étudié l'évolution des différents aérosols entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 sur la région Euro-Méditerranéenne dans le chapitre 2, nous nous sommes intéressés aux changements de forçage radiatif de ces différentes particules entre ces deux périodes dans la première partie du chapitre 4. Afin d'aller encore plus loin, nous allons étudier l'impact, sur le climat européen, de la prise en compte ou non de l'évolution future des émissions des différents aérosols. Avant cela, et afin de mieux comprendre le rôle des aérosols sur le changement climatique futur de la région Euro-Méditerranéenne, il est important de voir dans un premier temps quelle est l'évolution attendue sur cette région des différentes variables climatiques (température, précipitations, nébulosité et humidité spécifique) entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050). Dans cette partie, pour des raisons de clarté, nous avons fait le choix d'utiliser uniquement le SSP 5-8.5.

4.2.1 Projections climatiques sur la région Euro-Méditerranéenne

Afin de répondre à cette première question, nous allons utiliser ici la simulation Hist pour la période historique ainsi que la simulation ssp585 pour la période future. Pour rappel, ces deux simulations sont présentées au début du chapitre 3.

La Figure 4.5 présente l'évolution de différents paramètres climatiques entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050, saison par saison pour le SSP 5-8.5. Premièrement, cette figure (a) montre une forte hausse de la température sur la région Euro-Méditerranéenne. En moyenne sur l'année, la hausse des températures entre les deux périodes est de 2.2°C sur l'Europe, 1.7°C sur la mer Méditerranée ainsi que de 1.9°C sur l'Afrique. La hausse la plus forte sur l'Europe est simulée durant l'hiver avec une moyenne de 2.5°C et un maximum de 4°C sur l'Europe de l'est. Sur l'Afrique, la hausse maximale de température a lieu durant l'été avec une moyenne de 2°C. Ces résultats sont cohérents avec l'étude de Jacob et al. (2014). En effet cette étude, basée sur un ensemble de 7 modèles régionaux à haute résolution du projet CORDEX, montre une forte hausse des températures sur la région Euro-Méditerranéenne entre la période 1971-2000 et la fin du siècle (2071-2100) de l'ordre de 2.5 à 5.5°C avec le scénario RCP 8.5. Toujours avec ce scénario, cette étude montre également qu'une large partie du nord de la Scandinavie et de l'Europe de l'est pourraient être soumis à un réchauffement de plus de 4.5°C d'ici la période 2071-2100. Les résultats précédents sont aussi cohérents avec ceux du projet ENSEMBLES qui prévoyait une hausse des températures de l'ordre de 3 à 4.5°C avec le scénario A1B sur cette région entre la période 1971-2000 et 2021-2050 (Hewitt, 2004; van der Linden and Mitchell, 2009). Pour finir, ces études montrent également une hausse des températures plus forte en hiver comparée aux autres saisons.

Concernant les précipitations, excepté durant l'hiver, la Figure 4.5 (b) montre peu de zones avec des changements significatifs. Ces résultats présentent donc une incertitude plus élevée que ceux discutés précédemment à propos des températures. Néanmoins, la Figure 4.5 (b) montre une baisse moyenne des précipitations d'environ 5%, soit 0.1 mm jour^{-1}, sur la mer Méditerranée entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 avec un maximum de 10% en l'hiver. Sur l'Europe, et majoritairement sur la partie nord de l'Europe, on observe plutôt une hausse des précipitations avec notamment un maximum sur les Alpes atteignant 1 mm jour^{-1}. La seule saison où une baisse des précipitations est observée sur l'ensemble de l'Europe est l'été avec une diminution moyenne de 0.2 mm jour^{-1}. Jacob et al. (2014) ont également mis en évidence une augmentation des précipitations sur une large partie de l'Europe centrale et sur le nord de l'Europe ainsi qu'une baisse de ces précipitations dans le sud de l'Europe entre la période 1971-2000 et la fin du siècle pour le RCP 8.5. De plus Jacob et al. (2014) ont également montré, que durant l'été, la zone présentant une baisse des pluies remontait vers le nord et couvrait une région plus vaste que durant les autres saisons. Pour finir, ces évolutions de précipitations sont similaires avec celles montrées dans le cadre du projet ENSEMBLES à partir du scénario A1B.

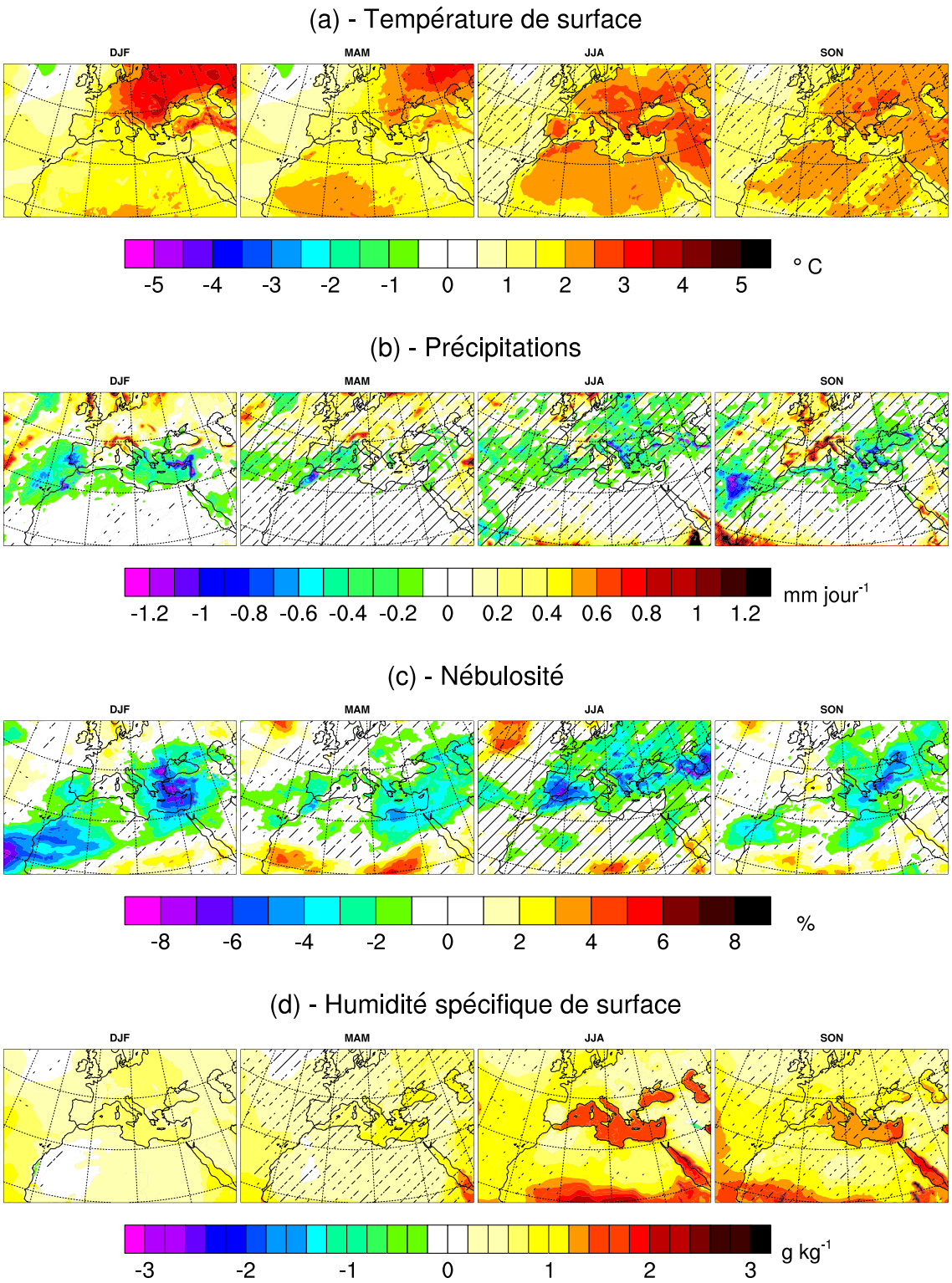

Figure 4.5 – Différences moyennes, saison par saison, entre les simulations SSP585 et Hist pour la température de surface (°C, a), les précipitations (mm jour^{-1}, b), la nébulosité (%, c) et l'humidité spécifique en surface (g kg^{-1}, d). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

Des changements de nébulosité et d'humidité spécifique en surface peuvent aussi être observés entre la période historique et la période future sur la Figure 4.5 (c et d). Les baisses les plus importantes de nébulosité se situent sur l'est de la mer Méditerranée en hiver ainsi que sur la péninsule Ibérique durant l'été et atteignent jusqu'à 8%. L'humidité spécifique de surface montre quant à elle une hausse sur l'ensemble du domaine Euro-Méditerranéen entre la période historique et la période future. Celle-ci est de 0.6 g kg^{-1} en moyenne sur l'année avec un maximum sur la mer Méditerranée en été de 1.6 g kg^{-1}. Cette augmentation présente sur la mer Méditerranée est potentiellement liée à l'absence du couplage entre l'atmosphère et l'océan dans cette étude.

4.2.2 Impact de l'évolution des aérosols sur le climat européen

Après avoir vu le changement climatique attendu sur la région Euro-Méditerranéenne entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050), nous allons maintenant chercher à savoir quelle est la part de ce changement climatique qui peut être expliquée par l'évolution des différents aérosols anthropiques. Pour cela, les simulations ssp585 (avec des émissions d'aérosols évolutives) et ssp585cst (avec des émissions d'aérosols constantes, correspondant à la moyenne des émissions historiques), présentées en détail au début du chapitre 3, seront utilisées ici.

La Figure 4.6 présente les futurs changements de température, de précipitations, de couverture nuageuse et d'humidité spécifique dus à l'évolution des différents aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne. Celle-ci montre un réchauffement supplémentaire de la température de surface lorsque le modèle utilise des émissions d'aérosols qui évoluent dans le temps allant jusqu'à 0.3 °C sur l'Europe de l'est, sois environ 15% de la hausse des température moyenne sur l'Europe entre 1971-2000 et 2021-2050. Ce résultat est cohérent avec la baisse de l'AOD et du forçage radiatif de l'ensemble des aérosols sur cette région, détaillée dans le chapitre 3 et au début du chapitre 4. Les changements de température vus précédemment sur l'Europe et l'Afrique entre la période 1971-2000 et 2021-2050 ainsi que la part de ce réchauffement qui est attribué aux aérosols sont résumés dans le Tableau 4.2.

En moyenne sur l'Europe, on estime un réchauffement de la température de surface entre la période passée et la période future de l'ordre de 2.2°C. Sachant que les différents aérosols sont responsables d'une augmentation de 0.13°C sur cette région, ils expliquent par conséquent environ 6% du réchauffement observé en Europe entre 1971-2000 et 2021-2050. D'après le Tableau 4.2, on remarque que cette contribu-

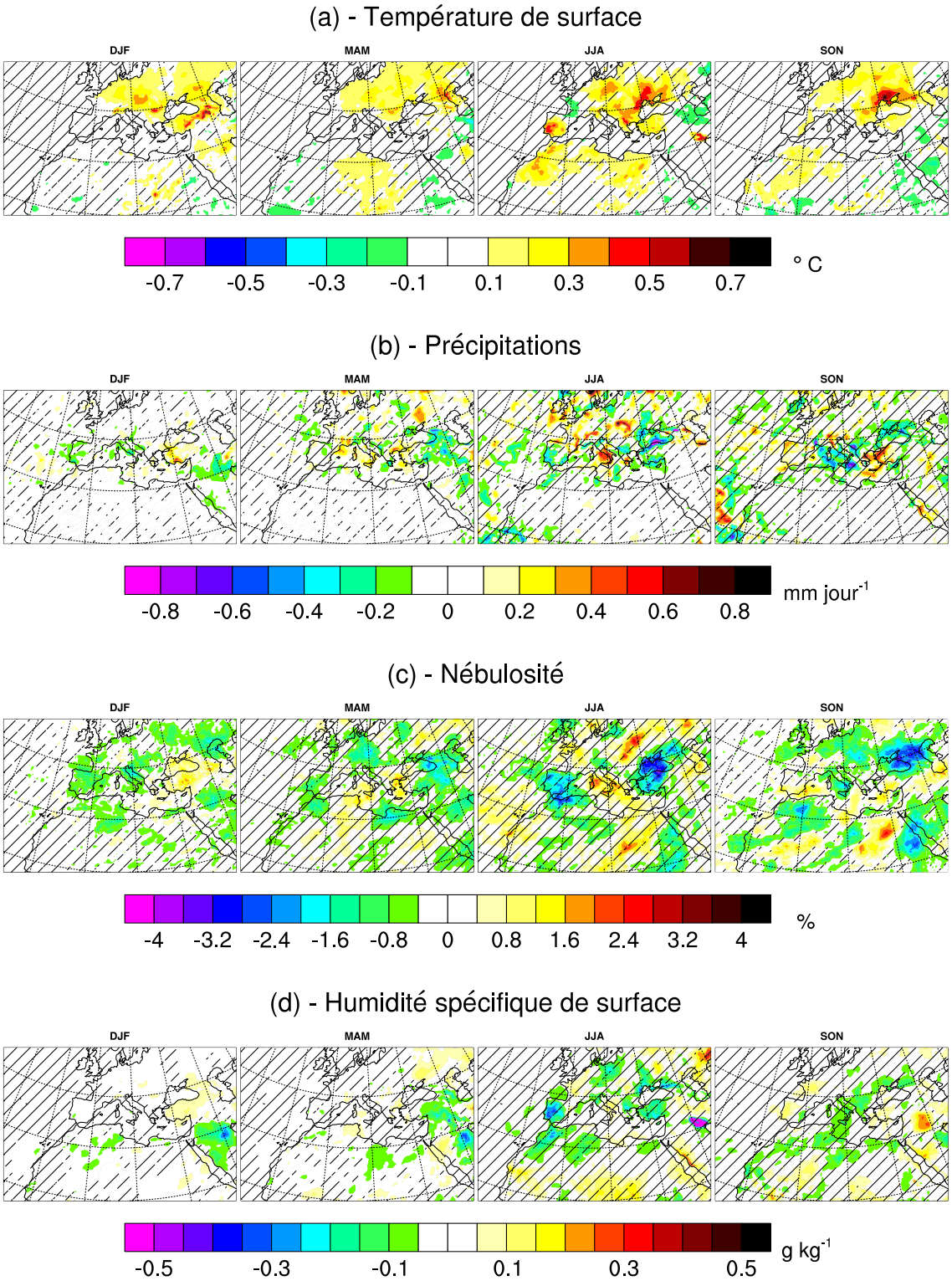

Figure 4.6 – Idem Figure 4.5 avec les simulations SSP585 et SSP585cst.

tion des aérosols peut aller jusqu'à 7% au printemps et en été. En revanche, durant l'hiver, l'évolution des aérosols n'est responsable que de 5% du réchauffement. Pour

finir, sur l'Afrique, les aérosols ne participent que peu (environ 1%) au réchauffement simulé entre la période 1971-2000 et 2021-2050 avec le SSP 5-8.5. Néanmoins, ce résultats reste significatif sur cette région. Les aérosols auront donc un impact non négligeable sur la hausse des températures attendue d'ici le milieu du siècle sur la région Euro-Méditerranéenne. Néanmoins, la Figure 4.6 (a) montre une forte variabilité régionale avec un maximum sur l'Europe centrale allant jusqu'à 0.5°C. L'impact de l'évolution des aérosols sur la température varie également en fonction des saisons. Celui est maximal sur l'Europe durant l'été avec une contribution de 0.16°C à la hausse de la température de surface sur l'Europe, ce qui équivaut à 7% du réchauffement. De même, sur l'Afrique, la période estivale est la saison où l'évolution des aérosols engendre le réchauffement supplémentaire le plus fort, de l'ordre de 0.02°C, soit 3% du réchauffement observé sur cette région entre la période 1971-2000 et 2021-2050.

		SSP585 - Hist	**SSP585 - SSP585cst**
Europe	DJF	2.5	0.12 (5%)
	MAM	1.7	0.12 (7%)
	JJA	2.3	0.16 (7%)
	SON	2.1	0.12 (6%)
	Moyenne	**2.2**	**0.13 (6%)**
Afrique	DJF	1.6	0.01 (0.6%)
	MAM	1.8	0.02 (1.1%)
	JJA	2.0	0.06 (3%)
	SON	1.9	0.02 (1%)
	Moyenne	**1.9**	**0.03 (1.6%)**

Table 4.2 – Différences moyennes entre les simulations SSP585 et Hist montrant la hausse de température (°C) sur l'Europe et l'Afrique entre la période 1971-2000 et 2021-2050 et entre les simulations SSP585 et SSP585cst montrant la contribution (en °C et en %) des différents aérosols à ce réchauffement.

Concernant les autres paramètres climatiques comme les précipitations, la nébulosité ou encore l'humidité spécifique de surface, la Figure 4.6 ne montre que peu de signal. Cependant des baisses de nébulosité, dues à une modification de la dynamique atmosphérique suite à l'évolution des aérosols, de l'ordre de 3% sont attendues sur la péninsule Ibérique ainsi que sur la mer Noire notamment durant la saison estivale. Cette baisse de nébulosité à cette saison sur la péninsule Ibérique s'accompagne d'une baisse de l'humidité spécifique de surface allant jusqu'à 0.4 g Kg^{-1}, soit environ 4% de l'humidité spécifique moyenne sur cette région à cette saison ainsi qu'une diminution des précipitations atteignant au maximum 0.4 mm $jour^{-1}$ dans le sud-ouest de l'Espagne et sur le Maroc, ce qui équivaut à environ 25%

des précipitations moyennes sur la péninsule Ibérique en été. Malgré ces quelques changements, l'évolution des différents aérosols n'aura donc qu'un impact limité sur ces différents paramètres climatiques.

