



# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

**Délivré par**

*Université Toulouse III - Paul Sabatier*

**Discipline ou spécialité**

*Physique et chimie de l'atmosphère*

---

**Présentée et soutenue par**

*Benjamin AOUIZERATS*

**Le**

*Mercredi 24 novembre 2010*

**Titre**

*Impacts radiatifs des aérosols  
sur la dynamique en couche limite urbaine:  
Application à la campagne CAPITOUL*

---

**JURY**

*M. Serge CHAUZY*

*M. Mathias BEEKMANN*

*M. Jean-Claude ROGER*

*M. Michel LEGRAND*

*M. Bertrand BESSAGNET*

*M. Jean-François LEON*

*M. Laurent GOMES*

*M. Pierre TULET*

Président du jury

Rapporteur

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Co-directeur de thèse

Co-directeur de thèse

---

**Ecole doctorale**

*SDU2E*

**Unité de recherche**

*CNRM-GAME*

**Directeur(s) de Thèse**

*Jean-Louis BRENGUIER*



# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier la direction du Centre National de Recherches Météorologiques de Météo-France de m'avoir fait confiance et de m'avoir accordé une bourse Météo-France qui m'a permis d'effectuer cette thèse de doctorat au sein de l'équipe MNPCA, dans le Groupe de Météorologie Expérimentale et Instrumentale.

Je tiens également à remercier les membres de mon jury de thèse pour leurs nombreuses remarques constructives qui m'ont permis d'améliorer la qualité de ce manuscrit ainsi que de soulever des questionnements scientifiques pertinents.

Je tiens à remercier particulièrement Pierre et Laurent, les chefs qui m'ont permis de mener ce travail à son terme. Grâce à leurs expertises respectives, ils m'ont permis d'entrer dans la communauté des aérosols dans les meilleures conditions possibles sans jamais me sentir perdu. Ils ont également toujours su trouver le juste milieu entre l'indépendance qui me convenait pour effectuer un travail efficace et la disponibilité dont ils ont fait preuve lorsque j'avais besoin d'eux. Enfin, d'un point de vue humain, c'est un plaisir que d'avoir partagé ces trois années à leurs côtés. Finalement, je tenais également à saluer leur audace de m'avoir fait confiance, malgré mon appartenance à la fameuse seconde zone.

Je tenais à remercier grand-chef, alias JLB, pour sa clairvoyance scientifique qui m'a souvent permis de me rendre compte à quel point les sciences atmosphériques sont complexes, et la rigueur scientifique qu'il est nécessaire de garder ainsi que de la vision d'ensemble des phénomènes impliqués.

Merci également à tous les pensionnaires du couloir MNPCA (et à son annexe EUFAR) pour m'avoir permis de travailler dans des conditions plus qu'agréables, en gardant cette extrémité du CRNM à l'abri de la morosité. Ainsi, en oubliant certainement mais qui je l'espère se reconnaîtront, merci à Fred, Thierry, Greg, Jean-Michel, Brigitte, Sandra, et l'EUFAR-team.

Je tiens également à remercier ces quelques acteurs de GMME, qui malgré leur différence d'appartenance ont toujours été disponibles pour m'aider, me conseiller et m'apporter leur expertise scientifique ainsi qu'un regard neuf sur mon sujet d'étude. Ainsi Valéry et Grégoire, merci encore pour votre disponibilité. Merci également à Christine ainsi qu'à toute l'équipe Méso-NH pour leur support.

Je n'oublie bien évidemment pas les irréductibles que j'ai pu côtoyer. Bien sûr, merci à Odile et Vincent, membres du clan très fermé des non-permanents de mnPCA, avec lesquels j'ai pu me délecter des pauses cafés, et qui ont, à de rares occasions je le concède, réussi à me faire émerger

de ma tanière (et même à me faire faire de l'escalade...!) afin de partager de bons moments. Cependant, bien que le souvenir qui prévaudra sera surtout celui d'une compagnie agréable, je tiens à les remercier également pour leur regard scientifique sur mon travail, ainsi que pour leurs conseils de tous les jours sans lesquels ce travail de trois ans aurait été largement altéré. Merci également à Philippe et El Bourdetto, qui sous leurs faux airs de permanents, sont des personnes adorables. Merci enfin à Olivier, qui par son expérience a réussi à me transmettre son amour des Pays-Bas, mon nouveau foyer.

Merci également à ma famille, mes parents ainsi que mon frère, ma soeur et leurs familles pour m'avoir permis de m'aérer l'esprit à Strasbourg, à Lyon ou en Bretagne, ainsi que pour leur éternel soutien.

Pour conclure, au-delà des remerciements, je tiens à dédier cette thèse à Elodie. Merci pour TOUT, tout simplement.

# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction Générale</b>	<b>11</b>
1.1	Contexte général . . . . .	11
1.2	De l'échelle globale à l'échelle locale . . . . .	12
1.3	Objectifs et plan de l'étude . . . . .	13
<b>2</b>	<b>Particules d'aérosol et ville : généralités et interactions</b>	<b>15</b>
2.1	Généralités et origines des aérosols . . . . .	15
2.1.1	Propriétés physico-chimiques des aérosols . . . . .	16
2.1.2	Origine des aérosols . . . . .	19
2.1.3	Quantification des flux d'émission . . . . .	27
2.2	Les processus d'évolution de l'aérosol . . . . .	28
2.2.1	La formation des particules atmosphériques . . . . .	28
2.2.2	Le vieillissement des particules . . . . .	30
2.2.3	Le dépôt . . . . .	31
2.3	Les impacts des aérosols dans l'atmosphère . . . . .	33
2.3.1	Le rôle de l'aérosol dans la formation de CCN et d'IFN . . . . .	33
2.3.2	Les impacts radiatifs des aérosols . . . . .	36
2.3.3	Les enjeux sanitaires . . . . .	39
2.4	Enjeux de l'étude de la météorologie urbaine . . . . .	40
2.4.1	La couche limite urbaine . . . . .	41
2.4.2	L'îlot de chaleur urbain . . . . .	42
2.4.3	Interactions entre la météorologie urbaine et les aérosols atmosphériques . . . . .	44
2.5	Conclusions . . . . .	44

<b>3</b>	<b>Modélisations du système atmosphérique et de l'évolution de l'aérosol</b>	<b>45</b>
3.1	Le modèle atmosphérique Méso-NH . . . . .	46
3.2	Le modèle de surface Surfex . . . . .	46
3.2.1	Le module de ville TEB . . . . .	48
3.2.2	Le module de canopée ISBA . . . . .	50
3.3	Le schéma de rayonnement . . . . .	55
3.4	Le schéma de turbulence . . . . .	55
3.5	Le schéma de chimie gazeuse . . . . .	56
3.5.1	Introduction à Méso-NH-Chimie . . . . .	56
3.5.2	Les précurseurs gazeux et les espèces émises . . . . .	56
3.6	Le schéma d'aérosol . . . . .	57
3.6.1	Description du spectre par la méthode lognormale . . . . .	58
3.6.2	Dynamique des aérosols . . . . .	59
<b>4</b>	<b>Méthode pour le calcul des propriétés optiques des aérosols</b>	<b>65</b>
4.1	Contexte scientifique et objectifs . . . . .	65
4.2	Description du module de calcul des propriétés optiques des aérosols : Premier article . . . . .	66
4.3	Conclusions . . . . .	80
<b>5</b>	<b>La campagne CAPITOUL : analyse de la POI des 3 et 4 juillet 2004</b>	<b>83</b>
5.1	Description de la campagne CAPITOUL . . . . .	83
5.1.1	Les mesures dynamiques . . . . .	84
5.1.2	Les mesures physico-chimiques (gaz et particules) . . . . .	86
5.2	Le cadastre d'émissions . . . . .	89
5.2.1	Généralités . . . . .	89
5.2.2	Méthodologie . . . . .	90
5.2.3	Evaluation quantitative du cadastre . . . . .	95