La température est donc le paramètre le plus impacté par l'évolution des aérosols et nous allons donc nous concentrer sur celui-ci dans la suite de cette étude. De plus, comme nous l'avons vu précédemment, la saison estivale est la saison durant laquelle les aérosols ont l'effet le plus fort sur les températures avec une contribution au réchauffement de 7%. Nous allons donc maintenant analyser l'impact de ces aérosols sur la température durant les mois de juin, juillet et août en quantifiant d'une part le forçage radiatif dû aux interactions aérosols-rayonnement (ERFari) et d'autre part le forçage radiatif dû aux interactions aérosols-nuages (ERFaci). Pour rappel ces différents termes sont expliqués dans le chapitre 1, et plus précisément dans la section 1.1.3 concernant les effets des aérosols sur le climat. De plus la paramétrisation utilisée pour les interactions aérosols-nuages a été présentée précédemment dans la section 1.1 du chapitre 2. Dans ce travail, le calcul de ces termes est basé sur l'étude de Ghan (2013) et correspond à :

ERFari = F - F_{clean}
ERFaci = F_{clean} - $F_{clear,clean}$

Avec F le flux radiatif calculé, dans les courtes longueurs d'onde, à la surface ou au TOA. F_{clean} représente ce même flux dans une atmosphère sans aérosols et, pour finir, $F_{clear,clean}$ représente aussi ce flux radiatif mais dans une atmosphère sans aérosols ni nuages.

La Figure 4.7 compare la hausse des températures aux changements d'AOD et de forçage radiatif dû aux interactions aérosols-rayonnement (ERFari) et aux interactions aérosols-nuages (ERFaci) ayant lieu sur la région Euro-Méditerranéenne durant les mois de juin, juillet et août lorsque les émissions des différents aérosols sont considérées comme évolutives. La Figure 4.7 (c) montre une forte variabilité régionale en terme de changement de température due à l'évolution des aérosols. La hausse de température sur l'Europe centrale (cadre marron), allant jusqu'à 0.5°C et avec une moyenne de 0.2°C (soit environ 10% du réchauffement sur cette région en été), est bien corrélée à la hausse du rayonnement en surface de 5.8 ± 1.2 W m^{-2}, qui est présenté sur la Figure 4.8. La Figure 4.7 montre que la baisse de l'AOD de l'ensemble des aérosols sur cette région (- 0.1 en moyenne soit une baisse d'environ 40%), entraîne une forte baisse du ERFari de l'ordre de 4.4 ± 0.2 W m^{-2} en surface et de 2.7 ± 0.1 W m^{-2} au TOA ce qui peut expliquer en partie la hausse

du rayonnement en surface et donc le réchauffement sur l'Europe centrale. Ajouté à cela, la hausse du rayonnement en surface est aussi bien corrélée avec la baisse de l'épaisseur optique des nuages (- 1.3 ± 0.3), montrée sur la Figure 4.9, qui est la conséquence de l'effet indirect de la baisse de la concentration des aérosols sur cette région. Le réchauffement observé sur l'Europe centrale est donc la conséquence d'une hausse du rayonnement en surface provoquée par la baisse de la concentration totale des différentes particules qui entraîne une baisse du forçage radiatif des aérosols dû aux interactions aérosols-rayonnement mais également une baisse de l'épaisseur optique des nuages.

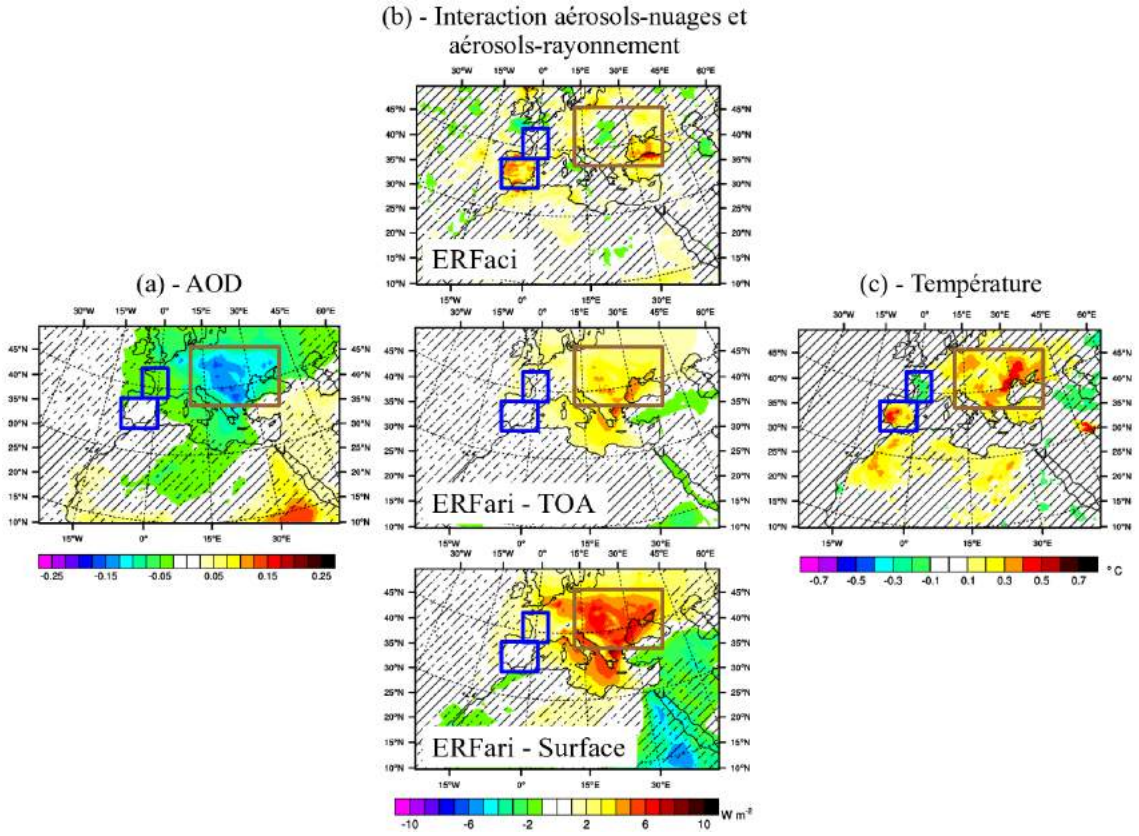

Figure 4.7 – Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour l'AOD totale des aérosols (a), pour le forçage radiatif dû aux interactions aérosols-rayonnement (ERFari, W m^{-2}) en surface et au TOA et aux interactions aérosols-nuages (ERFaci, W m^{-2}, b) ainsi que pour la température de surface (°C, c). Le cadre marron représente l'Europe centrale et les deux cadres bleus localisent l'ouest de la France et la péninsule Ibérique (cas particuliers). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

Contrairement à l'Europe centrale, la hausse de température sur la péninsule Ibérique (+ 0.2°C) ainsi que la baisse de température sur l'ouest de la France (- 0.1°C) durant cette même saison ne semblent en aucun cas liés à un changement de

l'effet direct des aérosols sur le rayonnement. En effet, la Figure 4.7 (b) ne montre pas de baisse des interactions aérosols-rayonnement sur la péninsule Ibérique pouvant expliquer cette hausse des températures. Concernant l'ouest de la France, la Figure 4.7 (b) montre une hausse des interactions aérosols-rayonnement en surface de l'ordre de 2 W m^{-2}, ce qui peut donc paraître contradictoire avec une baisse des températures sur cette région. Pour ces raisons, ces deux cas particuliers, localisés par les cadres bleus sur la Figure 4.7 vont être étudiés ci-dessous.

4.2.2.1 Cas particulier de la péninsule Ibérique

Comme vu précédemment, la Figure 4.7 (c) montre une hausse de la température sur la péninsule Ibérique de l'ordre de 0.2°C en moyenne sur les mois de juin, juillet et août pour le SSP 5-8.5. Contrairement à l'Europe centrale, sur cette région le réchauffement attendu n'est pas lié à une baisse de l'AOD des aérosols et ne résulte donc pas d'une diminution du forçage radiatif des aérosols dû aux interactions aérosols-rayonnement.

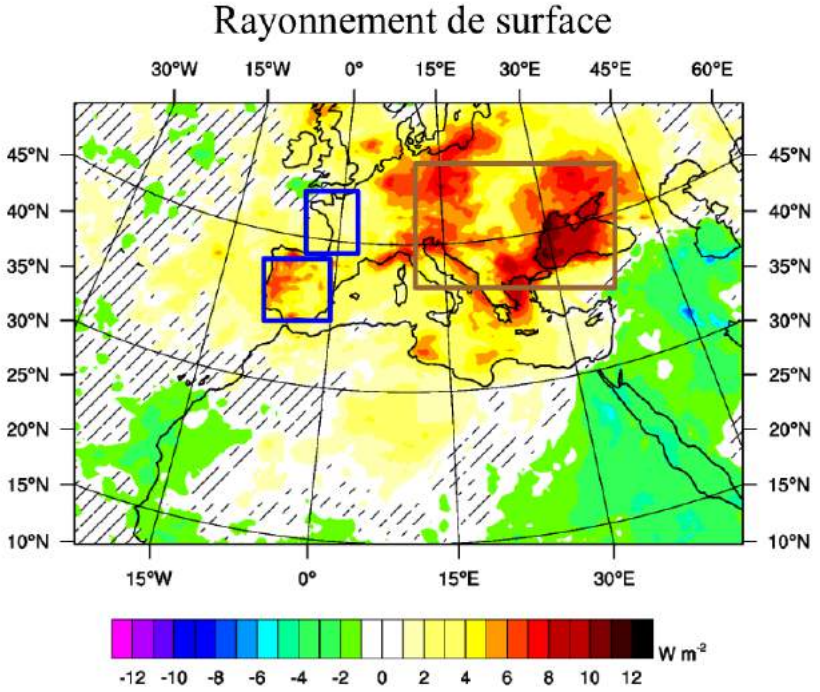

Figure 4.8 – Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour le rayonnement à la surface (W m^{-2}). La péninsule Ibérique est localisée par le cadre bleu. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

En revanche la hausse du rayonnement en surface de 4.2 W m^{-2} sur cette région, montrée sur la Figure 4.8, est bien corrélée à la baisse du forçage radiatif des aérosols

dû aux interactions aérosols-nuages de l'ordre de 3.4 W m^{-2} au TOA (Figure 4.7, b) ainsi qu'à la baisse de l'épaisseur optique des nuages (- 1.3) montrée sur la Figure 4.9.

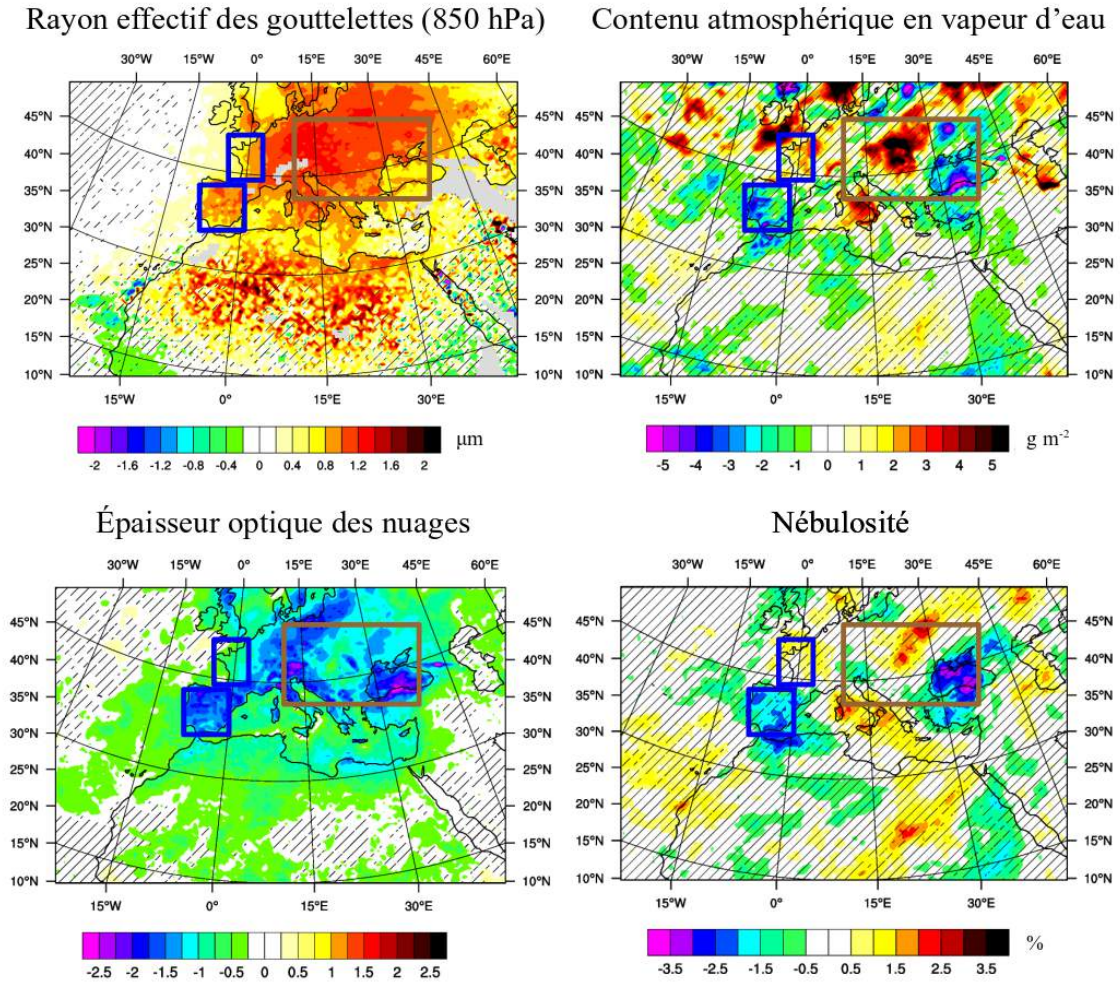

Figure 4.9 – Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour le rayon effectif des gouttelettes nuageuses à 850 hPa (haut à gauche, µm), le contenu atmosphérique en vapeur d'eau (haut à droite, g m^{-2}), l'épaisseur optique des nuages (bas à gauche) ainsi que sur la nébulosité (bas à droite, %). La péninsule Ibérique est localisée par le cadre bleu. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

Celle-ci peut s'expliquer par une augmentation du rayon effectif des gouttelettes nuageuses de 0.8 ± 0.1 µm à 850 hPa (Figure 4.9) qui est due à la baisse de la concentration en masse des aérosols anthropiques (sulfate et carbone organique) sur cette région. Cette augmentation du rayon effectif des gouttelettes, associé à la diminution de la nébulosité de l'ordre de - 1.7 ± 1.2 % sur cette région, également montrée sur la Figure 4.9, va alors avoir pour conséquence de diminuer l'épaisseur

optique du nuage (- 1.3 ± 0.3) et donc de produire une augmentation du rayonnement en surface et par conséquent un réchauffement. Ajouté à cela, la Figure 4.10 montre une baisse du vent méridien à 10 mètres de l'ordre de 0.07 m s^{-1}, soit environ 25% du vent méridien sur la péninsule Ibérique, engendrant un apport d'air continental sec qui va donc provoquer une baisse de l'humidité spécifique (de l'ordre de 1-2%) en surface et qui peut également participer à la future hausse des températures sur cette région.

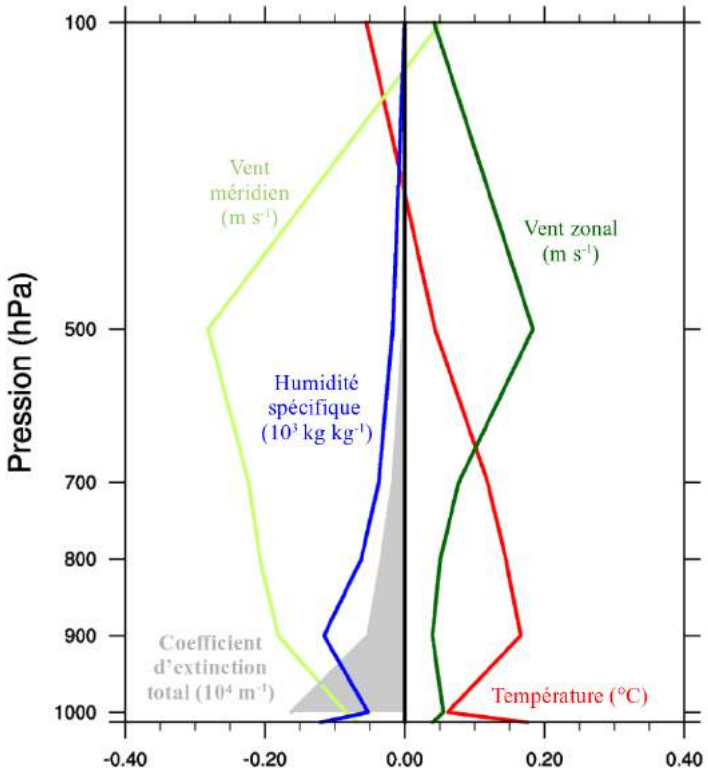

Figure 4.10 – Profil vertical, obtenu par différence entre la simulation SSP585 et la simulation SSP585cst, de la température (°C), du coefficient d'extinction total (10^4 m^{-1}), du vent méridien et zonal (m s^{-1}) ainsi que de l'humidité spécifique (10^3 Kg Kg^{-1}) sur la péninsule Ibérique durant les mois de juin, juillet et août.

Au final, la hausse des températures simulée à la surface sur la péninsule Ibérique en été avec le scénario SSP 5-8.5 est due à la baisse de l'albédo des nuages ainsi qu'à une modification de la dynamique atmosphérique, présentée sur la Figure 4.12, induite par une baisse de la concentration totale des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne. Celle-ci va entraîner un apport d'air continental sec ainsi qu'une baisse de la nébulosité, qui, associée à une modification du spectre granulométrique des gouttelettes va diminuer le forçage radiatif des aérosols lié aux interactions aérosols-nuages sur la péninsule Ibérique. Tous ces processus conduisent à une augmentation importante du rayonnement à la surface sur cette région.

4.2.2.2 Cas particulier de l'ouest de la France

Le deuxième cas particulier traité dans cette étude se situe sur l'ouest de la France où une diminution de la température de surface de l'ordre de 0.1 °C, causée par l'évolution des aérosols, est observée sur la Figure 4.7 (c). Comme le montre la Figure 4.7 (b), cette baisse de température n'est pas due à une hausse du forçage radiatif des aérosols, que celui-ci soit lié au rayonnement ou aux nuages. De plus, la Figure 4.11, qui présente le profil vertical de différents paramètres sur cette zone, confirme que cette baisse de température est accompagnée par une baisse du coefficient d'extinction total des aérosols jusqu'à environ 600 hPa, ce qui démontre bien que le forçage radiatif des aérosols n'est pas la cause de ce refroidissement.

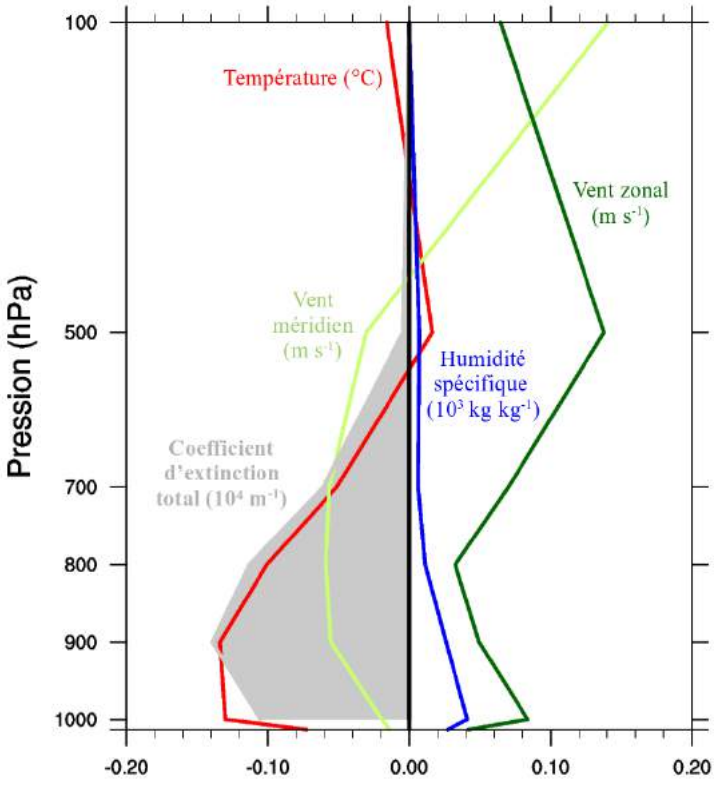

Figure 4.11 – Idem Figure 4.10 sur la zone "Ouest de la France".

Afin de comprendre l'origine de ce changement de température, il est donc nécessaire de s'intéresser aux modifications de la dynamique atmosphérique induites par les changements d'émissions des aérosols. La Figure 4.12 montre une hausse de la pression à l'ouest de la France et de la péninsule Ibérique allant jusqu'à 0.3 hPa. Cette hausse de pression sur l'océan Atlantique va engendrer un afflux d'air froid venu de l'océan et ainsi faire baisser la température sur la partie ouest de la France. Ce résultat est en accord avec la Figure 4.11 qui montre bien, en surface, une hausse de 15% du vent zonal (+ 0.04 m s^{-1}) ainsi qu'une hausse de l'humidité spécifique

relativement faible de 0.3% en moyenne, sur l'ouest de la France. Le refroidissement observé sur cette région n'est donc pas causé directement par une hausse du forçage radiatif des aérosols mais plutôt par la modification de la dynamique atmosphérique (effet semi-direct des aérosols) induite par l'évolution des aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne.

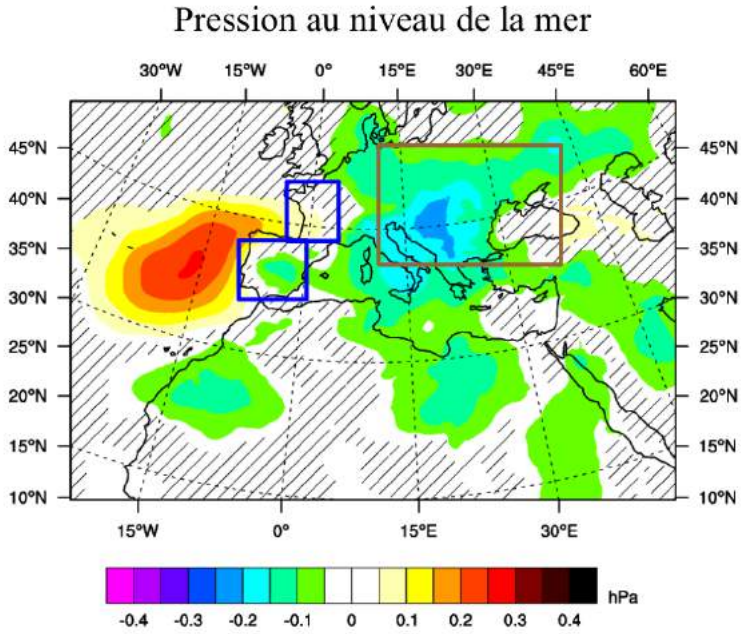

Figure 4.12 – Différences moyennes, pour les mois de juin, juillet et août, entre les simulations SSP585 et SSP585cst sur la période 2021-2050 pour la pression au niveau de la mer (hPa). La région de l'ouest de la France est localisée par le cadre bleu. Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

4.2.3 Récapitulatif

L'évolution des aérosols, et plus précisément de leurs émissions, explique environ 6% (15% au maximum sur l'Europe de l'est) du réchauffement climatique sur l'Europe qui est de 2.2°C en moyenne annuelle entre la période 1971-2000 et 2021-2050 pour le SSP 5-8.5. Ce résultat est robuste en fonction des différents scénarios car la part du réchauffement attribuée à l'évolution des différents aérosols pour les SSPs 3-7.0 et 1-1.9 sur l'Europe est estimée, à partir des changements de l'AOD totale, entre 5 et 7%.

Pour le SSP 5-8.5, la saison la plus marquée est l'été avec notamment une hausse de la température de 0.16°C qui est due à la baisse de l'AOD totale des aérosols (- 0.10), fortement dominée par la diminution des aérosols de sulfate. La hausse

de température la plus élevée durant cette saison se situe sur l'Europe centrale et s'explique par la baisse des interactions aérosols-rayonnement ainsi que par celle de l'épaisseur optique des nuages qui sont dues à la diminution de la concentration et de l'AOD des aérosols sur cette région.

Durant cette saison, deux cas plus particuliers sont à noter, le premier simulé sur la péninsule Ibérique où une augmentation de la température est observée en surface et le second sur l'ouest de la France avec, à l'inverse du premier cas, une baisse de la température en surface. Ces changements de températures sont dus à une baisse de l'albédo des nuages ainsi qu'à une modification de la dynamique atmosphérique apportant de l'air sec dans le cas de la péninsule Ibérique et uniquement à une modification de la dynamique atmosphérique avec un apport d'air océanique frais et d'humidité dans le cas de l'ouest de la France.

4.3 Comparaison entre deux méthodes : schéma interactif versus AOD climatologiques

Nous venons de voir que le réchauffement entre la période 1971-2000 et 2021-2050 est estimé à 2.2°C en moyenne annuelle sur l'Europe pour le SSP 5-8.5. La part de ce réchauffement pouvant être expliquée par l'évolution future des aérosols, dominée par la baisse de la concentration des particules de sulfate, est estimée à 6% en moyenne sur l'année. Pour finir ce travail de thèse, une comparaison de ces résultats avec ceux issus d'un exercice similaire va être abordée. Cet exercice se base sur différentes simulations réalisées aussi avec le modèle climatique régional ALADIN-Climat, mais cette fois-ci, avec un modèle forceur différent et sans le schéma interactif d'aérosols TACTIC. Dans cet exercice, les différents aérosols sont intégrés à partir de climatologies d'AOD, comme dans la plupart des modèles climatiques régionaux. D'autres différences, comme la résolution, entre les simulations issues de cet exercice et les simulations utilisées au cours de cette thèse sont aussi à prendre en compte. Dans ce dernier chapitre, nous utiliserons six simulations différentes dont trois avec le schéma d'aérosols TACTIC qui ont déjà été utilisées précédemment (Hist, SSP585 et SSP585cst) et qui seront appelées les simulations TACTIC. Les trois autres simulations, appelées simulations CLIM, utilisent des AOD climatologiques et sont nommées Hist-clim, RCP85 et RCP85cst. Les principales différences entre ces six simulations sont présentées dans le Tableau 4.3.

Concernant le modèle forceur, les simulations CLIM sont forcées par la version 5 du modèle CNRM-CM contrairement aux simulations TACTIC qui, elles, sont forcées par la version 6 de ce modèle. Le modèle CNRM-CM qui, pour rappel, constitue le coeur physique du modèle de système Terre CNRM-ESM, a déjà été présenté au début du chapitre 3. La version 6 de ce modèle, également présentée au début du chapitre 3, se différencie de la version 5 sur quelques points. En effet, entre la version 5 et 6, toutes les composantes du modèle CNRM-CM ont été changées, notamment la composante atmosphérique ARPEGE-Climat ainsi que la plateforme de modélisation de surfaces continentales SURFEX (Voldoire et al., 2019). Pour la composante atmosphérique, les principales modifications concernent la représentation de la convection profonde et peu profonde, la microphysique ainsi que les processus de turbulence. En ce qui concerne la composante SURFEX, les schémas de neige et de sol ont été affinés, tandis que l'hydrologie a été améliorée afin de représenter les crues ainsi que les aquifères. Tous ces changements entre la version 5 et la version 6 du modèle CNRM-CM sont décris en détail dans l'article de Voldoire et al. (2019).

Ces différents changements au sein du modèle forceur vont par conséquent avoir une influence sur le changement climatique simulé par le modèle régional ALADIN-Climat comme le montre la Figure 4.13 qui présente le changement de température de surface attendu sur la région Euro-Méditerranéenne, en moyenne annuelle, entre la période 1971-2000 et 2021-2050 pour le RCP 8.5 avec les simulations CLIM (gauche) et pour le SSP 5-8.5 avec les simulations TACTIC (droite).

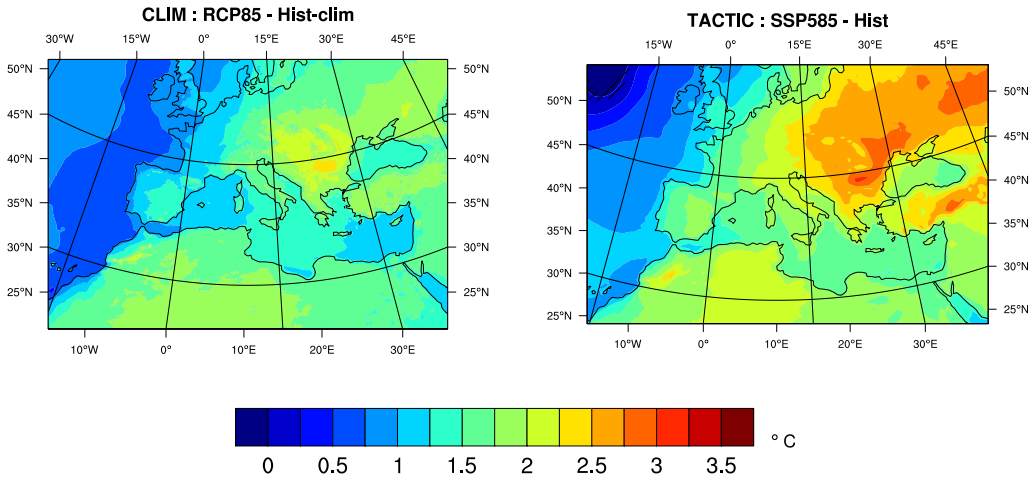

Figure 4.13 – Différences annuelles moyennes entre les simulations RCP85 et Hist-clim (gauche) ainsi que entre les simulations SSP585 et Hist (droite) pour la température de surface (°C).

	CLIM			**TACTIC**		
	Hist-CLIM	RCP85	RCP85cst	Hist	SSP585	SSP585cst
Modèle forceur	CNRM-CM5	CNRM-CM5	CNRM-CM5	CNRM-ESM2	CNRM-ESM2	CNRM-ESM2
Prise en compte des aérosols	Climatologies (AOD CNRM-CM5)	Climatologies (AOD CNRM-CM5)	Climatologies (AOD CNRM-CM5)	schéma interactif	schéma interactif	schéma interactif
Forçage des aérosols	CMIP5 (Historique)	CMIP5 (RCP 8.5)	Constante (moyenne historique)	CMIP6 (Historique)	CMIP6 (SSP 5-8.5)	Constante (moyenne historique)
Nitrate et ammonium	Non	Non	Non	Oui	Oui	Oui
Résolution (km)	12	12	12	50	50	50
Période et scénario	1971-2000	2021-2050 (RCP 8.5)	2021-2050 (RCP 8.5)	1971-2000	2021-2050 (SSP 5-8.5)	2021-2050 (SSP 5-8.5)

Table 4.3 – Caractéristiques des différentes simulations (TACTIC et CLIM).

La Figure 4.13 montre une hausse des températures sur l'année plus marquée avec les simulations TACTIC, forcées par CNRM-ES2, de l'ordre de 2.2°C sur l'Europe. Celui-ci est 50% plus fort que celui attendu avec les simulations CLIM (1.5°C), forcées par la version 5 du modèle CNRM-CM. Cette différence de réchauffement entre ces simulations est attribuée à leur modèle forceur, le modèle CNRM-ESM2 engendrant un réchauffement plus important que le modèle CNRM-CM5.

La Figure 4.14 montre maintenant la part du réchauffement observé sur l'Europe entre la période 1971-2000 et 2021-2050 qui est attribuée aux aérosols. Cette figure montre que, avec les simulations CLIM, les aérosols sont responsables d'une hausse de température de surface de 0.30°C en moyenne annuelle sur l'Europe ce qui équivaut à 20% du réchauffement entre la période 1971-2000 et 2021-2050. En revanche comme vu précédemment, les aérosols sont la cause d'une hausse plus limitée de la température avec les simulations TACTIC, de l'ordre de 0.13°C, soit 6% du réchauffement entre les deux périodes. Le rôle des aérosols sur la température, en moyenne annuelle, est donc environ trois fois plus important dans le cadre des simulations CLIM.

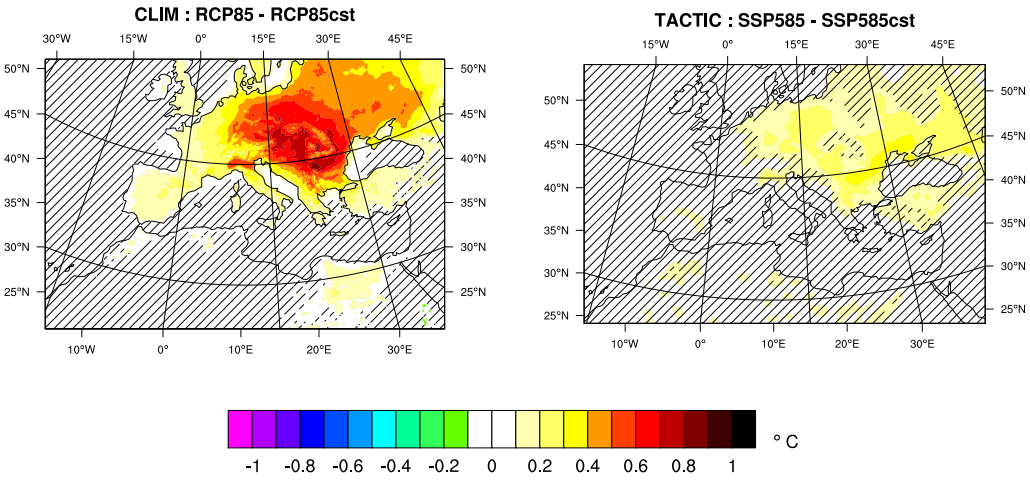

Figure 4.14 – Différences moyennes, sur l'année, entre les simulations RCP85 et RCP85cst (gauche) ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst (droite) pour la température de surface (°C). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

Le Tableau 4.4 compare, en moyenne saisonnière sur l'Europe, le réchauffement entre la période historique et future ainsi la part de celui-ci attribuée à l'évolution des aérosols avec les simulations CLIM à celui observé avec les simulations TACTIC, déjà vu précédemment. Ce tableau confirme bien un réchauffement des températures de surface plus fort avec les simulations TACTIC, notamment en hiver où celui-ci atteint 2.5°C sur l'Europe. Comme mentionné précédemment, le Tableau 4.4 montre,

sur les différentes saisons, que le rôle des aérosols sur la température de surface en Europe est trois fois plus important dans le cadre des simulations CLIM.

	CLIM		**TACTIC**	
	RCP85 - Hist-clim	RCP85 - RCP85cst	SSP585 - Hist	SSP585 - SSP585cst
DJF	1.4	0.18 (13%)	2.5	0.12 (5%)
MAM	1.3	0.28 (21%)	1.7	0.12 (7%)
JJA	1.8	0.41 (23%)	2.3	0.16 (7%)
SON	1.6	0.34 (21%)	2.1	0.12 (6%)
ANNÉE	1.5	0.30 (20%)	2.1	0.13 (6%)

Table 4.4 – Réchauffement observé sur l'Europe (°C), en moyenne saisonnière et annuelle, entre la période historique (1971-2000) et future (2021-2050) ainsi que la part de celui-ci (°C et %) expliquée par l'évolution des aérosols pour les simulations TACTIC et CLIM.

Pour essayer de comprendre cette différence en terme d'impact des aérosols sur la température entre ces deux jeux de simulations, la Figure 4.15 présente les changements d'AOD et de rayonnement en surface, en moyenne annuelle, entre les simulations RCP85 et RCP85cst à gauche ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst à droite. Cette figure montre que la baisse d'AOD sur l'Europe, plus faible dans le cas des simulations TACTIC (0.08 contre 0.14 pour les simulations CLIM) est responsable d'une baisse plus faible du rayonnement en surface (4.1 W m^{-2} contre 8.5 W m^{-2} pour les simulations CLIM) et donc d'un impact plus modéré des aérosols sur la température en Europe. Cette différence de rayonnement en surface entre les deux jeux de simulation pourrait également provenir d'une différence d'effet indirect des aérosols mais celui-ci ne peut pas être étudié avec les simulations CLIM par manque de données.