5.3	Description de la POI : Second article . . . . .	98
5.3.1	Contexte scientifique et objectifs . . . . .	98
5.4	Conclusion . . . . .	116
<b>6</b>	<b>Impact de l'aérosol sur la dynamique urbaine</b>	<b>117</b>
6.1	Introduction et objectifs . . . . .	117
6.2	Impacts de la représentation de la ville sur la dynamique . . . . .	117
6.2.1	Méthodologie . . . . .	118
6.2.2	Résultats . . . . .	118
6.3	Impacts radiatifs des aérosols sur la dynamique urbaine . . . . .	123
6.3.1	Propriétés optiques des aérosols durant CAPITOUL . . . . .	123
6.3.2	Impact des aérosols sur la dynamique urbaine . . . . .	130
6.4	Bilan quantitatif des différents impacts et conclusions . . . . .	136
6.4.1	Bilan quantitatif et comparaison des impacts . . . . .	136
6.4.2	Conclusions . . . . .	137
<b>7</b>	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>141</b>
7.1	Conclusions générales . . . . .	141
7.2	Perspectives . . . . .	143
	<b>Glossaire</b>	<b>145</b>
	<b>Références bibliographiques</b>	<b>147</b>

# Résumé

La modélisation de l'aérosol se pose actuellement comme un point de passage obligé pour la compréhension du système atmosphérique. Son rôle multiple le place au centre de préoccupations environnementales comme météorologiques. Aujourd'hui, de nombreuses études attestent que de par ses propriétés physico-chimiques, l'aérosol a un impact direct complexe sur le bilan radiatif du fait de ses propriétés diffusantes et absorbantes. Il a été également montré qu'il avait un fort impact indirect lorsqu'on considère sa capacité d'activation en gouttelettes nuageuses. Enfin et selon différents rapports de l'Organisation Mondiale de la Santé, l'aérosol fin et ultra fin (particules fines inhalables) pose un vrai problème de santé publique (cancers, asthmes,...). Cette étude s'inscrit dans ce contexte et a pour principal objectif d'étudier les impacts radiatifs de l'aérosol urbain sur la couche limite. L'un des objectifs est d'étudier et d'évaluer les rétroactions des aérosols sur la dynamique de la couche limite urbaine au travers des interactions entre les particules atmosphériques et le rayonnement. La campagne de mesure CAPITOU qui eut lieu entre 2004 et 2005 à Toulouse a servi de cadre à cette étude. Un cadastre d'émissions des aérosols et des gaz a tout d'abord été établi. Puis, une modélisation de l'aérosol urbain, principalement émis par des sources anthropiques (trafic routier et industries), a permis l'étude de l'évolution granulométrique et chimique, ainsi que l'analyse de la distribution spatiale des particules, fortement dépendante de la résolution adoptée. Ensuite, un module permettant de prendre en compte les caractéristiques des aérosols (taille, composition, concentration) calculées en chaque point et à chaque pas de temps lors du calcul des flux radiatifs a été développé. Ce module a permis de calculer les flux radiatifs influencés par la nature absorbante ou diffusante des aérosols. Les impacts sur ces flux et sur la température de la couche limite dans le cas réel de la campagne CAPITOU sont présentés et comparés aux impacts dus à la surface urbaine seule.



# Abstract

Nowaday, aerosol modelling is an absolute interest for the understanding of the complex atmospheric system. The role of aerosol particles is considered crucial for air quality, meteorological and climatical purpose. Several studies show that the aerosol physical and chemical behaviours affect the atmospheric radiative budget by scattering and absorbing the radiative fluxes. Moreover, it has also been shown that the physical and chemical description of the aerosol is necessary to give shape to water droplets. Finally, several reports from the World Health Organisation show that the fine aerosol particles can cause major diseases as cancer or pulmonary diseases, and should be now considered as a public health matter.

This study takes place in this context, and aims at estimating the radiative feedbacks of urban aerosol on the boundary layer. The CAPITOU field experiment, which took place in the city of Toulouse during one year from march 2004 to february 2005, is the framework of a modelling study during a 2-day IOP. First, an emission inventory has been set up to reproduce the gaz and particles emissions. Then, a simulation exercise aims at reproduce the aerosol evolution at the fine scale of 500 m, and the very specific spatial distribution at different resolutions. In order to estimate the impact of aerosol particles on radiation, a radiative module has been developed to compute online the aerosol optical properties depending on the complex aerosol physical and chemical parameters. The radiative fluxes are then impacted by the aerosol scattering and absorbing behaviour, leading to change in the urban dynamics. Those feedbacks on radiative fluxes lead to a change of the boundary layer's temperature. The impacts are also compared to the urban surface impacts.



# Chapitre 1

## Introduction Générale

### Sommaire

---

1.1	Contexte général . . . . .	11
1.2	De l'échelle globale à l'échelle locale . . . . .	12
1.3	Objectifs et plan de l'étude . . . . .	13

---

### 1.1 Contexte général

Depuis le début du XXe siècle, l'industrialisation des pays occidentaux a conduit à une augmentation importante des émissions de particules et de gaz dans l'atmosphère. Ces émissions ont perturbé l'équilibre climatique de la planète Terre, conduisant à une tendance au réchauffement du système global Terre-Atmosphère. Aussi, depuis les années 1980, l'évolution du climat est une préoccupation grandissante pour les gouvernements et les citoyens. La première alerte qui s'est présentée lors de la découverte du trou dans la couche d'ozone a permis une prise de conscience progressive des populations sur l'importance de l'évolution climatique de l'atmosphère. Aujourd'hui, les scénarii climatiques insistent sur l'augmentation des émissions anthropiques des gaz à effet de serre tels que le dioxyde de carbone et le méthane, conduisant à un réchauffement moyen séculaire de la température de la planète de  $0.6 \pm 0.2$  °C (IPCC, 2001). Le dernier rapport de l'IPCC met également en évidence l'importance des autres espèces dont le comportement dans l'atmosphère influe sur l'évolution du climat. Parmi ces constituants, l'eau présente dans l'atmosphère est un des facteurs les plus importants pouvant conduire à un réchauffement ou à un refroidissement selon la forme sous laquelle elle se trouve. Présente sous forme de vapeur d'eau, elle joue un rôle de gaz à effet de serre, conduisant à un réchauffement de la planète. Lorsqu'elle est sous forme liquide dans les nuages de la basse et moyenne atmosphère (cumulus, stratus, ...), elle conduit également à un réchauffement de l'atmosphère, en piégeant une partie

du rayonnement solaire dans l'atmosphère par diffusion, de la même manière que les gaz à effet de serre. Cependant, l'eau présente sous forme solide dans les nuages des hautes couches de l'atmosphères (cirrus, ...) peut conduire à un refroidissement de l'atmosphère en réfléchissant une partie du rayonnement solaire incident.

De même, en sciences atmosphériques, les particules d'aérosol sont devenues un sujet d'intérêt croissant pour un grand nombre de domaines de la physique atmosphérique. Les troisième et quatrième rapports de l'IPCC mettent en évidence le rôle des particules d'aérosol sur le climat, insistant sur les effets potentiellement opposés de ces particules sur le bilan radiatif de la Terre. En effet, les particules atmosphériques constituent également des composants de l'atmosphère interagissant fortement avec le rayonnement, en diffusant, absorbant et émettant une partie du rayonnement solaire et tellurique (effet direct). De plus, les aérosols sont notamment nécessaires à la formation des nuages. Enfin, ils sont également considérés comme des polluants pouvant altérer la santé de l'être humain. Représenter ces aérosols ainsi que leurs interactions apparaît donc comme un enjeu évident. Découlant à la fois de l'activité humaine et de processus naturels, la compréhension de l'évolution et des propriétés de ces aérosols atmosphériques s'avère aujourd'hui comme un aspect essentiel au centre de nombreuses interrogations scientifiques. Cependant, le rôle de ces particules est complexe et très variable selon les conditions dans lesquelles elles se trouvent. Et la compréhension de l'évolution des aérosols et de leurs propriétés doit s'étudier à toutes les échelles.

## 1.2 De l'échelle globale à l'échelle locale

Tout d'abord à l'échelle globale, l'importance des particules d'aérosol dans le système atmosphérique rend leur prise en compte indispensable dans les exercices de projections climatiques. Il est convenu qu'à l'heure actuelle, une des sources d'erreurs pouvant avoir le plus d'impact sur les résultats des projections climatiques est la représentation des nuages. Or, la représentation de l'évolution des nuages et de leurs caractéristiques est fortement dépendante de celle des aérosols via les effets indirects des aérosols. D'autre part, on sait que les aérosols interagissent directement avec les rayonnements solaire et tellurique. De ce fait, il est indispensable de prendre en compte ces interactions aérosol-nuage-rayonnement dans les prévisions du climat futur.

A l'échelle régionale, représenter la dispersion et les caractéristiques des aérosols est capital dans les efforts de prévention et de surveillance de la qualité de l'air. En effet, l'impact potentiellement néfaste des aérosols sur le corps humain fait que ces particules sont aujourd'hui considérées comme des polluants atmosphériques. Les aérosols ainsi que leurs caractéristiques évoluent dans le temps et dans l'espace de façon complexe. En effet, une fois émises, ces par-

ticules atmosphériques évoluent en suivant les vents dominants, formant alors un panache qui peut se transporter à des centaines de kilomètres. Les propriétés des aérosols dans ce panache sont elles aussi évolutives, modifiant ainsi leurs impacts. Selon la situation météorologique, les émissions d'une ville peuvent interagir avec les émissions d'autres villes, pour finalement former un panache dans une autre zone géographique avec une forte concentration en polluants. L'étude de ces panaches et du vieillissement des particules est également dépendante de la représentation des émissions des particules. Outre la pollution issue des feux de forêt et de brousse, la plupart des événements de pollution ont pour sources des zones urbaines à forte concentration de population. C'est pourquoi il est également nécessaire de se placer dans l'échelle locale de la ville pour décrire les émissions des particules atmosphériques de façon précise.

Depuis le début du vingtième siècle, le pourcentage d'êtres humains vivant en zone urbaine n'a cessé d'augmenter, jusqu'à atteindre en 2007 la majorité de la population mondiale. Cette dernière est également en constante augmentation. L'augmentation de la population urbaine s'accompagnant d'une concentration accrue des moyens et équipements dédiés au citoyen, tels que les moyens de transport ou les industries, il est aisé de comprendre que la concentration des particules d'aérosol d'origine anthropique, notamment émises par combustion, est très élevée dans ces zones urbaines.

Il est ainsi également déterminant de pouvoir représenter les évolutions des aérosols à l'échelle urbaine. Néanmoins, cet environnement est complexe : les disparités spatiales présentes dans les villes conduisent à des processus micrométéorologiques difficiles à représenter, et dont l'influence sur les émissions et la dispersion des polluants est capitale. En effet, les phénomènes de météorologie urbaine se rapportent à des échelles caractéristiques de l'ordre de la longueur d'une rue ou de la hauteur d'un bâtiment. De ce fait, la ville, ainsi que l'activité humaine qui lui est associée, représentent aujourd'hui un enjeu crucial pour la représentation et la compréhension des processus clé, déterminant notamment les projections de climat futur ou encore les estimations de pollutions anthropiques. Dans la mesure où les seuils d'alerte de pollution prennent aujourd'hui en compte les concentrations en particules, il est nécessaire de représenter correctement les émissions d'aérosols urbains pour prévoir les épisodes de pollution intense. Adapter la ville au changement climatique passe notamment par l'étude des particules d'aérosol et la compréhension de leur rôle précis dans le système atmosphérique.

### 1.3 Objectifs et plan de l'étude

Dans ce contexte général, ce manuscrit vise à étudier les impacts radiatifs des particules d'aérosol sur l'évolution du climat urbain via la dynamique de la couche limite urbaine.

La première partie de cette thèse rappellera les connaissances scientifiques actuelles sur les particules d'aérosol, leurs sources, leurs processus de formation et d'évolution. Ce chapitre

s'intéressera également à décrire l'environnement urbain d'un point de vue météorologique. Afin de répondre à l'objectif de l'étude, nous avons choisi d'utiliser des outils de modélisation permettant de représenter l'ensemble des processus croisés de la physique et de la chimie atmosphérique en environnement urbain.

De ce fait, le second chapitre décrira les outils de modélisation utilisés pour la représentation des aérosols durant la campagne CAPITOUL. La campagne de mesure CAPITOUL, qui a eu lieu durant une année sur la ville de Toulouse, sert ainsi de cadre d'étude expérimental à ce travail. Toulouse est relativement éloignée des reliefs majeurs et des côtes. La ville n'est donc pas affectée par les phénomènes de brise marine ou de vents catabatiques. Cette situation géographique favorise l'apparition de phénomènes typiquement urbains dans les processus météorologiques. Afin d'étudier les impacts radiatifs des aérosols, il est nécessaire d'estimer de façon précise et continue les propriétés optiques de ces particules. Ainsi, le troisième chapitre de ce manuscrit décrira le développement d'un module de calcul en ligne des propriétés radiatives des aérosols, avec un coût numérique assez faible afin de pouvoir s'intégrer dans tous les modèles atmosphériques.

Le quatrième chapitre présentera la campagne CAPITOUL ainsi que la construction d'un cadastre d'émissions. Cette campagne servant de cadre expérimental à cette étude, l'ensemble des mesures effectuées seront présentées. La construction du cadastre d'émissions nécessaire à l'initialisation des particules primaires et des gaz dans la simulation sera également explicité. Enfin, la situation météorologique durant la période d'intérêt choisie sera décrite, en s'intéressant plus particulièrement aux évolutions des particules et en se demandant s'il existe une forte dépendance entre les concentrations d'aérosols et la représentation de la situation dynamique à différentes échelles.

Enfin, le cinquième et dernier chapitre montrera les résultats de l'étude des impacts radiatifs des aérosols sur la dynamique de la couche limite durant la campagne CAPITOUL. L'application du module de calcul des propriétés optiques des aérosols précédemment décrit sera appliqué à la simulation de la situation durant la campagne CAPITOUL. Les effets directs sur les flux radiatifs, ainsi que les conséquences sur la dynamique de la couche limite seront exposés et comparés aux effets de la surface urbaine sur la dynamique de la couche limite.

# Chapitre 2

## Particules d'aérosol et ville : généralités et interactions

### Sommaire

---

<b>2.1</b>	<b>Généralités et origines des aérosols . . . . .</b>	<b>15</b>
2.1.1	Propriétés physico-chimiques des aérosols . . . . .	16
2.1.2	Origine des aérosols . . . . .	19
2.1.3	Quantification des flux d'émission . . . . .	27
<b>2.2</b>	<b>Les processus d'évolution de l'aérosol . . . . .</b>	<b>28</b>
2.2.1	La formation des particules atmosphériques . . . . .	28
2.2.2	Le vieillissement des particules . . . . .	30
2.2.3	Le dépôt . . . . .	31
<b>2.3</b>	<b>Les impacts des aérosols dans l'atmosphère . . . . .</b>	<b>33</b>
2.3.1	Le rôle de l'aérosol dans la formation de CCN et d'IFN . . . . .	33
2.3.2	Les impacts radiatifs des aérosols . . . . .	36
2.3.3	Les enjeux sanitaires . . . . .	39
<b>2.4</b>	<b>Enjeux de l'étude de la météorologie urbaine . . . . .</b>	<b>40</b>
2.4.1	La couche limite urbaine . . . . .	41
2.4.2	L'îlot de chaleur urbain . . . . .	42
2.4.3	Interactions entre la météorologie urbaine et les aérosols atmosphériques . . . . .	44
<b>2.5</b>	<b>Conclusions . . . . .</b>	<b>44</b>

---

### 2.1 Généralités et origines des aérosols

Dans le contexte des sciences atmosphériques, le terme d'aérosol se réfère à l'ensemble des suspensions solides ou liquides dans le système fluide qui le porte, à l'exception des cristaux

de glace des gouttelettes d'eau liquide. Par abus de langage, on parle généralement d'aérosol pour décrire la particule solide et liquide. De manière plus précise, l'aérosol est défini par l'équilibre thermochimique entre les phases solides, liquide et gazeuses. On définit un aérosol primaire comme étant directement émis, généralement sous forme solide, et un aérosol secondaire comme résultant du passage de gaz en phase particulaire. Cette partie décrit l'ensemble des sources des aérosols dans l'atmosphère, avec dans un premier temps les sources naturelles, puis dans un second temps les sources anthropiques.