Le Tableau 4.5 présente les changements d'AOD sur l'Europe entre la période historique et la période future, en moyenne annuelle, des aérosols de sulfate, de carbone organique, de carbone suie ainsi que des particules de nitrate et d'ammonium entre les simulations TACTIC et CLIM. Ce tableau montre que la baisse de l'AOD de ces aérosols est très proche entre les simulations TACTIC et CLIM. Par conséquent, la différence d'AOD totale sur l'Europe entre les simulations TACTIC et CLIM est principalement due au fait que les aérosols de nitrate et d'ammonium ne soient pas inclus dans les simulations CLIM. D'autres éléments comme la non prise en compte de l'interactivité entre les différentes particules mais aussi une différence de l'effet indirect des aérosols, non quantifiables avec les données disponibles ici, peuvent également expliquer une partie de cet écart d'AOD totale entre les deux

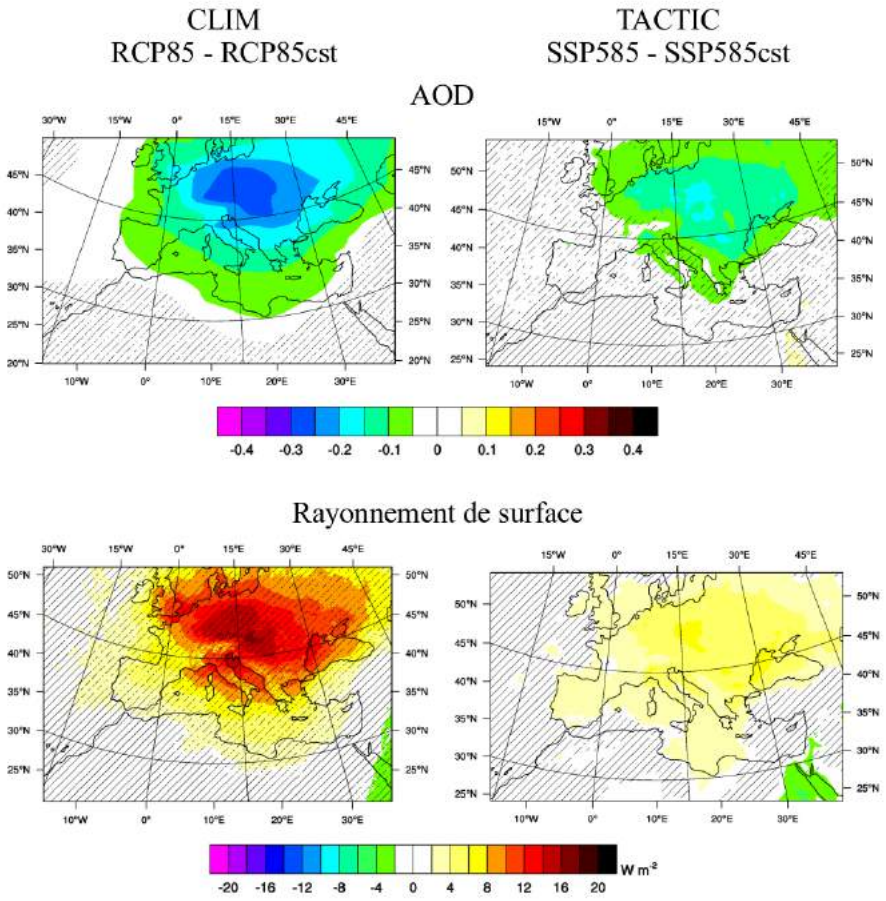

Figure 4.15 – Différences moyennes, sur l'année, entre les simulations RCP85 et RCP85cst (gauche) ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst (droite) pour l'AOD totale des aérosols (haut) et le rayonnement en surface (bas, W m^{-2}). Les zones hachurées sont statistiquement non significatives avec un seuil de 10%.

jeux de simulations.

Ces résultats montrent donc ici aussi l'importance de prendre en compte les particules de nitrate et d'ammonium dans les modèles climatiques. En effet, comme montré précédemment au cours du chapitre 3 et du chapitre 4, ces aérosols, et leurs interactions, ont un impact non négligeable sur l'évolution de l'AOD ainsi que sur celle du forçage radiatif total des aérosols en compensant à hauteur de 50% la forte baisse du forçage radiatif direct des particules de sulfate sur l'Europe. Ce chapitre 4 a aussi permis de mettre en évidence que l'évolution des différents aérosols entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050) pouvait expliquer environ 6% du réchauffement attendu sur l'Europe pour le SSP 5-8.5. En ne prenant pas en compte les aérosols de nitrate et d'ammonium ni l'interactivité entre les différentes particules, le jeu de simulation CLIM surestime potentiellement le rôle des aérosols dans le réchauffement climatique futur. Des simulations supplémentaires,

avec la prise en compte de climatologies pour les particules de nitrate et d'ammonium ou avec un forçage des aérosols identique entre les différents jeux de données, seraient nécessaires afin de pouvoir comparer au mieux l'utilisation d'un schéma interactif et l'utilisation de climatologies.

	CLIM RCP85 - RCP85cst	**TACTIC** SSP585 - SSP585cst
Sulfate	- 0.13	- 0.12
Carbone organique	- 0.005	- 0.003
Carbone suie	- 0.003	- 0.002
Nitrate	/	+ 0.03
Ammonium	/	+ 0.01

Table 4.5 – Différences annuelles moyennes, sur l'Europe, de l'AOD des aérosols de sulfate, de carbone organique, de carbone suie, de nitrate et d'ammonium entre les simulations RCP85 et RCP85cst (CLIM) ainsi que entre les simulations SSP585 et SSP585cst (TACTIC).

Des études similaires avec d'autres modèles climatiques seraient aussi nécessaires afin d'évaluer au mieux le rôle des aérosols dans le changement climatique à venir. Grâce aux programmes de recherche Med-CORDEX et Euro-CORDEX présentés dans la première partie de cette thèse, ce type d'étude pourra être approfondi par une analyse multi-modèle de la sensibilité du climat futur de la région Euro-Méditerranéenne aux différents aérosols.

Chapitre 5

Conclusions et perspectives

Sommaire

5.1 Développement du schéma interactif d'aérosols TACTIC 157

5.2 Conclusions scientifiques 158

5.3 Perspectives 161

Ce dernier chapitre va nous permettre de reprendre les différents thèmes abordés au cours de cette étude et, dans un premier temps, d'en résumer les principaux développements numériques ainsi que les conclusions scientifiques majeures. Dans un deuxième temps, nous aborderons différents points qui pourraient être développés suite aux résultats de cette thèse.

5.1 Développement du schéma interactif d'aérosols TACTIC

Dans le cadre de ce travail de thèse, nous avons développé un nouveau module d'aérosols, intégré au schéma d'aérosols TACTIC, permettant de représenter les particules de nitrate et d'ammonium afin d'avoir une prise en compte plus complète des aérosols anthropiques dans le modèle régional ALADIN-Climat. En effet le rôle fondamental de ces particules, notamment pour des études climatiques futures, avait déjà été montré dans la littérature scientifique à l'échelle globale (Bellouin et al., 2011; Hauglustaine et al., 2014), il était par conséquent important de les considérer dans cette étude. Cette nouvelle paramétrisation, basée sur celle présente dans le modèle global INCA, considère trois bins différents, un pour les aérosols d'ammonium et deux pour les particules de nitrate dont un bin fin essentiellement composé de nitrates issus de réactions gaz-particule et un bin grossier comprenant les nitrates formés par absorption à partir des poussières désertiques ou des sels marins. Les précurseurs de ces aérosols (acide nitrique et ammoniac) ont aussi été ajoutées suite à différents tests afin de les rendre les plus réalistes possibles. L'évaluation de ce

nouveau schéma d'aérosols sur la région Euro-Méditerranéenne, réalisée à partir de stations en surface et de mesures satellites sur la période 1979-2016, a montré que le modèle était capable, malgré quelques surestimations, de bien représenter les concentrations massiques des particules de nitrate en surface. Ces nouvelles particules ont par ailleurs permis d'améliorer le modèle en terme de représentation des aérosols en réduisant par exemple le biais du cycle annuel de l'AOD totale, notamment sur les zones à forte concentration de nitrate et d'ammonium comme le Benelux et la vallée du Pô. Quelques biais encore présents pourront être réduits à l'avenir grâce à des cycles annuels d'ammoniac et d'acide nitrique encore plus réalistes ou alors par la prise en compte, dans le modèle, des aérosols organiques secondaires ou des nitrates d'origine organique.

Nous disposons maintenant d'un outil spécifique intégrant la majorité des espèces d'aérosols, qui garde néanmoins un coût de calcul relativement bas dans le but de réaliser des simulations sur des périodes de temps longues, et qui permet par conséquent d'étudier l'évolution ainsi que l'impact des différents aérosols sur le climat Euro-Méditerranéen. Les différentes questions scientifiques abordées durant cette thèse sont listées ci-dessous.

5.2 Conclusions scientifiques

Impact des aérosols de nitrate et d'ammonium sur le climat présent de la région Euro-Méditerranéenne

Ce nouveau schéma d'aérosols a permis de mettre en évidence, sur la période 1979-2016, le rôle important des aérosols de nitrate et d'ammonium sur le climat de la région Euro-Méditerranéenne. En effet, ces particules peuvent contribuer jusqu'à 40% à l'AOD totale (à 550 nm) sur l'Europe avec une moyenne de 0.07 sur la période 2001-2016. L'un des résultats majeurs de cette étude est d'avoir montré, qu'à partir de l'année 2005 sur l'Europe, le DRF des aérosols de nitrate et d'ammonium dépasse celui des aérosols de sulfate et du carbone organique faisant de ces aérosols les particules ayant l'AOD et le DRF le plus fort sur cette région. Cela serait la conséquence de la baisse des émissions de dioxyde de soufre et donc de la production des aérosols de sulfate depuis les années 1980 sur l'Europe entraînant ainsi une hausse de l'ammoniac libre dans l'atmosphère, et par conséquent une augmentation de la production des aérosols de nitrate et d'ammonium. Sur la période 1979-2016, ces aérosols ont un DRF dans les courtes longueurs d'onde de -1.7 W m^{-2} à la surface et de -1.4 W m^{-2} au sommet de l'atmosphère sur l'Europe, avec un maximum régional en surface localisé sur la vallée du Pô (-5 W m^{-2}). L'effet "assombrissant"

des particules de nitrate et d'ammonium entraîne un refroidissement sur l'Europe de 0.2°C en moyenne avec un maximum de 0.4°C durant l'été sur la vallée du Pô. En revanche, concernant les précipitations, aucun impact significatif de ces particules n'a été démontré.

Ce travail a pu permettre de confirmer le rôle important des aérosols de nitrate et d'ammonium sur le climat de la région Euro-Méditerranéenne et par conséquent la nécessité de considérer ces particules dans les modèles climatiques.

Bilan des aérosols et évolution de leur forçage radiatif entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 sur la région Euro-Méditerranéenne

Durant ce travail de thèse, nous avons également étudié l'évolution des émissions, de la concentration ainsi que de l'AOD des différents aérosols entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050) en fonction de trois SSPs différents, le SSP 1-1.9, le SSP 3-7.0 et le SSP 5-8.5. Ces trois scénarios ont été choisis afin d'avoir une gamme de futurs, en terme de concentration et d'épaisseur optique des aérosols, la plus large possible. Cette étude a montré une forte baisse de l'AOD totale sur l'Europe, de 35% en moyenne, similaire entre les différents scénarios. Cette diminution d'AOD équivaut à environ - 0.07 en moyenne annuelle. En comparaison la baisse d'AOD totale observée sur la mer Méditerranée est de - 0.02. Cette forte baisse, entre la période historique et la période future, est essentiellement due à la diminution des émissions de dioxyde de soufre et par conséquent de la concentration ainsi que de l'AOD des aérosols de sulfates. Cette baisse de l'ordre de 90% de l'AOD des aérosols de sulfate sur l'Europe est néanmoins compensée à hauteur 30% par la hausse des particules de nitrates et d'ammonium. Sur l'Afrique, les résultats montrent la présence d'un dipôle entre le bassin ouest et le bassin est de cette région avec une augmentation de l'AOD des poussières désertiques à l'ouest (+ 0.02) et une baisse ou une stagnation de celle-ci à l'est. Les autres aérosols, quant à eux, ne montrent pas de forts changements de concentration en surface ni d'AOD entre les deux périodes étudiées.

Suite à cela, nous avons mis en évidence que les aérosols de nitrate allaient potentiellement devenir le plus haut contributeur à l'AOD totale sur l'Europe, à hauteur d'environ 45%, sur la période 2021-2050. Un constat cohérent avec les résultats précédents et qui sont similaires en fonction des différents scénarios. À l'inverse, les aérosols de sulfate, qui étaient l'espèce contribuant le plus à l'AOD totale, passent d'une contribution de 60% à une contribution de seulement 10% dans la période future sur l'Europe. Ces changements sont similaires sur la mer Méditerranée avec un passage de 6 à 20% pour la contribution des nitrates à l'AOD anthropique associée

à une baisse allant de 20 à 30% selon le scénario pour la contribution des particules de sulfate.

En conséquence, ces différents changements d'émissions, de concentration et d'AOD des aérosols entre la période passée et la période future impactent le forçage radiatif direct des différentes particules. Les trois scénarios ont montré une baisse du DRF total sur l'Europe entre les deux périodes d'environ 1 W m^{-2} au TOA à 1.6 W m^{-2} en surface en moyenne annuelle dans les courtes longueurs d'onde. En accord avec les résultats précédents on note une forte baisse du DRF des aérosols de sulfate, partiellement compensée par la hausse de celui des nitrates et de l'ammonium. Les particules de nitrate vont par ailleurs devenir les aérosols avec le plus fort forçage radiatif dans la période future sur l'Europe. Sur l'Afrique, les résultats montrent une hausse du DRF total attribuée aux aérosols de nitrate et d'ammonium (0.6 W m^{-2}) ainsi qu'aux particules de poussières désertiques (0.4 W m^{-2}).

Impact de l'évolution des aérosols sur le changement climatique attendu sur la région Euro-Méditerranéenne

Les différents changements que nous venons d'évoquer n'ont que peu d'impact sur les précipitations, la nébulosité ou encore l'humidité spécifique de surface. En revanche, ils peuvent expliquer entre 5 et 7% du réchauffement climatique attendu sur l'Europe entre la période historique (1971-2000) et la période future (2021-2050) selon les différents scénarios. Ce résultat va varier en fonction des saisons, avec un maximum pendant la saison estivale. Durant cette saison, pour le SSP 5-8.5, la hausse de température la plus élevée a lieu sur l'Europe centrale et s'explique, sur cette région, par la baisse des interactions aérosols-rayonnement ainsi que par celle de l'albédo des nuages qui sont corrélées à la diminution de la concentration et de l'AOD des aérosols, et notamment des aérosols de sulfate. D'autres cas plus particuliers d'augmentation ou de diminution de la température durant l'été pour le SSP 5-8.5, comme sur la péninsule Ibérique ou sur l'ouest de la France, s'expliquent généralement par une modification de la dynamique atmosphérique, couplée ou non à un changement de l'albédo des nuages, tous deux induits par une baisse de la concentration totale des aérosols sur cette région.

Une étude similaire a aussi été réalisée avec le modèle ALADIN-Climat mais utilisant cette fois-ci des climatologies d'AOD à la place du schéma interactif d'aérosols ainsi qu'un modèle forceur différent. Cette étude, qui présentait par ailleurs un réchauffement des températures plus faible entre la période historique et la période future, a montré que les aérosols pouvaient être responsables d'environ 20% de ce réchauffement, soit une contribution trois fois supérieure à celle montrée dans

cette thèse. Néanmoins, cette forte différence s'explique essentiellement par la non prise en compte des aérosols de nitrate et d'ammonium dans le cas de cette étude, qui comme nous l'avons vu précédemment, viendraient compenser en partie la forte baisse de la concentration des aérosols de sulfate sur l'Europe et ainsi réduire la part du réchauffement climatique attribuée aux aérosols sur cette région. D'autres différences entre ces deux études, telle que l'utilisation de climatologies d'AOD et donc la non prise en compte de l'interactivité entre les différentes particules mais aussi une différence de l'effet indirect des aérosols, peuvent aussi intervenir dans cet écart de résultat. Des études supplémentaires seraient donc nécessaires afin d'évaluer au mieux, avec notamment d'autres modèles régionaux, le rôle des aérosols dans le changement climatique à venir.

5.3 Perspectives

Pour finir ce travail de thèse, nous allons maintenant voir les différents points qui pourraient être développés par la suite.

Une meilleure prise en compte des aérosols dans le modèle

Suite à l'ajout des particules de nitrate et d'ammonium, le modèle climatique régional ALADIN-Climat inclue désormais, par le biais du schéma interactif TACTIC, la majorité des espèces d'aérosols. Comme vu auparavant, l'intégration de ces particules a permis d'améliorer le modèle en terme de représentation des aérosols en corrigeant certains biais associés à l'AOD. L'une des perspectives de ce travail serait d'aller encore plus loin, en intégrant dans le modèle les aérosols encore manquants comme les aérosols organiques secondaires ou les nitrates d'origine organique.

Grâce à l'amélioration attendue des calculateurs permettant une réduction du coût des simulations, une meilleure prise en compte des aérosols dans le modèle pourrait se faire par la mise en place d'un schéma de chimie troposphérique. Celui-ci pourrait permettre d'avoir une paramétrisation plus élaborée des émissions des précurseurs des particules de nitrate et d'ammonium et par conséquent une meilleure prise en compte de ces aérosols. L'intégration d'un schéma de chimie complet au sein du modèle ALADIN-Climat permettrait également une meilleure représentation du cycle du soufre. En effet, jusqu'à présent, les émissions de précurseurs de sulfates comme le dioxyde de soufre sont convertis en particules de sulfate selon une paramétrisation des réactions photolytiques d'oxydation faisant uniquement intervenir l'angle solaire à travers la latitude. Ces développements pourraient également corriger une partie des biais du modèle décrits dans le chapitre 2.

Une autre voie d'amélioration du modèle ALADIN-Climat serait d'intégrer une occupation du sol évolutive en fonction du temps telle qu'elle est paramétrée dans le modèle de Système Terre CNRM-ESM2-1. Cela permettrait une meilleure prise en compte des aérosols, à travers une amélioration de leurs émissions, notamment pour les aérosols d'origine naturelle qui sont émis de façon dynamique comme détaillé au début du chapitre 2.

Pour finir, une meilleure représentation des effets indirects des aérosols, comme le font de plus en plus de modèles de climat, permettrait d'améliorer la représentation des interactions "aérosols-nuages" dans le modèle ALADIN-Climat qui, pour le moment, n'inclue qu'une paramétrisation simple du premier effet indirect des aérosols de sulfate, du carbone organique et des particules de sel marin. Par exemple, il serait intéressant à présent d'intégrer les aérosols de nitrate et d'ammonium (particules hydrophiles) dans cette paramétrisation.