### 2.1.1 Propriétés physico-chimiques des aérosols

Une particule d'aérosol est définie par ses propriétés physico-chimiques. Sa taille ainsi que sa forme permettent de caractériser les propriétés physiques de la particule alors que ses compositions chimiques ou minéralogique permettent de caractériser sa nature.

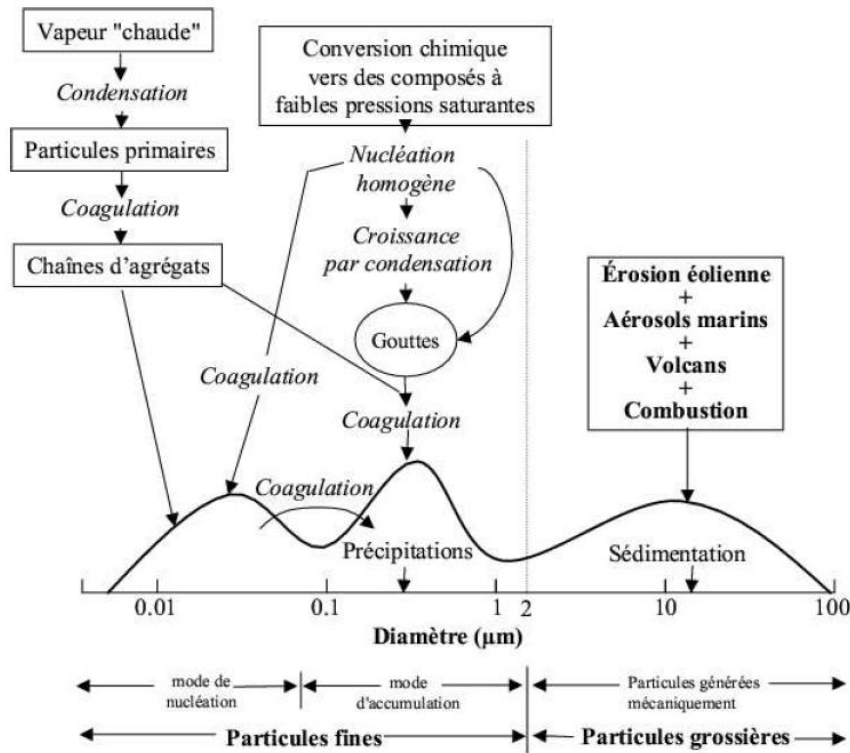
#### Granulométrie des aérosols

Une particule d'aérosol est notamment caractérisée par son diamètre lorsqu'elle est sphérique, ou son diamètre équivalent ainsi que son facteur de forme dans le cas de particules non sphériques. Le spectre granulométrique d'une population de particules permet de définir la concentration en particules en fonction d'un diamètre. La taille d'une particule est l'un des paramètres essentiels déterminant sa durée de vie dans l'atmosphère, pouvant aller de quelques heures à plusieurs semaines. De plus, déterminer la taille d'une particule est essentiel pour déterminer ses impacts sur l'atmosphère, ou encore la façon dont elle va être affectée par les mécanismes de transformation et de vieillissement. La caractérisation modale de l'aérosol a tout d'abord été mise en évidence par *Junge* (1963) avant d'être formalisée par *Whitby* (1978) par une série d'essais en laboratoire révélant trois modes principaux. La figure 2.1 montre les modes de population d'aérosols généralement observés et admis, ainsi que les mécanismes d'évolution des particules selon le mode auquel elles appartiennent.

Il est à noter que la distribution granulométrique d'une population de particules peut s'exprimer en nombre, en surface ou en masse. Les populations d'aérosols rencontrées sont généralement réparties de la façon suivante :

- un mode ultra fin pour lequel le diamètre des particules est inférieur à  $0.1 \mu m$ . Ces particules proviennent essentiellement des processus de conversion gaz-particule, notamment des processus de nucléation et de condensation, lesquels seront détaillés dans la suite de l'étude. Ces particules représentent la majorité des particules dans l'atmosphère, cependant leur diamètre étant très faible, elles ne constituent qu'une faible portion de la masse totale des aérosols dans l'atmosphère.





**Fig. 2.1:** Représentation schématique de la distribution granulométrique des aérosols et de leurs mécanismes de formation et de dépôt. Adaptée de Whitby and Cantrell (1976).

- un mode d'accumulation dont le diamètre des particules varie entre 0.15 et 2  $\mu\text{m}$ . Ces particules proviennent majoritairement du processus de coagulation des particules du mode ultra fin, ainsi que de la condensation de gaz sur des particules préexistantes faisant alors grossir le rayon de la particule. Ces particules représentent une partie significative de la distribution massique et surfacique totale dans l'atmosphère.
- un mode grossier dont le diamètre des particules est supérieur à 2  $\mu\text{m}$ . Ces particules résultent généralement d'une émission directe de la surface, soit de façon naturelle comme par exemple des sels marins ou des poussières désertiques, soit de source anthropique. Ces particules présentant un diamètre élevé, la masse résultante est également importante. Ces particules ont donc une durée de vie dans l'atmosphère relativement courte, de quelques heures à quelques jours, avant de se déposer en surface sous l'effet de la force de gravité. Bien que représentant une proportion importante de la masse totale des aérosols, ce mode ne constitue qu'une petite partie du nombre total de particules.

On peut également noter que le mode ultra fin peut être décomposé en deux modes : le mode d'Aitken dont le diamètre médian varie entre 0.01 et 0.05  $\mu\text{m}$  et le mode de nucléation dont le

diamètre médian varie en 0.001 et 0.01  $\mu m$ .

## Composition chimique des aérosols

La composition chimique des aérosols est elle aussi déterminante dans la caractérisation d'une particule. Les différentes fractions primaires et secondaires sont composées des espèces suivantes :

### – Les composés primaires :

#### – **Carbone suie ou $BC$** (pour Black Carbon) :

Le carbone suie provient de mécanisme de combustion, de carburant fossile ou encore de biomasse par exemple. Le carbone suie est composé de carbone amorphe (50 à 70 %) ainsi que d'hydrocarbures partiellement oxydés et d'aromatiques polycycliques (30 à 50 %). Le carbone amorphe qui compose la majorité du  $BC$  présente une structure identique à celle du graphite, et notamment la propriété d'être insoluble dans l'eau. La formation de  $BC$  intervient durant la combustion tout d'abord par la formation de particules ultrafines par nucléation homogène des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Ces particules ultrafines s'agglomèrent ensuite rapidement pour former des particules plus grosses, présentant une forme irrégulière.

#### – **Carbone organique ou $OC_p$** :

Le carbone organique primaire se fixe généralement sur les particules de carbone suie déjà présentes sous la forme d'un film amorphe. Le carbone organique primaire est principalement constitué d'alcanes ainsi que d'acides organiques.

#### – **Particules minérales et sels de mer** :

Ces particules sont émises dans l'atmosphère par érosion des sols et formation d'embruns marins, et feront l'objet d'un paragraphe dans la suite du présent manuscrit.