Une nouvelle étude de l'évolution et de l'impact des aérosols sur le climat futur avec un modèle couplé océan-atmosphère

L'importance du couplage océan-atmosphère dans l'étude de l'effet des aérosols sur le climat en Méditerranée a été mis en avant dans l'étude de Nabat et al. (2015b) où ils montrent que ces aérosols impactent les flux entre l'océan et l'atmosphère, le cycle hydrologique ainsi que la circulation thermohaline qui, à leur tour, vont impacter le climat de la région. Une étude similaire à celle présentée au cours de cette thèse, mais avec le modèle régional couplé océan-atmosphère CNRM-RCSM, pourrait ainsi être envisagée afin d'évaluer l'impact de ce couplage entre l'atmosphère et l'océan dans ces différentes questions scientifiques.

Un exercice multi-modèles régionaux de l'évolution des aérosols et de leurs interactions avec le climat

L'ensemble des résultats montrés dans cette thèse a été réalisé avec un unique modèle, le système de modélisation climatique régionale ALADIN-Climat. Il serait donc très intéressant d'étudier les différentes questions scientifiques abordées tout au long de ce travail avec un ensemble multi-modèles. Cette étude pourrait se faire dans le cadre des programmes internationaux Euro-CORDEX et Med-CORDEX qui ont pour principaux objectifs de caractériser la variabilité passée et l'évolution future des aérosols sur la région Méditerranéenne mais aussi de comprendre le rôle des aérosols dans la variabilité climatique passée et d'étudier la sensibilité du climat futur de cette région aux aérosols. Dans le cadre de ces programmes, le FPS aérosols va aborder plusieurs de ces questions à travers deux protocoles distincts. Le premier

consiste à n'utiliser que des climatologies d'aérosols non interactives, qui sont encore largement utilisées dans la modélisation climatique régionale, tandis que les modèles régionaux participant au deuxième protocole incluent nécessairement un schéma interactif d'aérosols.

Les différents modèles climatiques participant à ces programmes ainsi que leur méthode de prise en compte des particules atmosphériques sont listés en introduction. Des exercices d'intercomparaison pourraient alors être menés sur les questions abordées dans cette thèse comme celle de l'évolution des aérosols entre une période historique et une période future ou encore celle de l'impact de ces particules sur le changement climatique futur de la région Euro-Méditerranéenne. Cela permettrait par ailleurs de vérifier la robustesse des résultats montrés dans ce travail de thèse.

Intégration des nouveaux développements dans le modèle global CNRM-ESM

Au vu des différentes améliorations apportées par les développements effectués au cours de cette thèse, et notamment par l'ajout des particules de nitrate et d'ammonium au schéma interactif d'aérosols TACTIC, l'une des perspectives de cette thèse est d'intégrer ces nouveaux développements au sein du modèle de Système Terre CNRM-ESM. Ces deux modèles disposant en plus d'une physique similaire, les développements effectués ici dans le modèle régional pourront facilement être adaptables au modèle global.

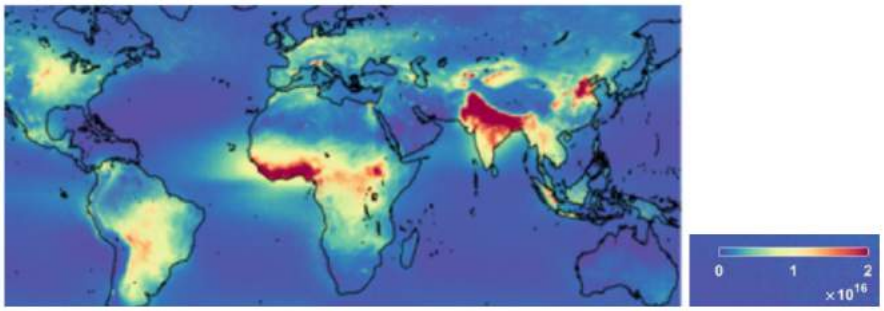

Figure 5.1 – Concentration (molécules cm^{-2}) en ammoniac mesurée par l'instrument IASI équipé sur les satellites météorologiques européens. D'après Van Damme et al. (2018).

L'ajout de ces nouvelles particules dans le modèle CNRM-ESM permettrait potentiellement de réduire des biais d'AOD observés dans les simulations CMIP6 du CNRM sur des zones comme l'Inde ou l'Asie (Michou et al., in review) qui sont des régions riches en ammoniac, comme la montre la Figure 5.1, et donc probablement soumises à de fortes charges en aérosols de nitrate et d'ammonium.

Références

Ackerman, A., Toon, O., Stevens, D., Heymsfield, A., Ramanathan, V., and Welton, E. (2000). Reduction of tropical cloudiness by soot. *Science*, 288(5468) :1042–1047.

Ackerman, T. P. and Toon, O. B. (1981). Absorption of visible radiation in atmosphere containing mixtures of absorbing and nonabsorbing particles. *Applied Optics*, 20(20) :3661–3668.

Adams, P. J., Seinfeld, J. H., Koch, D., Mickley, L., and Jacob, D. (2001). General circulation model assessment of direct radiative forcing by the sulfate-nitrate-ammonium-water inorganic aerosol system. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D1) :1097–1111.

Adloff, F., Somot, S., Sevault, F., Jordà, G., Aznar, R., Déqué, M., Herrmann, M., Marcos, M., Dubois, C., Padorno, E., et al. (2015). Mediterranean sea response to climate change in an ensemble of twenty first century scenarios. *Climate Dynamics*, 45(9-10) :2775–2802.

Albrecht, B. (1989). Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science*, 245(4923) :1227–1230.

Alfaro, S., Lafon, S., Rajot, J., Formenti, P., Gaudichet, A., and Maille, M. (2004). Iron oxides and light absorption by pure desert dust : An experimental study. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D8).

Allard, P., Carbonnelle, J., Dajlevic, D., Le Bronec, J., Morel, P., Robe, M., Maurenas, J., Faivre-Pierret, R., Martin, D., Sabroux, J., et al. (1991). Eruptive and diffuse emissions of co2 from mount etna. *Nature*, 351(6325) :387.

Alpert, P., Neeman, B., and Shay-El, Y. (1990). Climatological analysis of mediterranean cyclones using ecmwf data. *Tellus A : Dynamic Meteorology and Oceanography*, 42(1) :65–77.

Andreas, E. L. (1998). A new sea spray generation function for wind speeds up to 32 ms- 1. *Journal of Physical Oceanography*, 28(11) :2175–2184.

Aumont, O. and Bopp, L. (2006). Globalizing results from ocean in situ iron fertilization studies. *Global Biogeochemical Cycles*, 20(2).

Balis, D., Amiridis, V., Zerefos, C., Kazantzidis, A., Kazadzis, S., Bais, A., Meleti, C., Gerasopoulos, E., Papayannis, A., Matthias, V., et al. (2004). Study of the effect of different type of aerosols on uv-b radiation from measurements during earlinet. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(2) :307–321.

Bangert, M., Kottmeier, C., Vogel, B., and Vogel, H. (2011). Regional scale effects of the aerosol cloud interaction simulated with an online coupled comprehensive chemistry model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(9) :4411–4423.

Barnaba, F. and Gobbi, G. (2004). Aerosol seasonal variability over the mediterranean region and relative impact of maritime, continental and saharan dust particles over the basin from modis data in the year 2001. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(9/10) :2367–2391.

Barnard, J. C., Volkamer, R., and Kassianov, E. I. (2008). Estimation of the mass absorption cross section of the organic carbon component of aerosols in the mexico city metropolitan area. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(22) :6665–6679.

Bauer, S., Koch, D., Unger, N., Metzger, S., Shindell, D., and Streets, D. (2007). Nitrate aerosols today and in 2030 : a global simulation including aerosols and tropospheric ozone. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(19) :5043–5059.

Bègue, N., Tulet, P., Chaboureau, J.-P., Roberts, G., Gomes, L., and Mallet, M. (2012). Long-range transport of saharan dust over northwestern europe during eucaari 2008 campaign : Evolution of dust optical properties by scavenging. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D17201).

Bellouin, N., Rae, J., Jones, A., Johnson, C., Haywood, J., and Boucher, O. (2011). Aerosol forcing in the climate model intercomparison project (cmip5) simulations by hadgem2-es and the role of ammonium nitrate. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D20).

Benas, N., Hatzianastassiou, N., Matsoukas, C., Fotiadi, A., Mihalopoulos, N., and Vardavas, I. (2013). Aerosol shortwave direct radiative effect and forcing based on modis level 2 data in the eastern mediterranean (crete). In *Advances in Meteorology, Climatology and Atmospheric Physics*, pages 917–922. Springer.

Benkovitz, C. M., Scholtz, M. T., Pacyna, J., Tarrasón, L., Dignon, J., Voldner, E. C., Spiro, P. A., Logan, J. A., and Graedel, T. (1996). Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D22) :29239–29253.

Bergamo, A., Tafuro, A., Kinne, S., De Tomasi, F., and Perrone, M. (2008). Monthly-averaged anthropogenic aerosol direct radiative forcing over the mediterranean based on aeronet aerosol properties. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 8(23).

Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honoré, C., Liousse, C., and Rouil, L. (2004). Aerosol modeling with chimere—preliminary evaluation at the continental scale. *Atmospheric Environment*, 38(18) :2803–2817.

Bian, H., Chin, M., Hauglustaine, D. A., Schulz, M., Myhre, G., Bauer, S. E., Lund, M. T., Karydis, V. A., Kucsera, T. L., Pan, X., Pozzer, A., Skeie, R. B., Steenrod, S. D., Sudo, K., Tsigaridis, K., Tsimpidi, A. P., and Tsyro, S. G. (2017). Investigation of global particulate nitrate from the aerocom phase iii experiment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(21) :12911–12940.

Bigi, A. and Ghermandi, G. (2014). Long-term trend and variability of atmospheric pm 10 concentration in the po valley. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(10) :4895–4907.

Bond, T. and Bergstrom, R. (2006). Light absorption by carbonaceous particles : An investigative review. *Aerosol Science and Technology*, 40(1) :27–67.

Bony, S., Colman, R., Kattsov, V., Allan, R., Bretherton, C., Dufresne, J., Hall, A., Hallegatte, S., Holland, M., Ingram, W., Randall, D., Soden, B., Tselioudis, G., and Webb, M. (2006). How well do we understand and evaluate climate change feedback processes ? *Journal of Climate*, 19(15) :3445–3482.

Boucher, O. (2012). Les aérosols atmosphériques. *Aérosols atmosphériques*, pages 7–16.

Boucher, O., Pham, M., and Venkataraman, C. (2002). Simulation of the atmospheric sulfur cycle in the lmd gcm : Model description, model evaluation, and global and european budgets. *IPSL, Note*, 23 :26.

Brioude, J., Cooper, O., Feingold, G., Trainer, M., Freitas, S., Kowal, D., Ayers, J., Prins, E., Minnis, P., McKeen, S., et al. (2009). Effect of biomass burning on marine stratocumulus clouds off the california coast. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(22) :8841–8856.

Bubnová, R., Hello, G., Bénard, P., and Geleyn, J.-F. (1995). Integration of the fully elastic equations cast in the hydrostatic pressure terrain-following coordinate in the framework of the arpege/aladin nwp system. *Monthly Weather Review*, 123(2) :515–535.

C. O'Neill, B., Kriegler, E., Ebi, K., Kemp-Benedict, E., Riahi, K., Rothman, D., van Ruijven, B., Vuuren, D., Birkmann, J., Kok, K., Levy, M., and Solecki, W. (2015). The roads ahead : Narratives for shared socioeconomic pathways describing world futures in the 21st century. *Global Environmental Change*.

Carillo, A., Sannino, G., Artale, V., Ruti, P., Calmanti, S., and Dell'Aquila, A. (2012). Steric sea level rise over the mediterranean sea : present climate and scenario simulations. *Climate dynamics*, 39(9-10) :2167–2184.

Cavalli, F., Facchini, M., Decesari, S., Mircea, M., Emblico, L., Fuzzi, S., Ceburnis, D., Yoon, Y., O'Dowd, C., Putaud, J.-P., et al. (2004). Advances in characterization of size-resolved organic matter in marine aerosol over the north atlantic. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D24).

Cavicchia, L., von Storch, H., and Gualdi, S. (2014). A long-term climatology of medicanes. *Climate dynamics*, 43(5-6) :1183–1195.

Charlson, R. J., Schwartz, S., Hales, J., Cess, R. D., Coakley, J. J., Hansen, J., and Hofmann, D. (1992). Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science*, 255(5043) :423–430.

Chen, Y., Cheng, Y., Ma, N., Wei, C., Ran, L., Wolke, R., Größ, J., Wang, Q., Pozzer, A., Denier van der Gon, H. A. C., Spindler, G., Lelieveld, J., Tegen, I., Su, H., and Wiedensohler, A. (2019). Natural sea-salt emissions moderate the climate forcing of anthropogenic nitrate. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2019 :1–28.

Cholakian, A., Colette, A., Coll, I., Ciarelli, G., and Beekmann, M. (2019). Future climatic drivers and their effect on pm 10 components in europe and the mediterranean sea. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(7) :4459–4484.

Chou, C., Formenti, P., Maille, M., Ausset, P., Helas, G., Harrison, M., and Osborne, S. (2008). Size distribution, shape, and composition of mineral dust aerosols collected during the african monsoon multidisciplinary analysis special observation period 0 : Dust and biomass-burning experiment field campaign in niger, january 2006. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D23).

Chow, J. C., Watson, J. G., Kuhns, H., Etyemezian, V., Lowenthal, D. H., Crow, D., Kohl, S. D., Engelbrecht, J. P., and Green, M. C. (2004). Source profiles for industrial, mobile, and area sources in the big bend regional aerosol visibility and observational study. *Chemosphere*, 54(2) :185–208.

Christensen, J. H., Carter, T. R., and Giorgi, F. (2002). Prudence employs new methods to assess european climate change. *Eos, Transactions American Geophysical Union*, 83(13) :147–147.

Chrit, M., Sartelet, K., Sciare, J., Pey, J., Marchand, N., Couvidat, F., Sellegri, K., and Beekmann, M. (2017). Modelling organic aerosol concentrations and properties during charmex summer campaigns of 2012 and 2013 in the western mediterranean region. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(20) :12509–12531.

Chu, D. A., Kaufman, Y., Zibordi, G., Chern, J., Mao, J., Li, C., and Holben, B. (2003). Global monitoring of air pollution over land from the earth observing system-terra moderate resolution imaging spectroradiometer (modis). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D21).

Collins, W. J., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Boucher, O., Eyring, V., Hegglin, M. I., Maycock, A., Myhre, G., Prather, M., Shindell, D., and Smith, S. J. (2017). Aerchemmip : quantifying the effects of chemistry and aerosols in cmip6. *Geoscientific Model Development*, 10(2) :585–607.

Cooke, W., C, L., Cachier, H., and Feichter, J. (1999). Construction of a $1° \times 1°$ fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the echam4 model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D18) :22137–22162.

Craig, A., Valcke, S., and Coquart, L. (2017). Development and performance of a new version of the oasis coupler, oasis3-mct_3. 0. *Geoscientific Model Development*, 10(9) :3297–3308.

D'Almeida, G., Koepke, P., and Shettle, E. (1991). Atmospheric aerosols : global climatology and radiative characteristics. *A Deepak Pub.*

Daniel, M., Lemonsu, A., Déqué, M., Somot, S., Alias, A., and Masson, V. (2018). Benefits of explicit urban parameterization in regional climate modeling to study climate and city interactions. *Climate Dynamics*, 52(5-6) :2745–2764.

Darmaraki, S., Somot, S., Sevault, F., Nabat, P., Narvaez, W. D. C., Cavicchia, L., Djurdjevic, V., Li, L., Sannino, G., and Sein, D. V. (2019). Future evolution of marine heatwaves in the mediterranean sea. *Climate Dynamics*, pages 1–22.

Decharme, B., Delire, C., Minvielle, M., Colin, J., Vergnes, J.-P., Alias, A., Saint-Martin, D., Séférian, R., Sénési, S., and Voldoire, A. (2019). Recent changes in the isba-ctrip land surface system for use in the cnrm-cm6 climate model and in

global off-line hydrological applications. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*.

Dee, D. P., Uppala, S., Simmons, A., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M., Balsamo, G., Bauer, d. P., et al. (2011). The era-interim reanalysis : Configuration and performance of the data assimilation system. *Quarterly Journal of the royal meteorological society*, 137(656) :553–597.

Dellink, R., Chateau, J., Lanzi, E., and Magné, B. (2015). Long-term economic growth projections in the shared socioeconomic pathways. *Global Environmental Change*, 42 :200 – 214.

Delmas, R., Mégie, G., and Peuch, V.-H. (2005). *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin.

Dentener, F., Kinne, S., Bond, T., Boucher, O., Cofala, J., Generoso, S., Ginoux, P., Gong, S., Hoelzemann, J., Ito, A., et al. (2006). Emissions of primary aerosol and precursor gases in the years 2000 and 1750 prescribed data-sets for aerocom. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12) :4321–4344.

Déqué, M., Dreveton, C., Braun, A., and Cariolle, D. (1994). The arpege/ifs atmosphere model : a contribution to the french community climate modelling. *Climate Dynamics*, 10(4-5) :249–266.

Despiau, S., Cougnenc, S., and Resch, F. (1996). Concentrations and size distributions of aerosol particles in coastal zone. *Journal of Aerosol Science*, 27(3) :403 – 415. Atmospheric Aerosols.

Di Biagio, C., di Sarra, A., and Meloni, D. (2010). Large atmospheric shortwave radiative forcing by mediterranean aerosols derived from simultaneous ground-based and spaceborne observations and dependence on the aerosol type and single scattering albedo. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D10).

Di Biagio, C., di Sarra, A., Meloni, D., Monteleone, F., Piacentino, S., and Sferlazzo, D. (2009). Measurements of mediterranean aerosol radiative forcing and influence of the single scattering albedo. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D6).

Dickinson, R. E., Errico, R. M., Giorgi, F., and Bates, G. T. (1989). A regional climate model for the western united states. *Climatic Change*, 15(3) :383–422.

Diémoz, H., Gobbi, G. P., Magri, T., Pession, G., Pittavino, S., Tombolato, I. K., Campanelli, M., and Barnaba, F. (2019). Transport of po valley aerosol pollution to the northwestern alps. part 2 : long-term impact on air quality. *Atmos. Chem. Phys. Discuss., submitted*.

Dinar, E., Abo Riziq, A., Spindler, C., Erlick, C., Kiss, G., and Rudich, Y. (2008). The complex refractive index of atmospheric and model humic-like substances (hulis) retrieved by a cavity ring down aerosol spectrometer (crd-as). *Faraday Discuss.*, 137 :279–295.