### – Les composés secondaires :

#### – **Nitrate ou $NO_3^-$** :

Les nitrates sous forme de particules résultent principalement de la condensation du gaz précurseur  $NO_2$  par oxydation sous présence de radicaux libres  $OH$  en acide nitrique  $HNO_3$ . Cette réaction chimique est largement favorisée durant la journée, mais peut également avoir lieu la nuit avec une vitesse de réaction beaucoup plus lente. Les nitrates peuvent également être produits la nuit par oxydation du  $NO_2$  par l'ozone ( $O_3$ ) conduisant à la formation des radicaux  $NO_3$ , qui peuvent potentiellement former du  $N_2O_5$  en réagissant avec le  $NO_2$ . Le  $N_2O_5$  peut ensuite se transformer en nitrate par hydrolyse. Enfin, les nitrates peuvent également se former en région maritime par l'oxydation du

diméthylsulfure.

– **Sulfate ou  $SO_4^{2-}$**  :

Tout comme les nitrates, les sulfates sous forme particulaire résultent principalement de la condensation du gaz précurseur  $SO_2$  par oxydation sous présence de radicaux libres  $OH$  en acide sulfurique  $H_2SO_4$ .

– **Ammonium ou  $NH_4^+$**  :

L'ammonium résulte également de l'oxydation du gaz précurseur  $NH_3$ . Une fois émis, ce gaz peut s'associer avec l'acide sulfurique ou avec l'acide nitrique pour former du sulfate ou du nitrate d'ammonium. Ce sont sous ces deux formes que les nitrates, sulfates et ammonium sont généralement présents sous forme particulaire.

– **Carbone organique secondaire ou SOA (Secondary Organic Aerosol)** :

Les SOA sous forme particulaire résultent de l'oxydation des précurseurs gazeux ou COV (pour composés organiques volatiles). Ces composés peuvent être d'origine anthropique et être présents sous forme d'alcane ou d'alcène à longue chaîne résultant du mécanisme de combustion, ou bien d'origine biogénique, formés à partir du monoterpène, de l'isoprène ou de composés oxygénés (*Pun et al.*, 2000).

Il existe une grande incertitude quant aux modes de formation et à l'origine de ces composés (*Gelencser et al.*, 2000; *Zappoli et al.*, 1999). Cette formation peut se produire en phase aqueuse (*Aumont et al.*, 2000) tout comme en phase gazeuse (*Griffin et al.*, 1999).

Il existe de nombreux autres constituants chimiques présents dans les particules d'aérosol, tels que le calcium (d'origine cristalline) ou le chlorure de sodium (d'origine marine). Ici ne sont explicités que les principaux constituants des aérosols, lesquels seront notamment retenus pour la suite de l'étude.

### 2.1.2 Origine des aérosols

Dans cette partie sont énumérées les principales sources d'aérosols, primaires et secondaires, naturelles et anthropiques.

## Les poussières minérales

Les poussières minérales sont définies comme les particules présentes en surface assez légères pour pouvoir rester en suspension dans l'atmosphère. Leur présence en suspension est généralement causée par un vent de force nécessaire afin que le processus physique d'arrachement des particules au sol puisse se produire. Les poussières désertiques sont les particules les plus courantes dans cette catégorie. Ces particules dont la taille lors de l'arrachement est relativement grosse (diamètre supérieur à  $50\mu m$ ) sont dans un premier temps transportées horizontalement en surface par saltation. Les particules ainsi déplacées utilisent l'énergie cinétique générée par la friction du vent pour casser les agrégats présents en surface et former des particules fines qui sont libérées dans l'atmosphère (*Gillette et Goodwin.*, 1974; *Gomes et al.*, 1990; *Alfaro et Gomes*, 2001). Ce processus est appelé sandblasting et constitue le processus d'émission de ces poussières minérales.

### Granulométrie des poussières minérales

Les aérosols désertiques présentent une distribution massique dont le diamètre médian équivalent (correspondant au maximum de concentration) se situe entre 1 et  $10\mu m$ . Les observations d'aérosols collectés au Texas (*Patterson et Gillette*, 1977), en Algérie (*Gomes et al.*, 1990) et au Tadjikistan (*Gomes et Gillette*, 1992) présentent chacune une distribution monomodale dont les diamètres médians valent respectivement  $6.5\mu m$ ,  $3\mu m$  et  $2.5\mu m$ . Les travaux en soufflerie de *Alfaro et Gomes* (2001) mettent en évidence une distribution tri-modale dont les valeurs des diamètres médians sont respectivement  $1.5\mu m$ ,  $6.7\mu m$  et  $14.2\mu m$ . Cependant, *Crumeyrolle et al.* (2010) ont dernièrement mis en évidence, grâce à l'instrumentation aéroportée utilisée durant la campagne AMMA, la présence d'un mode fin centré sur 80 nm dominant la distribution en nombre. La présence de ce mode fin peut également être observé dans les résultats des inversions des stations du réseau AERONET présentes notamment en Afrique depuis une dizaine d'année et fournissant la distribution en taille des particules. Bien que la masse résultante soit inférieure à la masse des modes plus gros, ce nouveau mode fin de poussières désertiques est à considérer à la fois pour la distribution en nombre et la distribution en masse.

### Composition chimique des poussières minérales

Les poussières désertiques sont composées d'un mélange de minéraux tels que le quartz, les argiles et les feldspaths. Le type de minéraux composant l'aérosol dépend directement de la nature des sols en surface générant les poussières. Le silicium, l'aluminium et le fer composent la majorité des minéraux présents dans les sols désertiques. Ainsi, le tableau 2.1 présente la composition moyenne des sols désertiques présentée par *Warner* (1988). Cependant on peut voir également dans le tableau 2.1 que ces poussières atmosphériques sont appauvries en silicate mais enrichies en aluminium et en fer par rapport à la composition des sols.

Elément	Concentration massique des sols (%)	Concentration massique des poussières désertiques (%)
Si	33.00	22.00
Al	7.13	12.60
Fe	3.80	5.70
Ca	1.37	1.00
K	1.36	3.40
Mg	0.63	1.60
Na	0.63	0.60
Ti	0.45	0.70
Mn	0.085	
Cr	0.02	
V	0.01	
Co	0.0008	

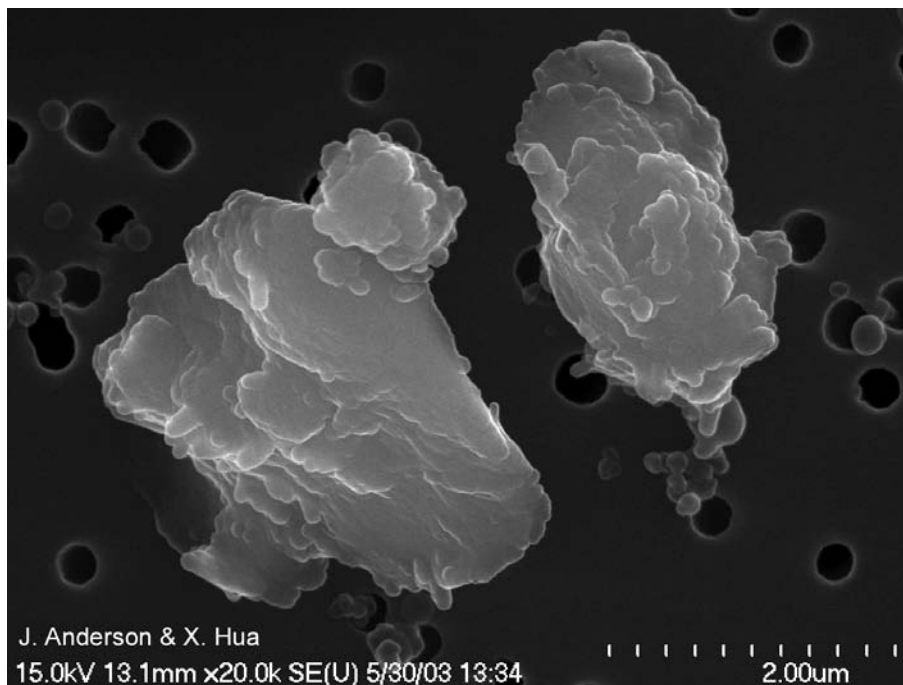
**Tab. 2.1:** *Composition chimique moyenne des sols désertiques (Warner, 1988) de la planète, et composition des poussières désertiques (Gomes, 1990) collectées à El Abiod, Algérie.*

La figure 2.2 montre une particule d'origine désertique observée au microscope électronique. On remarque notamment que la particule présente une forme cristalline non sphérique, et que sa taille est supérieure à  $1 \mu m$ .

### Les aérosols marins

Les particules appelées sels marins sont des aérosols provenant des embruns océaniques. Lors de vents forts (supérieurs à  $9 m.s^{-1}$ ), le déferlement des vagues conduit à la projection de gouttelettes d'eau dans l'atmosphère (Blanchard et Woodcock, 1957; Schulz et al., 2004). Après l'évaporation de ces gouttelettes d'eau, les sels marins originalement contenus dans les gouttelettes restent en suspension dans l'atmosphère. L'efficacité de production et donc la concentration de ces aérosols dans l'atmosphère dépend fortement de la vitesse du vent. Ainsi, O'Dowd et al. (1997) et Shinokuza et al. (2004) montrent qu'entre un régime de vent modéré et un régime de vents forts (ici supérieurs à  $10 m.s^{-1}$ ), la concentration en nombre de sels marins varie de  $10 cm^{-3}$  à  $50 cm^{-3}$ .

### Granulométrie des aérosols marins



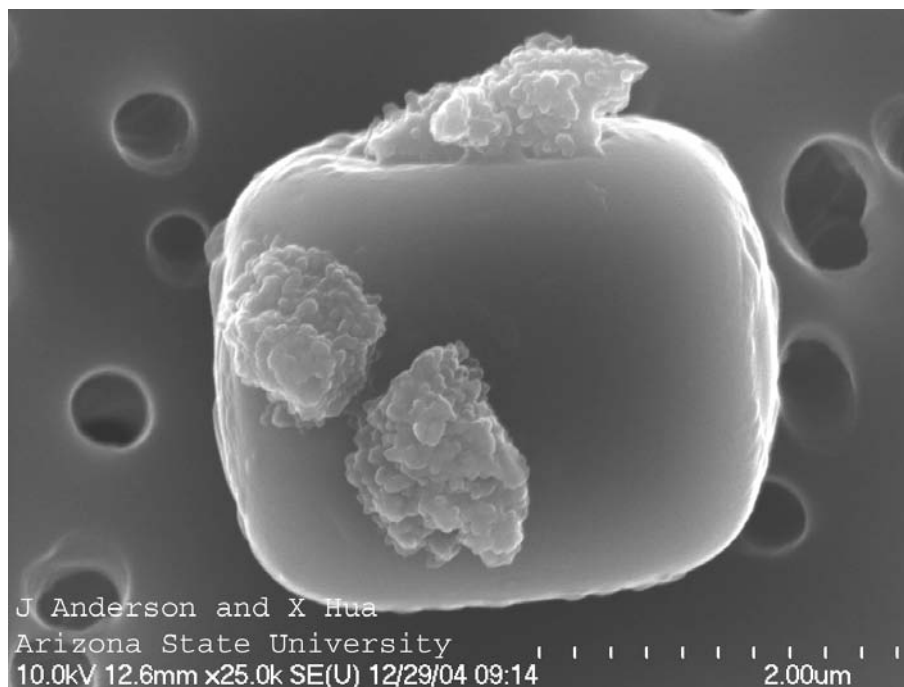
**Fig. 2.2:** Poussière désertique composée de silicate d'aluminium. (J. Anderson, communication personnelle)

Alors que la taille des sels marins s'étend sur l'ensemble du spectre des particules (0.05-10  $\mu\text{m}$ ), la majorité des particules se trouve dans un premier mode centré sur 0.5  $\mu\text{m}$ , puis dans un second mode plus fin centré sur 0.1  $\mu\text{m}$  (Campuzano-Jost et al., 2003). De très fines particules dont le diamètre médian est centré sur 0.025  $\mu\text{m}$  et résultant de vagues se brisant sur les côtes peuvent également être observées (Clarke et al., 2003). Enfin, les plus grosses particules dont le diamètre médian est de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$  résultent du processus d'écrêtement qui a lieu lors de vents très forts (supérieur à 15  $\text{m.s}^{-1}$ ). Cependant, ces particules n'atteignent généralement pas la côte car leur durée de vie est courte car inversement proportionnelle à leur masse.

### Composition chimique des aérosols marins

Les particules atmosphériques de sels marins sont composées de la même matière que celle dissoute dans l'eau des océans. Cependant la composition des particules peut varier selon la taille de celles-ci. Ainsi, Bardouki et al. (2003) montrent que les particules submicroniques sont principalement composés de sulfate ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) et d'ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ), alors que les particules supermicroniques sont majoritairement composées de nitrates ( $\text{NO}_3^-$ ), de chlorures ( $\text{Cl}^-$ ), de sodium ( $\text{Na}^+$ ) et de calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ). De plus, les particules issues des océans de l'hémisphère nord sont fortement influencées par la pollution anthropique présente sous ces latitudes. En

effet, *Heintzenger et Covert* (2000) ont montré que la pollution continentale est omniprésente dans la composition des océans. Ainsi, de nombreuses études ont également mis en évidence la présence de composés inorganiques et organiques, insolubles et solubles (*Novakov et al.*, 1997; *Middlebrook et al.*, 1998; *Murphy et al.*, 1998; *Cavalli et al.*, 2004; *O'Dowd et al.*, 2004). Par exemple, des composés de plancton peuvent se retrouver en suspension dans l'atmosphère sous forme de composés organiques primaires.



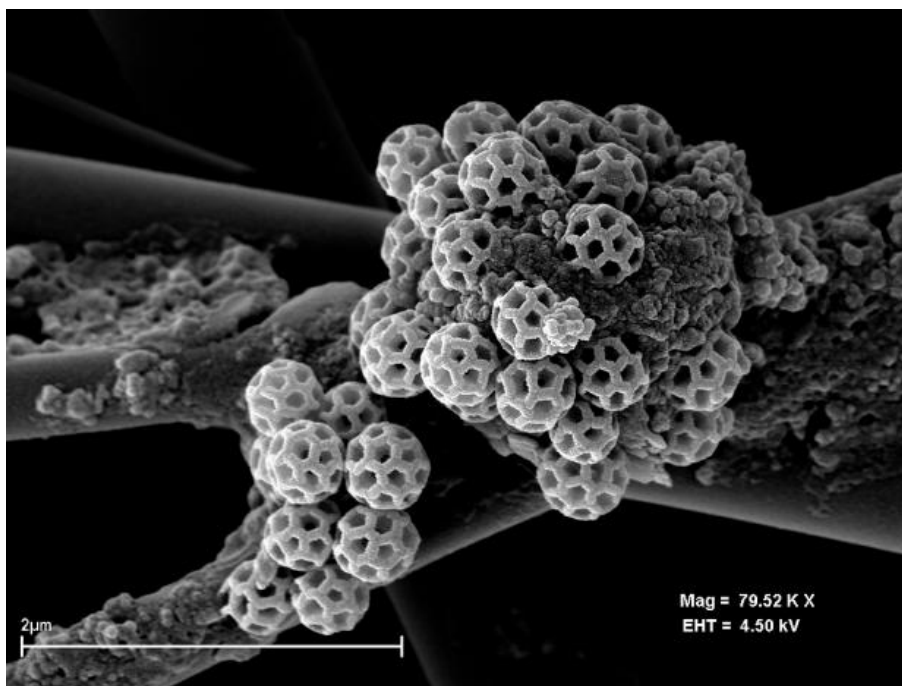
**Fig. 2.3:** Particule de sel marin observée par *J. Anderson et X. Hua* au microscope électronique. (*J. Anderson, communication personnelle*)

La figure 2.3 nous montre une particule de sel marin observée au microscope électronique. On remarque que la particule observée est un agrégat de plusieurs types de composés chimiques. La composition chimique massique de cette particule est dominée par la présence de sodium et de chlorure.