Doche, C., Dufour, G., Foret, G., Eremenko, M., Cuesta, J., Beekmann, M., and Kalabokas, P. (2014). Summertime tropospheric-ozone variability over the mediterranean basin observed with iasi. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(19) :10589–10600.

Drugé, T., Nabat, P., Mallet, M., and Somot, S. (2019). Model simulation of ammonium and nitrate aerosols distribution in the euro-mediterranean region and their radiative and climatic effects over 1979–2016. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(6) :3707–3731.

Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I. (2002). Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(3) :590–608.

Dufresne, J.-L., Gautier, C., Ricchiazzi, P., and Fouquart, Y. (2002). Longwave scattering effects of mineral aerosols. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59(12) :1959–1966.

Evan, A. T., Flamant, C., Gaetani, M., and Guichard, F. (2016). The past, present and future of african dust. *Nature*, 531(7595) :493.

Eyring, V., Bony, S., Meehl, G. A., Senior, C. A., Stevens, B., Stouffer, R. J., and Taylor, K. E. (2016). Overview of the coupled model intercomparison project phase 6 (cmip6) experimental design and organization. *Geoscientific Model Development (Online)*, 9(LLNL-JRNL-736881).

Feingold, G., Jiang, H., and Harrington, J. Y. (2005). On smoke suppression of clouds in amazonia. *Geophysical Research Letters*, 32(2).

Formenti, P., Reiner, T., Sprung, D., Andreae, M. O., Wendisch, M., Wex, H., Kindred, D., Dewey, K., Kent, J., Tzortziou, M., et al. (2002). Staaarte-med 1998

summer airborne measurements over the aegean sea 1. aerosol particles and trace gases. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D21) :AAC–1.

Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D., Myhre, G., et al. (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'.(eds s solomon, d qin, m manning, z chen, m marquis, kb averyt, m tignor, hl miller) pp. 129-234.

Fuller, K. A., Malm, W. C., and Kreidenweis, S. M. (1999). Effects of mixing on extinction by carbonaceous particles. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D13) :15941–15954.

Fuzzi, S., Baltensperger, U., Carslaw, K., Decesari, S., Denier van der Gon, H., Facchini, M. C., Fowler, D., Koren, I., Langford, B., Lohmann, U., et al. (2015). Particulate matter, air quality and climate : lessons learned and future needs. *Atmospheric chemistry and physics*, 15(14) :8217–8299.

Ghan, S. J. (2013). Estimating aerosol effects on cloud radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(19) :9971–9974.

Gibelin, A.-L. and Déqué, M. (2003). Anthropogenic climate change over the mediterranean region simulated by a global variable resolution model. *Climate Dynamics*, 20(4) :327–339.

Gidden, M. J., Riahi, K., Smith, S. J., Fujimori, S., Luderer, G., Kriegler, E., van Vuuren, D. P., van den Berg, M., Feng, L., Klein, D., Calvin, K., Doelman, J. C., Frank, S., Fricko, O., Harmsen, M., Hasegawa, T., Havlik, P., Hilaire, J., Hoesly, R., Horing, J., Popp, A., Stehfest, E., and Takahashi, K. (2019). Global emissions pathways under different socioeconomic scenarios for use in cmip6 : a dataset of harmonized emissions trajectories through the end of the century. *Geoscientific Model Development*, 12(4) :1443–1475.

Gilgen, H., Wild, M., and Ohmura, A. (1998). Means and trends of shortwave irradiance at the surface estimated from global energy balance archive data. *Journal of Climate*, 11(8) :2042–2061.

Gillette, D. (1979). Environmental factors affecting dust emission by wind erosion. *John Wiley, New York, c. morales edition*, pages 71–94.

Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O., and Lin, S.-J. (2001). Sources and distributions of dust aerosols simulated with the gocart model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D17) :20255–20273.

Ginoux, P., Prospero, J., Torres, O., and Chin, M. (2004). Long-term simulation of global dust distribution with the gocart model : correlation with north atlantic oscillation. *Environmental Modelling & Software*, 19(2) :113 – 128. Modelling of Wind Erosion and Aeolian Processes.

Giorgi, F., Bi, X., and Qian, Y. (2002). Direct radiative forcing and regional climatic effects of anthropogenic aerosols over east asia : A regional coupled climate-chemistry/aerosol model study. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D20) :AAC 7–1–AAC 7–18.

Giorgi, F. and Chameides, W. L. (1986). Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 91(D13) :14367–14376.

Giorgi, F. and Coppola, E. (2009). Projections of twenty-first century climate over europe. In *EPJ Web of Conferences*, volume 1, pages 29–46. EDP Sciences.

Giorgi, F., Jones, C., Asrar, G. R., et al. (2009). Addressing climate information needs at the regional level : the cordex framework. *World Meteorological Organization (WMO) Bulletin*, 58(3) :175.

Giorgi, F. and Lionello, P. (2008). Climate change projections for the mediterranean region. *Global and Planetary Change*, 63(2) :90 – 104. Mediterranean climate : trends, variability and change.

Giorgi, F. and Mearns, L. O. (1999). Introduction to special section : Regional climate modeling revisited. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D6) :6335–6352.

Gislason, S. R., Hassenkam, T., Nedel, S., Bovet, N., Eiriksdottir, E. S., Alfredsson, H. A., Hem, C. P., Balogh, Z. I., Dideriksen, K., Oskarsson, N., Sigfusson, B., Larsen, G., and Stipp, S. L. S. (2011). Characterization of eyjafjallajökull volcanic ash particles and a protocol for rapid risk assessment. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 108(18) :7307–7312.

Gkikas, A., Hatzianastassiou, N., Mihalopoulos, N., Katsoulis, V., Kazadzis, S., Pey, J., Querol, X., and Torres, O. (2013). The regime of intense desert dust episodes

in the mediterranean based on contemporary satellite observations and ground measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(23) :12135–12154.

Gkikas, A., Houssos, E., Hatzianastassiou, N., Papadimas, C., and Bartzokas, A. (2012). Synoptic conditions favouring the occurrence of aerosol episodes over the broader mediterranean basin. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 138(665) :932–949.

Greeley, R., Blumberg, D. G., and Williams, S. H. (1996). Field measurements of the flux and speed of wind-blown sand. *Sedimentology*, 43(1) :41–52.

Grythe, H., Ström, J., Krejčí, R., Quinn, P. K., and Stohl, A. (2014). A review of sea-spray aerosol source functions using a large global set of sea salt aerosol concentration measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*.

Guerzoni, S., Chester, R., Dulac, F., Herut, B., Loÿe-Pilot, M., Measures, C., Migon, C., Molinaroli, E., Moulin, C., Rossini, P., Saydam, C., Soudine, A., and Ziveri, P. (1999). The role of atmospheric deposition in the biogeochemistry of the mediterranean sea. *Progress in Oceanography*, 44(1) :147 – 190.

Guieu, C., Chester, R., Nimmo, M., Martin, J., Guerzoni, S., Nicolas, E., Mateu, J., and Keyse, S. (1997). Atmospheric input of dissolved and particulate metals to the northwestern mediterranean. *Deep Sea Research Part II : Topical Studies in Oceanography*, 44(3) :655 – 674.

Hadley, O. and Kirchstetter, T. (2012). Black-carbon reduction of snow albedo. *Nature Climate Change*, 2 :437–440.

Hagemann, S., Machenhauer, B., Jones, R., Christensen, O. B., Déqué, M., Jacob, D., and Vidale, P. L. (2004). Evaluation of water and energy budgets in regional climate models applied over europe. *Climate Dynamics*, 23(5) :547–567.

Hansen, J., Sato, M., and Ruedy, R. (1997). Radiative forcing and climate response. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D6) :6831–6864.

Harrison, R. M. and Kitto, A.-M. (1990). Field intercomparison of filter pack and denuder sampling methods for reactive gaseous and particulate pollutants. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 24(10) :2633–2640.

Hauglustaine, D., Balkanski, Y., and Schulz, M. (2014). A global model simulation of present and future nitrate aerosols and their direct radiative forcing of climate. *Atmos. Chem. Phys*, 14(20) :11031–11063.

Haywood, J. and Schulz, M. (2007). Causes of the reduction in uncertainty in the anthropogenic radiative forcing of climate between ipcc (2001) and ipcc (2007). *Geophysical Research Letters*, 34(20).

Haywood, J. and Shine, K. (1995). The effect of anthropogenic sulfate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget. *Geophysical Research Letters*, 22(5) :603–606.

Haywood, J. M., Osborne, S. R., Francis, P. N., Keil, A., Formenti, P., Andreae, M. O., and Kaye, P. H. (2003). The mean physical and optical properties of regional haze dominated by biomass burning aerosol measured from the c-130 aircraft during safari 2000. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D13).

Herrmann, M., Estournel, C., Adloff, F., and Diaz, F. (2014). Impact of climate change on the northwestern mediterranean sea pelagic planktonic ecosystem and associated carbon cycle. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 119(9) :5815–5836.

Herrmann, M., Somot, S., Calmanti, S., Dubois, C., and Sevault, F. (2011). Representation of spatial and temporal variability of daily wind speed and of intense wind events over the mediterranean sea using dynamical downscaling : impact of the regional climate model configuration. *Natural Hazards and Earth System Sciences*, 11 :1983–2001.

Hess, M., Koepke, P., and Schult, I. (1998). Optical properties of aerosols and clouds : The software package opac. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 79(5) :831–844.

Hewitt, C. D. (2004). Ensembles-based predictions of climate changes and their impacts. *Eos, Transactions American Geophysical Union*, 85(52) :566–566.

Hill, A. and Dobbie, S. (2008). The impact of aerosols on non-precipitating marine stratocumulus. ii : The semi-direct effect. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society : A journal of the atmospheric sciences, applied meteorology and physical oceanography*, 134(634) :1155–1165.

Hoesly, R. M., Smith, S. J., Feng, L., Klimont, Z., Janssens-Maenhout, G., Pitkanen, T., Seibert, J. J., Vu, L., Andres, R. J., Bolt, R. M., et al. (2018). Historical (1750–2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the community emissions data system (ceds). *Geoscientific Model Development (Online)*, 11(PNNL-SA-123932).

Hohenegger, C. and Vidale, P. L. (2005). Sensitivity of the european climate to aerosol forcing as simulated with a regional climate model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D6).

Horvath, H., Arboledas, L. A., Olmo, F., Jovanović, O., Gangl, M., Kaller, W., Sanchez, C., Sauerzopf, H., and Seidl, S. (2002). Optical characteristics of the aerosol in spain and austria and its effect on radiative forcing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D19) :AAC–9.

Huneeus, N. (2007). *Assimilation variationnelle d'observations satellitaires dans un modèle atmosphérique d'aérosols*. PhD thesis, Lille 1.

Inness, A., Ades, M., Agusti-Panareda, A., Barré, J., Benedictow, A., Blechschmidt, A.-M., Dominguez, J., Engelen, R., Eskes, H., Flemming, J., et al. (2019). The cams reanalysis of atmospheric composition. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(6) :3515–3556.

IPCC (2013). *Climate change 2013 : the physical science basis : Working Group I contribution to the Fifth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, Royaume-Uni et New York (État de New York), États-Unis d'Amérique.

Israelevich, P., Ganor, E., Alpert, P., Kishcha, P., and Stupp, A. (2012). Predominant transport paths of saharan dust over the mediterranean sea to europe. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D2).

Jacob, D., Petersen, J., Eggert, B., Alias, A., Christensen, O. B., Bouwer, L. M., Braun, A., Colette, A., Déqué, M., Georgievski, G., et al. (2014). Euro-cordex : new high-resolution climate change projections for european impact research. *Regional environmental change*, 14(2) :563–578.

Jacobson, M. Z. (2001). Global direct radiative forcing due to multicomponent anthropogenic and natural aerosols. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D2) :1551–1568.

Jacobson, M. Z. and Streets, D. G. (2009). Influence of future anthropogenic emissions on climate, natural emissions, and air quality. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D8).

Jaeglé, L., Quinn, P., Bates, T., Alexander, B., and Lin, J.-T. (2011). Global distribution of sea salt aerosols : new constraints from in situ and remote sensing observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(7) :3137–3157.

Jiang, L. and O'Neill, B. C. (2015). Global urbanization projections for the shared socioeconomic pathways. *Global Environmental Change*, 42 :193 – 199.

Johansen, A. M., Siefert, R. L., and Hoffmann, M. R. (1999). Chemical characterization of ambient aerosol collected during the southwest monsoon and intermonsoon seasons over the arabian sea : Anions and cations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D21) :26325–26347.

Johnson, B., Shine, K., and Forster, P. (2004). The semi-direct aerosol effect : Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 130(599) :1407–1422.

Junge, C. (1955). The size distribution and aging of natural aerosols as determined from electrical and optical data on the atmosphere. *Journal of Meteorology*, 12(1) :13–25.

Kallos, G., Astitha, M., Katsafados, P., and Spyrou, C. (2007). Long-range transport of anthropogenically and naturally produced particulate matter in the mediterranean and north atlantic : Current state of knowledge. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 46(8) :1230–1251.

Kasper, A. and Puxbaum, H. (1998). Seasonal variation of so2, hno3, nh3 and selected aerosol components at sonnblick (3106 m asl). *Atmospheric environment*, 32(23) :3925–3939.

Kaufman, Y. J., Tanré, D., and Boucher, O. (2002). A satellite view of aerosols in the climate system. *Nature*, 419(6903) :215.

KC, S. and Lutz, W. (2014). The human core of the shared socioeconomic pathways : Population scenarios by age, sex and level of education for all countries to 2100. *Global Environmental Change*, 42 :181 – 192.

Kettle, A., Andreae, M., Amouroux, D., Andreae, T., Bates, T., Berresheim, H., Bingemer, H., Boniforti, R., Curran, M., DiTullio, G., et al. (1999). A global database of sea surface dimethylsulfide (dms) measurements and a procedure to predict sea surface dms as a function of latitude, longitude, and month. *Global Biogeochemical Cycles*, 13(2) :399–444.

Kiehl, J. T., Schneider, T. L., Rasch, P. J., Barth, M. C., and Wong, J. (2000). Radiative forcing due to sulfate aerosols from simulations with the national center for atmospheric research community climate model, version 3. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D1) :1441–1457.

Kinne, S., Schulz, M., Textor, C., Guibert, S., Balkanski, Y., Bauer, S. E., Berntsen, T., Berglen, T. F., Boucher, O., Chin, M., Collins, W., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Feichter, J., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Grini, A., Hendricks, J., Herzog, M., Horowitz, L., Isaksen, I., Iversen, T., Kirkevåg, A., Kloster, S., Koch, D., Kristjansson, J. E., Krol, M., Lauer, A., Lamarque, J. F., Lesins, G., Liu, X., Lohmann, U., Montanaro, V., Myhre, G., Penner, J., Pitari, G., Reddy, S., Seland, O., Stier, P., Takemura, T., and Tie, X. (2006). An aerocom initial assessment - optical properties in aerosol component modules of global models. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 5(5) :8285–8330.

Koch, D. and Del Genio, A. (2010). Black carbon semi-direct effects on cloud cover : review and synthesis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(16) :7685–7696.

Kok, J. F. (2011). A scaling theory for the size distribution of emitted dust aerosols suggests climate models underestimate the size of the global dust cycle. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 108(3) :1016–1021.

Koren, I., Martins, J. V., Remer, L. A., and Afargan, H. (2008). Smoke invigoration versus inhibition of clouds over the amazon. *science*, 321(5891) :946–949.

Korhonen, H., Sihto, S.-L., Kerminen, V.-M., and Lehtinen, K. (2011). Evaluation of the accuracy of analysis tools for atmospheric new particle formation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(7) :3051–3066.

Krekov, G. (1993). Aerosols effects on climate. *Univerity of Arizona Press, USA*, pages 9–72.

Kriegler, E., Edmonds, J., Hallegatte, S., Ebi, K. L., Kram, T., Riahi, K., Winkler, H., and van Vuuren, D. P. (2014). A new scenario framework for climate change research : the concept of shared climate policy assumptions. *Climatic Change*, 122(3) :401–414.

Kriegler, E., O'Neill, B. C., Hallegatte, S., Kram, T., Lempert, R. J., Moss, R. H., and Wilbanks, T. (2012). The need for and use of socio-economic scenarios for climate change analysis : A new approach based on shared socio-economic pathways. *Global Environmental Change*, 22(4) :807 – 822.

Kumar, A., Sudheer, A., and Sarin, M. (2008). Chemical characteristics of aerosols in mabl of bay of bengal and arabian sea during spring inter-monsoon : a comparative study. *Journal of earth system science*, 117(1) :325–332.

Lacressonnière, G., Watson, L., Gauss, M., Engardt, M., Andersson, C., Beekmann, M., Colette, A., Foret, G., Josse, B., Marécal, V., et al. (2017). Particulate matter air pollution in europe in a+ 2 c warming world. *Atmospheric environment*, 154 :129–140.

Lafon, S., Sokolik, I. N., Rajot, J. L., Caquineau, S., and Gaudichet, A. (2006). Characterization of iron oxides in mineral dust aerosols : Implications for light absorption. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D21).

Lamarque, J.-F., Shindell, D. T., Josse, B., Young, P. J., Cionni, I., Eyring, V., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Collins, W. J., Doherty, R., Dalsoren, S., Faluvegi, G., Folberth, G., Ghan, S. J., Horowitz, L. W., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Naik, V., Plummer, D., Righi, M., Rumbold, S. T., Schulz, M., Skeie, R. B., Stevenson, D. S., Strode, S., Sudo, K., Szopa, S., Voulgarakis, A., and Zeng, G. (2013). The atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (accmip) : overview and description of models, simulations and climate diagnostics. *Geoscientific Model Development*, 6(1) :179–206.

Laurent, B., Marticorena, B., Bergametti, G., Léon, J., and Mahowald, N. (2008). Modeling mineral dust emissions from the sahara desert using new surface properties and soil database. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D14).

Lazzari, P., Mattia, G., Solidoro, C., Salon, S., Crise, A., Zavatarelli, M., Oddo, P., and Vichi, M. (2013). The impacts of climate change and environmental management policies on the trophic regimes in the mediterranean sea : Scenario analyses. *Journal of Marine Systems*, 135 :137–149.

Lefevre, F., Brasseur, G., Folkins, I., Smith, A., and Simon, P. (1994). Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D4) :8183–8195.

Lesins, G., Chylek, P., and Lohmann, U. (2002). A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D10) :AAC–5.