### Les aérosols biogéniques

Les aérosols biogéniques sont des aérosols émis par les surfaces végétales de la planète. Ces particules peuvent être d'origine primaire ou secondaire. Les aérosols secondaires sont issus de la condensation de composés organiques volatiles (COV) émis sous forme gazeuse par la végétation, généralement par les forêts. Ces gaz sont émis lors de la photosynthèse et sont d'autant plus

importants que la température et la concentration en  $CO_2$  sont élevées. Ces émissions gazeuses sont majoritairement composées d'isoprène et de monoterpène, et représentent la plus grande source d'émissions de COV à l'échelle de la planète.



**Fig. 2.4:** *Particules primaires biogéniques (pollen) observées au microscope électronique.*

La figure 2.4 illustre un agrégat de particules biogéniques primaires. Ces particules organiques primaires présentant une forme sphérique et une taille submicronique sont des pollens en suspension.

### Granulométrie des aérosols biogéniques

Les aérosols biogéniques sont classés à la fois comme des espèces primaires et secondaires résultant de la condensation de gaz. De ce fait, la taille des particules varie sur l'ensemble du spectre. En effet, les aérosols biogéniques secondaires peuvent condenser soit sur des particules très fines en cas d'atmosphère pure, soit sur des particules plus grosses lorsque les gaz sont présents dans des conditions de pollution continentale par exemple.

### Composition chimique des aérosols biogéniques

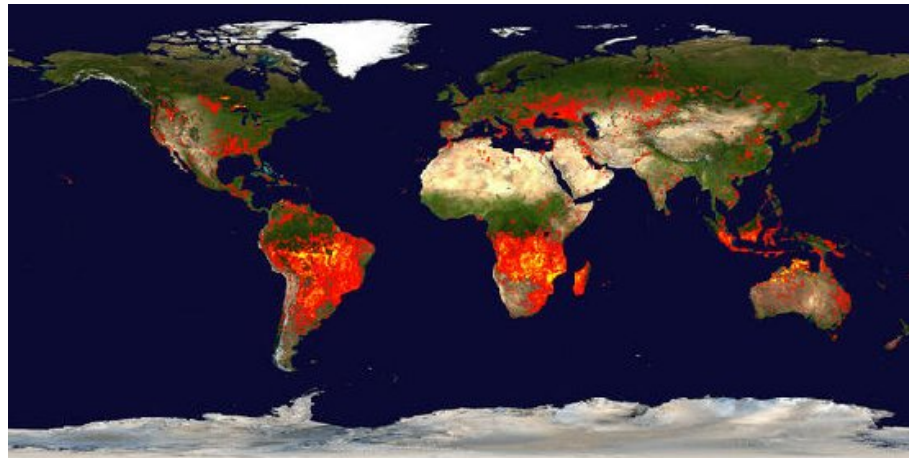
Les particules d'aérosol biogéniques primaires sont issues majoritairement du soulèvement de



pollen dans l'atmosphère. Les particules d'aérosol biogéniques secondaires résultent des produits de l'oxydation de composés organiques volatiles, généralement les monoterpènes et l'isoprène, et appartiennent ainsi à la catégorie des aérosols secondaires organiques (SOA). Ces particules biogéniques sont donc classées dans la catégorie des espèces organiques.

### Les aérosols issus de feux de biomasse

Le phénomène de combustion de biomasse végétale est très courant sur l'ensemble de la planète et particulièrement dans les zones tropicales. L'ensemble de ces feux, quelle que soit leur origine, libère des gaz ainsi que des particules issues du processus de combustion (*Crutzen et Andreae, 1990*). L'origine de ces feux est à la fois naturelle (impact de foudre) et anthropique. En effet, le feu est utilisé dans ces zones à la fois comme principale source d'énergie domestique (cuisine et chauffage), comme moyen de transformer les zones de végétation en zones agricoles par défrichage, ou encore afin de se débarrasser des résidus agricoles non désirables. Ces particules sont d'origine primaire. Selon *Lindesay et al. (1996)*, 87% des 11 à 18 Tg émis chaque année par les feux de biomasse proviennent des zones tropicales, pour lesquelles le continent africain représente 65% des émissions (*Hao et al., 1990*). La figure 2.5 illustre l'ensemble des feux de biomasse mesurés par MODIS durant le mois de septembre 2006. Nous remarquons que la majorité de ces feux interviennent dans l'hémisphère sud, et plus spécifiquement dans les zones subéquatoriales de l'Afrique, de l'Indonésie ou encore de l'Amérique du Sud.



**Fig. 2.5:** Carte des feux de biomasses observées durant le mois de septembre 2006 par l'instrument MODIS. Courtesy NASA/GSFC

### Granulométrie des aérosols issus de feux de biomasse

Un grand nombre d'études montrent que les aérosols issus de feux de biomasse présentent simultanément un mode d'accumulation ainsi qu'un mode grossier. En effet, *Le Canut et al.* (1996) montrent un mode d'accumulation centré sur  $0.15 \mu m$  et un mode grossier centré sur  $3 \mu m$  durant la campagne SAFARI. *Haywood et al.* (2003a,b) mettent en évidence un mode d'accumulation centré sur  $0.25 \mu m$  et un mode grossier centré sur  $10 \mu m$  à partir des données acquises durant la campagne SAFARI-2000. De nombreuses autres études résumées par *Andreae et Crutzen* (1997) montrent une distribution monomodale centrée entre  $0.1$  et  $0.2 \mu m$ .

### Composition chimique des aérosols issus de feux de biomasse

La combustion de biomasse génère des aérosols principalement composés d'espèces carbonées (*Andreae et Crutzen*, 1997; *Cachier*, 1998; *Mayol-Bracero et al.*, 2002; *Sinha et al.*, 2003; *Reid et al.*, 2005; *Decesari et al.*, 2006; *Fuzzi*, 2007). De plus *Andreae* (1991) estime que plus de 86% de la masse totale de *BC* annuellement émise sur l'ensemble de la planète provient des feux de biomasse.

### Aérosols volcaniques

Les aérosols volcaniques résultent des éruptions ayant lieu sur la planète. Ces éruptions projettent des particules ainsi que des gaz dans l'atmosphère. Ainsi, les aérosols volcaniques peuvent être à la fois d'origine primaire et secondaire. La taille des aérosols volcaniques varie fortement. En effet, les aérosols primaires émis ont une taille généralement supérieure à  $1 \mu m$  alors que les aérosols secondaires issus de la condensation des gaz volcaniques ont une taille généralement inférieure à  $0.1 \mu m$ . Les aérosols volcaniques sont généralement composés de soufre, de sulfates mais également de nombreux autres éléments chimiques selon la nature et l'origine de l'éruption, présents sous forme solide lors des éruptions ainsi que sous forme gazeuse, entraînant la formation d'aérosols secondaires sulfurés et sulfatés.

### L'aérosol anthropique

L'essor de l'industrialisation durant le 20<sup>e</sup> siècle a conduit à une augmentation exponentielle des émissions de gaz et d'aérosols anthropiques. Ces particules résultent majoritairement du phénomène de combustion nécessaire à la production d'énergie, dans les processus industriels, pour le chauffage domestique ou encore dans le transport routier.

Comme pour combustions se produisent lors de feux de biomasse, les combustions urbaines émettent des particules organiques ainsi que du carbone suie (*BC*). La combustion émet également des gaz, et notamment des COV précurseurs d'aérosols organiques secondaires (SOA).