Lewis, E. R., Lewis, R., and Schwartz, S. E. (2004). *Sea salt aerosol production : mechanisms, methods, measurements, and models*, volume 152. American Geophysical Union.

Liao, H. and Seinfeld, J. H. (2005). Global impacts of gas-phase chemistry-aerosol interactions on direct radiative forcing by anthropogenic aerosols and ozone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D18).

Liao, H., Seinfeld, J. H., Adams, P. J., and Mickley, L. J. (2004). Global radiative forcing of coupled tropospheric ozone and aerosols in a unified general circulation model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D16).

Lohmann, U. and Feichter, J. (2005). Global indirect aerosol effects : a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3) :715–737.

Macias, D., Garcia-Gorriz, E., Dosio, A., Stips, A., and Keuler, K. (2016). Obtaining the correct sea surface temperature : bias correction of regional climate model data for the mediterranean sea. *Climate dynamics*, 51(3) :1095–1117.

Madec, G. et al. (2017). Nemo ocean engine. *Notes du Pôle de modélisation de l'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL)*.

Maheras, P., Flocas, H., Patrikas, I., and Anagnostopoulou, C. (2001). A 40 year objective climatology of surface cyclones in the mediterranean region : spatial and temporal distribution. *International Journal of Climatology : A Journal of the Royal Meteorological Society*, 21(1) :109–130.

Mahowald, N. M. and Luo, C. (2003). A less dusty future ? *Geophysical Research Letters*, 30(17).

Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F., et al. (2016). Overview of the chemistry-aerosol mediterranean experiment/aerosol direct radiative forcing on the mediterranean climate (charmex/adrimed) summer 2013 campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics, European Geosciences Union*.

Mallet, M., Pont, V., Liousse, C., Gomes, L., Pelon, J., Osborne, S., Haywood, J., Roger, J. C., Dubuisson, P., Mariscal, A., Thouret, V., and Goloub, P. (2008). Aerosol direct radiative forcing over djougou (northern benin) during the african monsoon multidisciplinary analysis dry season experiment (special observation period-0). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D23).

Mallet, M., Roger, J., Despiau, S., Dubovik, O., and Putaud, J. (2003). Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during escompte. *Atmospheric Research*, 69(1) :73 – 97.

Mallet, M., Roger, J.-C., Despiau, S., Putaud, J.-P., and Dubovik, O. (2004). A study of the mixing state of black carbon in urban zone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D4).

Mallet, M., Van Dingenen, R., Roger, J.-C., Despiau, S., and Cachier, H. (2005). In situ airborne measurements of aerosol optical properties during photochemical pollution events. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D3).

Marbà, N., Jordà, G., Agustí, S., Girard, C., and Duarte, C. M. (2015). Footprints of climate change on mediterranean sea biota. *Frontiers in Marine Science*, 2 :56.

Marcos, M. and Tsimplis, M. N. (2008). Comparison of results of aogcms in the mediterranean sea during the 21st century. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 113(C12).

Markakis, K., Valari, M., Colette, A., Sanchez, O., Perrussel, O., Honore, C., Vautard, R., Klimont, Z., and Rao, S. (2014). Air quality in the mid-21st century for the city of paris under two climate scenarios ; from the regional to local scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(14) :7323–7340.

Markowicz, K. M., Flatau, P. J., Ramana, M., Crutzen, P., and Ramanathan, V. (2002). Absorbing mediterranean aerosols lead to a large reduction in the solar radiation at the surface. *Geophysical Research Letters*, 29(20) :29–1.

Marticorena, B. and Bergametti, G. (1995). Modeling the atmospheric dust cycle : 1. design of a soil-derived dust emission scheme. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D8) :16415–16430.

Masson, V., Le Moigne, P., Martin, E., Faroux, S., Alias, A., Alkama, R., Belamari, S., Barbu, A., Boone, A., Bouyssel, F., et al. (2013). The surfexv7. 2 land and ocean surface platform for coupled or offline simulation of earth surface variables and fluxes. *Geoscientific Model Development*, 6 :929–960.

McComiskey, A. and Feingold, G. (2012). The scale problem in quantifying aerosol indirect effects. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(2) :1031–1049.

McConnell, C. L., Formenti, P., Highwood, E. J., and Harrison, M. A. J. (2010). Using aircraft measurements to determine the refractive index of saharan dust during the dodo experiments. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(6) :3081–3098.

Médail, F. (2013). The unique nature of mediterranean island floras and the future of plant conservation. In *Cardona Pons E., Estaún Clarisó I., Comas Casademont M. & Fraga i Arguimbau P.(eds.). Islands and plants : preservation and understanding of flora on Mediterranean islands. 2nd Botanical Conference in Menorca. Recerca*, volume 20, pages 325–350.

Médail, F. and Quézel, P. (2003). Conséquences écologiques possibles des changements climatiques sur la flore et la végétation du bassin méditerranéen. *Bocconea*, 16(1) :397–422.

Mélia, D. S. (2002). A global coupled sea ice–ocean model. *Ocean Modelling*, 4(2) :137–172.

Meloni, D., Di Sarra, A., DeLuisi, J., Di Iorio, T., Fiocco, G., Junkermann, W., and Pace, G. (2003). Tropospheric aerosols in the mediterranean : 2. radiative effects through model simulations and measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D10).

Ménégoz, M., Krinner, G., Balkanski, Y., Boucher, O., Cozic, A., Lim, S., Ginot, P., Laj, P., Gallée, H., Wagnon, P., Marinoni, A., and Jacobi, H. W. (2014). Snow cover sensitivity to black carbon deposition in the himalayas : from atmospheric and ice core measurements to regional climate simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(8) :4237–4249.

Menon, S., Genio, A. D. D., Koch, D., and Tselioudis, G. (2002). Gcm simulations of the aerosol indirect effect : Sensitivity to cloud parameterization and aerosol burden. *Journal of the Atmospheric sciences*, 59(3) :692–713.

Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., et al. (2014). Chimere 2013 : a model for regional atmospheric composition modelling. *Geoscientific model development*, 6(4) :981–1028.

Menut, L., Mailler, S., Siour, G., Bessagnet, B., Turquety, S., Rea, G., Briant, R., Mallet, M., Sciare, J., Formenti, P., et al. (2015). Ozone and aerosol tropospheric concentrations variability analyzed using the adrimed measurements and the wrf and chimere models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(11) :6159–6182.

Mercado, L. M., Bellouin, N., Sitch, S., Boucher, O., Huntingford, C., Wild, M., and Cox, P. M. (2009). Impact of changes in diffuse radiation on the global land carbon sink. *Nature*, 458(7241) :1014.

Michou, M., Nabat, P., Saint-Martin, D., Bock, J., Decharme, B., Mallet, M., Roehrig, R., Séférian, R., S., S., and A., V. (in review). Present-day and historical aerosol and ozone characteristics in cnrm cmip6 simulations. *JAMES*.

Miller, R. and Tegen, I. (1998). Climate response to soil dust aerosols. *Journal of climate*, 11(12) :3247–3267.

Mishchenko, M. I., Travis, L. D., and Mackowski, D. W. (1996). T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles : a review. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 55(5) :535–575.

Monahan, E. C. and Mac Niocaill, G. (2012). *Oceanic Whitecaps : And Their Role in Air-Sea Exchange Processes*, volume 2. Springer Science & Business Media.

Morcrette, J.-J., Boucher, O., Jones, L., Salmond, D., Bechtold, P., Beljaars, A., Benedetti, A., Bonet, A., Kaiser, J., Razinger, M., et al. (2009). Aerosol analysis and forecast in the european centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system : Forward modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D6).

Morgenstern, O., Hegglin, M. I., Rozanov, E., O'Connor, F. M., Abraham, N. L., Akiyoshi, H., Archibald, A. T., Bekki, S., Butchart, N., Chipperfield, M. P., et al. (2017). Review of the global models used within phase 1 of the chemistry-climate model initiative (ccmi). *Geoscientific Model Development*, 10 :639–671.

Moss, R., A Edmonds, J., Hibbard, K., Manning, M., Rose, S., Vuuren, D., R Carter, T., Emori, S., Kainuma, M., Kram, T., Meehl, G., Mitchell, J., Nakicenovic, N., Riahi, K., J Smith, S., Ronald, S., Thomson, A., Weyant, J., and J Wilbanks, T. (2010). The next generation of scenarios for climate change research and assessment. *Nature*, 463 :747–56.

Moulin, C., Lambert, C., Dayan, U., Masson, V., Ramonet, M., Bousquet, P., Legrand, M., Balkanski, Y., Guelle, W., Marticorena, B., et al. (1998). Satellite climatology of african dust transport in the mediterranean atmosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D11) :13137–13144.

Myhre, G., Samset, B. H., Schulz, M., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T. K., Bian, H., Bellouin, N., Chin, M., Diehl, T., et al. (2013). Radiative forcing of the direct aerosol effect from aerocom phase ii simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(4) :1853.

Nabat, P., Solmon, F., Mallet, M., Kok, J., and Somot, S. (2012). Dust emission size distribution impact on aerosol budget and radiative forcing over the mediterranean region : a regional climate model approach. *Atmospheric Chemistry & Physics Discussions*, 12(7).

Nabat, P., Somot, Sand Mallet, M., Sanchez-Lorenzo, A., and Wild, M. (2014). Contribution of anthropogenic sulfate aerosols to the changing euro-mediterranean climate since 1980. *Geophysical Research Letters*, 41(15) :5605–5611.

Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Chiapello, I., Morcrette, J., Solmon, F., Szopa, S., Dulac, F., Collins, W., Ghan, S., et al. (2013). A 4-d climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(5) :1287–1314.

Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech, F., Meloni, D., di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., Sicard, M., Léon, J.-F., and Bouin, M.-N. (2015a). Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol–atmosphere–ocean model over the mediterranean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(6) :3303–3326.

Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Sevault, F., Chiacchio, M., and Wild, M. (2015b). Direct and semi-direct aerosol radiative effect on the mediterranean climate variability using a coupled regional climate system model. *Climate Dynamics*, 44(3) :1127–1155.

Noilhan, J. and Planton, S. (1989). A simple parameterization of land surface processes for meteorological models. *Monthly weather review*, 117(3) :536–549.

Norris, J. R. and Wild, M. (2007). Trends in aerosol radiative effects over europe inferred from observed cloud cover, solar "dimming," and solar "brightening". *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D8).

Oki, T. and Sud, Y. (1998). Design of total runoff integrating pathways (trip)—a global river channel network. *Earth interactions*, 2(1) :1–37.

O'Neill, B. C., Kriegler, E., Riahi, K., Ebi, K. L., Hallegatte, S., Carter, T. R., Mathur, R., and van Vuuren, D. P. (2014). A new scenario framework for climate change research : the concept of shared socioeconomic pathways. *Climatic Change*, 122(3) :387–400.

Oppenheimer, C., Pyle, D. M., and Barclay, J. (2003). Volcanic degassing. In *J. Barclay*. Geological Society of London.

Osborne, S. and Haywood, J. (2005). Aircraft observations of the microphysical and optical properties of major aerosol species. *Atmospheric Research*, 73(3) :173 – 201.

Osborne, S. R., Johnson, B. T., Haywood, J. M., Baran, A. J., Harrison, M. A. J., and McConnell, C. L. (2008). Physical and optical properties of mineral dust

aerosol during the dust and biomass-burning experiment. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D23).

Otto, S., de Reus, M., Trautmann, T., Thomas, A., Wendisch, M., and Borrmann, S. (2007). Atmospheric radiative effects of an in situ measured saharan dust plume and the role of large particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(18) :4887–4903.

Pace, G., Sarra, A. d., Meloni, D., Piacentino, S., and Chamard, P. (2006). Aerosol optical properties at lampedusa (central mediterranean). 1. influence of transport and identification of different aerosol types. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(3) :697–713.

Pandithurai, G., Dipu, S., Dani, K. K., Tiwari, S., Bisht, D. S., Devara, P. C. S., and Pinker, R. T. (2008). Aerosol radiative forcing during dust events over new delhi, india. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D13).

Papadimas, C. D., Hatzianastassiou, N., Matsoukas, C., Kanakidou, M., Mihalopoulos, N., and Vardavas, I. (2012). The direct effect of aerosols on solar radiation over the broader mediterranean basin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(15) :7165–7185.

Parker, D., Wilson, H., Jones, P. D., Christy, J., and Folland, C. K. (1996). The impact of mount pinatubo on world-wide temperatures. *International Journal of Climatology : A Journal of the Royal Meteorological Society*, 16(5) :487–497.

Paulot, F., Paynter, D., Ginoux, P., Naik, V., and Horowitz, L. W. (2018). Changes in the aerosol direct radiative forcing from 2001 to 2015 : observational constraints and regional mechanisms. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(17) :13265–13281.

Péré, J.-C. (2010). *Simulation de l'impact climatique des aérosols en Europe*. PhD thesis, Université Paul Sabatier-Toulouse III.

Pere, J.-C., Mallet, M., Pont, V., and Bessagnet, B. (2011). Impact of aerosol direct radiative forcing on the radiative budget, surface heat fluxes, and atmospheric dynamics during the heat wave of summer 2003 over western europe : A modeling study. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D23).

Pérez, N., Pey, J., Castillo, S., Viana, M., Alastuey, A., and Querol, X. (2008). Interpretation of the variability of levels of regional background aerosols in the western mediterranean. *Science of the total environment*, 407(1) :527–540.

Peuch, V.-H., Amodei, M., Barthet, T., Cathala, M., Josse, B., Michou, M., and Simon, P. (1999). Mocage, modèle de chimie atmosphérique à grande echelle. In *Proceedings of Météo-France workshop on atmospheric modelling*, pages 33–36.

Pey, J., Querol, X., and Alastuey, A. (2010). Discriminating the regional and urban contributions in the north-western mediterranean : Pm levels and composition. *Atmospheric Environment*, 44(13) :1587–1596.

Piazzola, J., Sellegri, K., Bourcier, L., Mallet, M., Tedeschi, G., and Missamou, T. (2012). Physicochemical characteristics of aerosols measured in the spring time in the mediterranean coastal zone. *Atmospheric environment*, 54 :545–556.

Prospero, J. (1979). Mineral and sea salt aerosol concentrations in various ocean regions. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 84(C2) :725–731.

Pruppacher, H. R. and Klett, J. D. (1997). *Microphysics of Clouds and Precipitation : Reprinted 1980*. Springer Science & Business Media.

Quaas, J. and Boucher, O. (2005). Constraining the first aerosol indirect radiative forcing in the lmdz gcm using polder and modis satellite data. *Geophysical research letters*, 32(17).

Quaas, J., Ming, Y., Menon, S., Takemura, T., Wang, M., Penner, J. E., Gettelman, A., Lohmann, U., Bellouin, N., Boucher, O., et al. (2009). Aerosol indirect effects–general circulation model intercomparison and evaluation with satellite data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(22) :8697–8717.

Radnóti, G., Ajjaji, R., Bubnová, R., Caian, M., Cordoneanu, E., Von Der Emde, K., Gril, J., Hoffman, J., Horányi, A., Issara, S., et al. (1995). The spectral limited area model arpege/aladin. *PWPR report series*, 7 :111–117.

Rao, S., Klimont, Z., Smith, S. J., Van Dingenen, R., Dentener, F., Bouwman, L., Riahi, K., Amann, M., Bodirsky, B. L., van Vuuren, D. P., et al. (2017). Future air pollution in the shared socio-economic pathways. *Global Environmental Change*, 42 :346–358.

Reid, J., Koppmann, R., Eck, T., and Eleuterio, D. (2005). A review of biomass burning emissions part ii : intensive physical properties of biomass burning particles. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(3) :799–825.

Rémy, S., Kipling, Z., Flemming, J., Boucher, O., Nabat, P., Michou, M., Bozzo, A., Ades, M., Huijnen, V., Benedetti, A., et al. (2019). Description and evaluation of

the tropospheric aerosol scheme in the european centre for medium-range weather forecasts (ecmwf) integrated forecasting system (ifs-aer, cycle 45r1). *Geoscientific Model Development*, 12(11) :4627–4659.

Riahi, K., van Vuuren, D. P., Kriegler, E., Edmonds, J., O'Neill, B. C., Fujimori, S., Bauer, N., Calvin, K., Dellink, R., Fricko, O., Lutz, W., Popp, A., Cuaresma, J. C., KC, S., Leimbach, M., Jiang, L., Kram, T., Rao, S., Emmerling, J., Ebi, K., Hasegawa, T., Havlik, P., Humpenöder, F., Silva, L. A. D., Smith, S., Stehfest, E., Bosetti, V., Eom, J., Gernaat, D., Masui, T., Rogelj, J., Strefler, J., Drouet, L., Krey, V., Luderer, G., Harmsen, M., Takahashi, K., Baumstark, L., Doelman, J. C., Kainuma, M., Klimont, Z., Marangoni, G., Lotze-Campen, H., Obersteiner, M., Tabeau, A., and Tavoni, M. (2016). The shared socioeconomic pathways and their energy, land use, and greenhouse gas emissions implications : An overview. *Global Environmental Change*, 42 :153 – 168.

Roda, F., Bellot, J., Avila, A., Escarré, A., Piñol, J., and Terradas, J. (1993). Saharan dust and the atmospheric inputs of elements and alkalinity to mediterranean ecosystems. *Water, Air, and Soil Pollution*, 66(3-4) :277–288.

Rogelj, J., Popp, A., V. Calvin, K., Luderer, G., Emmerling, J., Gernaat, D., Fujimori, S., Strefler, J., Hasegawa, T., Marangoni, G., Krey, V., Kriegler, E., Riahi, K., Vuuren, D., Doelman, J., Drouet, L., Edmonds, J., Fricko, O., Harmsen, J., and Tavoni, M. (2018). Scenarios towards limiting global mean temperature increase below 1.5 °c. *Nature Climate Change*, 8.

Roger, J.-C., Mallet, M., Dubuisson, P., Cachier, H., Vermote, E., Dubovik, O., and Despiau, S. (2006). A synergetic approach for estimating the local direct aerosol forcing : Application to an urban zone during the expérience sur site pour contraindre les modèles de pollution et de transport d'emission (escompte) experiment. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D13).

Romero, R. and Emanuel, K. (2013). Medicane risk in a changing climate. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(12) :5992–6001.

Rosenfeld, D., Lohmann, U., Raga, G. B., O'Dowd, C. D., Kulmala, M., Fuzzi, S., Reissell, A., and Andreae, M. O. (2008). Flood or drought : how do aerosols affect precipitation ? *science*, 321(5894) :1309–1313.

Saha, A., Mallet, M., Roger, J. C., Dubuisson, P., Piazzola, J., and Despiau, S. (2008). One year measurements of aerosol optical properties over an urban coastal

site : Effect on local direct radiative forcing. *Atmospheric Research*, 90(2-4) :195–202.

Salas-Mélia, D., Chauvin, F., Déqué, M., Douville, H., Guérémy, J., Marquet, P., Planton, S., Royer, J., and Tyteca, S. (2005). Description and validation of cnrm-cm3 global coupled climate model. *Note de Centre du GMGEC*.

Santese, M., Perrone, M., Zakey, A., Tomasi, F. D., and Giorgi, F. (2010). Modeling of saharan dust outbreaks over the mediterranean by regcm3 : case studies. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(1) :133–156.

Santos, D., Costa, M. J., and Silva, A. M. (2008). Direct sw aerosol radiative forcing over portugal. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(19) :5771–5786.

Satheesh, S. and Moorthy, K. K. (2005). Radiative effects of natural aerosols : A review. *Atmospheric Environment*, 39(11) :2089–2110.

Schaap, M., Loon, M. v., Ten Brink, H., Dentener, F., and Builtjes, P. (2004). Secondary inorganic aerosol simulations for europe with special attention to nitrate. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(3) :857–874.

Schilling, J., Freier, K. P., Hertig, E., and Scheffran, J. (2012). Climate change, vulnerability and adaptation in north africa with focus on morocco. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 156 :12–26.

Schulz, M., Textor, C., Kinne, S., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T., Berglen, T., Boucher, O., Dentener, F., Guibert, S., et al. (2006). Radiative forcing by aerosols as derived from the aerocom present-day and pre-industrial simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12) :5225–5246.

Schütz, L. and Sebert, M. (1986). Mineral aerosols and source identification. *Journal of aerosol science*, 18(1) :1–10.

Séférian, R., Nabat, P., Michou, M., Saint-Martin, D., Voldoire, A., Colin, J., Decharme, B., Delire, C., Berthet, S., Chevallier, M., Sénési, S., Franchisteguy, L., Vial, J., Mallet, M., Joetzjer, E., Geoffroy, O., Guérémy, J.-F., Moine, M.-P., Msadek, R., Ribes, A., Rocher, M., Roehrig, R., Salas-y Mélia, D., Sanchez, E., Terray, L., Valcke, S., Waldman, R., Aumont, O., Bopp, L., Deshayes, J., éthé, C., and Madec, G. (in prep.). Evaluation of cnrm earth-system model cnrm-esm2-1 : role of earth system processes in present-day and future climate. *JAMES*.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (1998). *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (2006). *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley, New York.

Sellegri, K., O'Dowd, C., Yoon, Y., Jennings, S., and de Leeuw, G. (2006). Surfactants and submicron sea spray generation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D22).

Shindell, D. T., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Flanner, M., Jiao, C., Chin, M., Young, P. J., Lee, Y. H., Rotstayn, L., Mahowald, N., Milly, G., Faluvegi, G., Balkanski, Y., Collins, W. J., Conley, A. J., Dalsoren, S., Easter, R., Ghan, S., Horowitz, L., Liu, X., Myhre, G., Nagashima, T., Naik, V., Rumbold, S. T., Skeie, R., Sudo, K., Szopa, S., Takemura, T., Voulgarakis, A., Yoon, J.-H., and Lo, F. (2013). Radiative forcing in the accmip historical and future climate simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(6) :2939–2974.

Skamarock, W. and Klemp, J. (2008). Coauthors, 2008 : A description of the advanced research wrf version 3. ncar tech. Technical report, Note NCAR/TN-4751STR, 113 pp., doi : 10.5065/D68S4MVH.

Slingo, A., Ackerman, T. P., Allan, R., Kassianov, E. I., McFarlane, S. A., Robinson, G., Barnard, J. C., Miller, M., Harries, J., Russell, J., et al. (2006). Observations of the impact of a major saharan dust storm on the atmospheric radiation balance. *Geophysical Research Letters*, 33(24).

Sofiev, M., Soares, J., Prank, M., de Leeuw, G., and Kukkonen, J. (2011). A regional-to-global model of emission and transport of sea salt particles in the atmosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D21).

Solmon, F., Elguindi, N., and Mallet, M. (2012). Radiative and climatic effects of dust over west africa, as simulated by a regional climate model. *Climate Research*, 52 :97–113.

Somot, S., Sevault, F., and Déqué, M. (2006). Transient climate change scenario simulation of the mediterranean sea for the twenty-first century using a high-resolution ocean circulation model. *Climate Dynamics*, 27(7-8) :851–879.

Stevens, B. and Feingold, G. (2009). Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system. *Nature*, 461 :607–13.

Streets, D. G., Shindell, D. T., Lu, Z., and Faluvegi, G. (2013). Radiative forcing due to major aerosol emitting sectors in china and india. *Geophysical Research Letters*, 40(16) :4409–4414.

Sturges, W. T. and Shaw, G. E. (1993). Halogens in aerosols in central alaska. *Atmospheric environment. Part A. General Topics*, 27(17-18) :2969–2977.

Tanré, D., Bréon, F. M., Deuzé, J. L., Herman, M., Goloub, P., Nadal, F., and Marchand, A. (2001). Global observation of anthropogenic aerosols from satellite. *Geophysical Research Letters*, 28(24) :4555–4558.

Tanré, D., Geleyn, J., and Slingo, J. (1984). First results of an advanced aerosol-radiation interaction in ecmwf low resolution global model. *H. E. Gerber and A. Deepak, a. deepak edition.*

Tegen, I., Hollrig, P., Chin, M., Fung, I., Jacob, D., and Penner, J. (1997). Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness : Estimates from model results. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D20) :23895–23915.

Tegen, I., Werner, M., Harrison, S., and Kohfeld, K. (2004). Relative importance of climate and land use in determining present and future global soil dust emission. *Geophysical Research Letters*, 31(5).

Textor, C., Schulz, M., Guibert, S., Kinne, S., Balkanski, Y., Bauer, S., Berntsen, T., Berglen, T., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Feichter, H., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Grini, A., Hendricks, J., Horowitz, L., Huang, P., Isaksen, I., Iversen, I., Kloster, S., Koch, D., Kirkevåg, A., Kristjansson, J. E., Krol, M., Lauer, A., Lamarque, J. F., Liu, X., Montanaro, V., Myhre, G., Penner, J., Pitari, G., Reddy, S., Seland, Ø., Stier, P., Takemura, T., and Tie, X. (2006). Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within aerocom. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(7) :1777–1813.

Thiébault, S. and Moatti, J.-P., editors (2016). *The Mediterranean region under climate change : a scientific update.* Synthèses. IRD ; AllEnvi.

Tompkins, A. (2005). A revised cloud scheme to reduce the sensitivity to vertical resolution. *ECMWF Research Department Memorandum*, 35.

Tummon, F., Solmon, F., Liousse, C., and Tadross, M. (2010). Simulation of the direct and semidirect aerosol effects on the southern africa regional climate during the biomass burning season. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D19).

Twohy, C. H., Petters, M. D., Snider, J. R., Stevens, B., Tahnk, W., Wetzel, M., Russell, L., and Burnet, F. (2005). Evaluation of the aerosol indirect effect in marine stratocumulus clouds : Droplet number, size, liquid water path, and radiative impact. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D8).

Twomey, S. (1974). Pollution and the planetary albedo. *Atmospheric Environment (1967)*, 8(12) :1251–1256.

Tyson, P., Odada, E., Schulze, R., and Vogel, C. (2002). *Regional-Global Change Linkages : Southern Africa*, pages 3–73. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg.

Ulbrich, U., Christoph, M., Pinto, J. G., and Corte-Real, J. (1999). Dependence of winter precipitation over portugal on nao and baroclinic wave activity. *International Journal of Climatology*, 19(4) :379–390.

Uno, I., Eguchi, K., Yumimoto, K., Takemura, T., Shimizu, A., Uematsu, M., Liu, Z., Wang, Z., Hara, Y., and Sugimoto, N. (2009). Asian dust transported one full circuit around the globe. *Nature Geoscience*, 2(8) :557.

Van Damme, M., Clarisse, L., Whitburn, S., Hadji-Lazaro, J., Hurtmans, D., Clerbaux, C., and Coheur, P.-F. (2018). Industrial and agricultural ammonia point sources exposed. *Nature*, 564(7734) :99.

van der Linden, P. and Mitchell, J. (2009). Ensembles : climate change and its impacts : summary of research and results from the ensembles project. *Met Office Hadley Centre, Exeter*.

Van Marle, M. J., Kloster, S., Magi, B. I., Marlon, J. R., Daniau, A.-L., Field, R. D., Arneth, A., Forrest, M., Hantson, S., Kehrwald, N. M., et al. (2017). Historic global biomass burning emissions based on merging satellite observations with proxies and fire models (1750-2015). *Geoscientific Model Development*, 10 :3329–3357.

Van Meijgaard, E., Van Ulft, L., Van de Berg, W., Bosveld, F., Van den Hurk, B., Lenderink, G., and Siebesma, A. (2008). The knmi regional atmospheric climate model racmo version 2.1. *Koninklijk Nederlands Meteorologisch Instituut*, 43.

Van Vuuren, D. P., Edmonds, J., Kainuma, M., Riahi, K., Thomson, A., Hibbard, K., Hurtt, G. C., Kram, T., Krey, V., Lamarque, J.-F., Masui, T., Meinshausen, M., Nakicenovic, N., Smith, S. J., and Rose, S. K. (2011). The representative concentration pathways : an overview. *Climatic Change*, 109(1) :5.

Vogel, B., Vogel, H., Bäumer, D., Bangert, M., Lundgren, K., Rinke, R., and Stanelle, T. (2009). The comprehensive model system cosmo-art–radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(22) :8661–8680.

Voldoire, A., Saint-Martin, D., Sénési, S., Decharme, B., Alias, A., Chevallier, M., Colin, J., Guérémy, J.-F., Michou, M., Moine, M.-P., et al. (2019). Evaluation of cmip6 deck experiments with cnrm-cm6-1. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*.

von Trentini, F., Leduc, M., and Ludwig, R. (2019). Assessing natural variability in rcm signals : comparison of a multi model euro-cordex ensemble with a 50-member single model large ensemble. *Climate Dynamics*, pages 1–17.

Vuuren, D. P. V., Riahi, K., Moss, R., Edmonds, J., Thomson, A., Nakicenovic, N., Kram, T., Berkhout, F., Swart, R., Janetos, A., Rose, S. K., and Arnell, N. (2012). A proposal for a new scenario framework to support research and assessment in different climate research communities. *Global Environmental Change*, 22(1) :21 – 35.

Wakamatsu, S., Utsunomiya, A., Han, J. S., Mori, A., Uno, I., and Uehara, K. (1996). Seasonal variation in atmospheric aerosols concentration covering northern kyushu, japan and seoul, korea. *Atmospheric Environment*, 30(13) :2343–2354.

Wall, C., Zipser, E., and Liu, C. (2014). An investigation of the aerosol indirect effect on convective intensity using satellite observations. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 71(1) :430–447.

Whitby, K. (1978). On the multimodal nature of atmospheric size distribution. In *III Int., Conf. on Nucleation, Leningrad, URSS*.

White, B. R. (1979). Soil transport by winds on mars. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 84(B9) :4643–4651.

Wild, M. (2009). Global dimming and brightening : A review. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D10).

Wild, M., Gilgen, H., Roesch, A., Ohmura, A., Long, C. N., Dutton, E. G., Forgan, B., Kallis, A., Russak, V., and Tsvetkov, A. (2005). From dimming to brightening : Decadal changes in solar radiation at earth's surface. *Science*, 308(5723) :847–850.

Wilks, D. (2006). On "field significance" and the false discovery rate. *Journal of applied meteorology and climatology*, 45(9) :1181–1189.

Xoplaki, E., González-Rouco, J. F., Luterbacher, J., and Wanner, H. (2003). Mediterranean summer air temperature variability and its connection to the large-scale atmospheric circulation and ssts. *Climate dynamics*, 20(7-8) :723–739.

Xu, L. and Penner, J. (2012). Global simulations of nitrate and ammonium aerosols and their radiative effects. *Atmospheric chemistry and Physics*, 12(20) :9479–9504.

Y, M. (2018). *Xios fortran reference guide. IPSL.*

Zakey, A., Giorgi, F., and Bi, X. (2008). Modeling of sea salt in a regional climate model : Fluxes and radiative forcing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D14).

Zanis, P. (2009). A study on the direct effect of anthropogenic aerosols on near surface air temperature over southeastern europe during summer 2000 based on regional climate modeling. In *Annales Geophysicae*, volume 27, pages 3977–3988. Copernicus GmbH.

Zanis, P., Ntogras, C., Zakey, S., Pytharoulis, I., and Karacostas, T. (2012). Regional climate feedback of anthropogenic aerosols over europe using regcm3. *Climate Research*, 52 :267–278.

Zubler, E. M., Folini, D., Lohmann, U., Lüthi, D., Schär, C., and Wild, M. (2011). Simulation of dimming and brightening in europe from 1958 to 2001 using a regional climate model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D18).

Glossaire

ACCMIP Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project
AerChemMIP Aerosol Chemistry Model Intercomparison Project
AEROCOM AEROsol Comparisons between Observations and Models
AERONET AErosol RObotic NETwork
ALADIN Aire Limitée Adaptation Dynamique Développement International
AOD Aerosol Optical Depth (épaisseur optique)
AUTH-Met Aristotle University of Thessaloniki

BC Black Carbon (carbone suie)
BCCR Bjerknes Centre for Climate Research

CDNC Cloud Droplet Number Concentration (concentration en nombre des gouttelettes nuageuses)
CEDS Community Emissions Data System
CERFACS Centre Européen de Recherche et de Formation Avancée en Calcul Scientifique
ChArMEx Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment
CHMI Czech HydroMeteorological Institute
CLMcom Climate Limited-area Modelling Community
CMCC Centre Méditerranéen sur le Changement Climatique
CMIP Climate Model Intercomparison Project
CNRM Centre National de Recherches Météorologiques
CORDEX COordinated Regional climate Downscaling EXperiment
COV Composés Organiques Volatiles
CRP-GL Public Research Centre-Gabriel Lippmann
CUNI Charles University

DD Desert Dust (poussières désertiques)
DHMZ Meteorological and Hydrological Service of Croatia
DJF Décembre-Janvier-Février
DLR German Aerospace Center
DMI Danish Meteorological Institute
DMS Diméthylsulfate
DRF Direct Radiative Forcing (forçage radiatif direct)

ENEA Italian National Agency for New Technologies, Energy and Sustainable Economic Development
ERFaci Effective Radiative Forcing from aerosol–cloud interactions (forçage radiatif dû aux interactions aérosols-nuages)
ERFari Effective Radiative Forcing from aerosol–radiation interactions (forçage radiatif dû aux interactions aérosols-rayonnement)
ETHZ École polytechnique fédérale de Zurich

FPS Flagship Pilot Studies

GERICS Climate Service Center Germany
GUF Université Goethe de Francfort

HMS Hungarian Meteorological Service
HyMeX Hydrological cycle in the Mediterranean eXperiment

IASI Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge
ICTP International Centre for Theoretical Physics
IDL Instituto Dom Luiz
IPSL Institut Pierre-Simon Laplace

JJA Juin-Juillet-Août

KNMI Royal Netherlands Meteorological Institute

LA Laboratoire d'Aérologie
LMDz-INCA Laboratoire de Météorologie Dynamique-INteraction with Chemistry and Aerosols
LWC Liquid Water Content (contenu intégré en eau liquide)

MAM Mars-Avril-Mai
MIO Institut Méditerranéen d'Océanologie
MISR Multi-angle Imaging SpectroRadiometer
MISTRALS Mediterranean Integrated STudies at Regional And Local Scales
MODIS MODerate resolution Imaging Spectroradiometer
MPI-CSC Max Planck Institute Climate Service Center

NAO North Atlantic Oscillation (oscillation Nord-Atlantique)
NOA National Observatory of Athens

OM Organic Matter (carbone organique)

PM Particulate Matter (particules en suspension)

RCM Regional Climate Model (modèle climatique régional)
RCP Representative concentration pathways
RCSM Regional Climate System Model (système climatique de modélisation régionale)
RegCM REGional Climate Model
RF Radiative Forcing (forçage radiatif)
RMIB-UGent Royal Meteorological Institute of Belgium and Ghent University

SMHI Swedish Meteorological and Hydrological Institute
SOA Secondary Organic Aerosol (aérosols organiques secondaires)
SON Septembre-Octobre-Novembre
SRES Special Report on Emissions Scenarios
SS Sea Salt (sels marins)
SSA Single Scattering Albedo (albédo de simple diffusion)
SSP Shared Socio-economic Pathways
SST Sea Surface Temperature (température de surface de la mer)

UCAN University of Cantabria
UCLM Université de Castilla-La Mancha
UHOH University of Hohenheim
UKMO United Kingdom Meteorological Office
UM University of Murcia
UT University of Thessaloniki

WRF Weather Research and Forecasting

Contribution des aérosols aux scénarios climatiques en Méditerranée pour le 21ème siècle à l'échelle régionale

Doctorat de l'Université de Toulouse III - Paul Sabatier
Soutenue le 19/11/2019 à Météo-france, Toulouse, France

Auteur : Thomas DRUGÉ

Directeur de thèse : Marc MALLET
Co-directeur de thèse : Pierre NABAT

Résumé : La région Euro-méditerranéenne est soumise à de fortes charges en aérosols d'origine variée et présentant une forte variabilité spatio-temporelle. Le climat de cette région va en être impacté suite à leur effet direct sur le rayonnement mais aussi à travers leurs effets semi-direct et indirects sur les nuages et la dynamique atmosphérique. Ces travaux de thèse, s'inscrivant dans les programmes de recherche Med-CORDEX et ChArMEx, vont aborder au travers de la modélisation climatique régionale la question de l'impact radiatif direct des différents aérosols sur la période historique, leur évolution entre la période 1971-2000 et la période 2021-2050 ainsi que celle de la sensibilité du climat futur de cette région à ces aérosols.

Mots-clés : Région Euro-Méditerranéenne, modélisation climatique régionale, CMIP6, aérosols, changement climatique

Discipline : Océan, Atmosphère et Surfaces Continentales
Unité de Recherche : Centre National de Recherche Météorologiques
Groupe de Météorologie de Grande Echelle et Climat