Outre le processus de combustion, l'agriculture est également une source d'émissions d'aérosols principalement secondaires et majoritairement composés d'ammonium. Ainsi, l'activité humaine s'étalant sur un grand nombre de domaines, plusieurs types de particules sont émises en révélant des propriétés de taille ainsi que de composition chimique très différentes.

Tout d'abord, les aérosols anthropiques urbains sont généralement constitués de très fines particules formées près des sources d'émission. Cependant, les villes concentrant un grand nombre d'émissions à la fois particulaires et gazeuses, ces particules fines émises ont généralement une durée de vie suffisamment importante pour évoluer rapidement, d'abord par coagulation, c'est-à-dire par agglomération de plusieurs particules fines pour en former une nouvelle, ensuite par condensation de gaz précurseurs sur les particules émises, faisant ainsi grossir ces dernières. Pratiquement, il est généralement admis que les particules primaires urbaines émises sont concentrées sur les villes et sont relativement fines, puis grossissent dans le panache de la ville en suivant les vents dominants, grâce à la condensation de gaz également émis en ville, et se transforment en espèces secondaires.

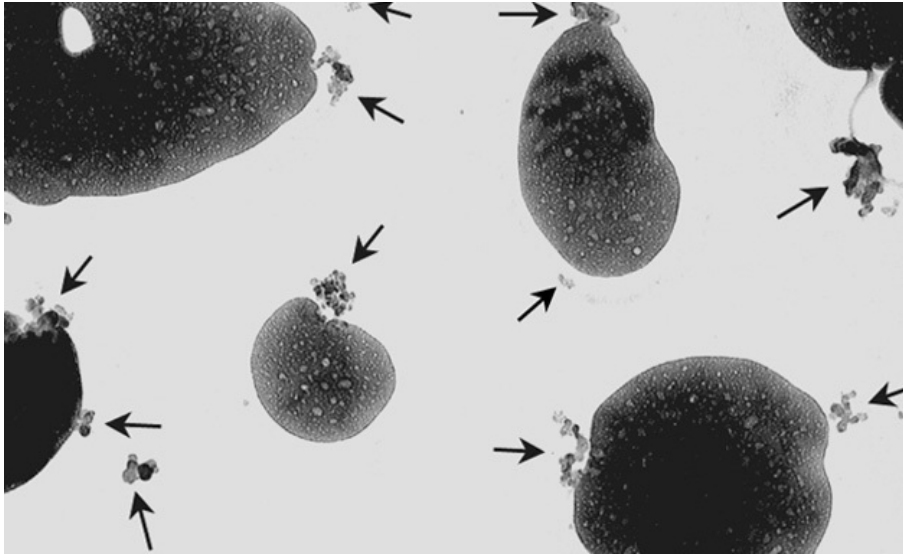
La composition chimique des aérosols urbains est également complexe et fortement évolutive. Ainsi, les particules fines émises par la combustion qu'elle soit domestique, industrielle ou due au trafic routier, sont de type primaire et donc composées de carbone suie et de carbone organique. Les gaz issus des mêmes processus de combustion, notamment les composés organiques volatiles, ainsi que les espèces inorganiques telles que les nitrates, ammonium ou sulfates condensent ainsi sous l'effet de la photochimie, généralement entre quelques kilomètres jusqu'à une centaine de kilomètres de la zone d'émission.

La figure 2.6 illustre la complexité des particules urbaines, lesquelles concentrent un grand nombre de types de particules, primaires et secondaires. Sur cette figure sont représentées des espèces sulfatées ainsi que des particules de carbone suie. On remarque que la particule résultant de cet agrégat n'est ni sphérique, ni homogène.

### 2.1.3 Quantification des flux d'émission

Le tableau 2.2 résume l'ensemble des sources d'aérosols et renseigne sur la quantité massique émise chaque année (IPCC, 2001).

Ce tableau nous renseigne sur l'origine des particules ainsi que sur la masse globale émise pour chaque type. On remarque notamment que les sources d'aérosols d'origine naturelle émettent environ vingt fois plus de particules que les sources anthropiques. Cet important écart est principalement dû aux sels de mers ainsi qu'aux poussières désertiques qui représentent respectivement 60% et 30% de la masse totale annuelle des particules émises dans l'atmosphère. Cependant, les émissions naturelles sont principalement des grosses particules, dominant ainsi



**Fig. 2.6:** Particules de sulfate pointées par les flèches, collées aux particules primaires de carbone suie. (J. Anderson, communication personnelle)

les émissions massiques totales. Or les émissions anthropiques sont principalement concentrées dans le mode fin, et représente ainsi une part bien plus importante des émissions totales en nombre de particules.

## 2.2 Les processus d'évolution de l'aérosol

Une fois émises, les particules d'aérosol ont une durée de vie variant de quelques heures à plusieurs jours. De sa formation à son dépôt, l'aérosol évolue à la fois chimiquement et physiquement.

### 2.2.1 La formation des particules atmosphériques

La formation de particules dans l'atmosphère peut se faire de deux manières différentes. Ces particules peuvent tout d'abord être émises directement de la surface (origine primaire). Comme décrits dans la section précédente, quasiment tous les types de surfaces peuvent émettre des aérosols. La seconde possibilité pour la formation d'aérosol est de se créer directement dans l'atmosphère par transformation de gaz en particules (origine secondaire). Ce dernier processus est appelé nucléation.

SOURCES	H.Nord	H.Sud	Global	Min-Max
<b>AEROSOLS SECONDAIRES</b>				
<b>Sulfate</b>				
issus de $SO_2$ anthropique	106	15	122	69-214
issus des gaz biogéniques	25	32	57	28-118
issus de $SO_2$ volcanique	14	7	21	9-48
<b>Nitrate</b>				
issus des $NO_X$ anthropique	12,4	1,8	14,2	9,6-19,2
issus des $NO_X$ biogéniques	2,2	1,7	3,9	1,9-7,6
<b>Carbone organique</b>				
issu des COV anthropiques	0,15	0,45	0,6	0,3-1,8
issu des COV biogéniques	8,2	7,4	16	8-40
<b>AEROSOLS PRIMAIRES</b>				
<b>Matière organique</b>				
Feux de biomasse	28	26	54	45-80
Combustibles fossiles	28	0,4	28	10-30
Débris biogéniques	-	-	56	0-90
<b>Carbone suie</b>				
Feux de biomasse	2,9	2,7	5,7	5-9
Combustibles fossiles	6,5	0,1	6,6	6-8
Poussières industrielles	-	-	100	40-130
<b>Sels de mer</b>				
	1440	1900	3340	2000-6000
<b>Poussières désertiques</b>				
	1800	349	2150	1000-3000
<b>Total sources anthropiques</b>	153	18	271	134-403
<b>Total sources naturelles</b>	3320	2326	5704	3097-9393

**Tab. 2.2:** Estimation des émissions annuelles (Tg/an) des principaux types d'aérosols pour l'année 2000 (IPCC, 2001).

### La nucléation des aérosols

Lorsque la pression de vapeur partielle des espèces gazeuses est supérieure à la pression de vapeur saturante, le processus de nucléation peut se produire. Ce processus permet aux espèces gazeuses de passer en phase liquide directement (nucléation homogène) et suit la théorie de *Wilemski* (1984). La nucléation homogène se produit généralement lorsque la concentration

en support de condensation, c'est-à-dire en particules, est très inférieure à la concentration en précurseurs gazeux. Les principaux acteurs de la nucléation homogène dans l'atmosphère sont les sulfates (*Kulmala et al.*, 1998). En effet, la pression de vapeur saturante nécessaire au passage de gaz en particule d'acide sulfurique  $H_2SO_4$  est très faible (de l'ordre de  $10^{-6}hPa$ ). En théorie, très peu de connaissances sont disponibles dans la littérature au sujet de la nucléation organique (*Kulmala et al.*, 2004).

### 2.2.2 Le vieillissement des particules

Une fois les particules d'aérosol présentes dans l'atmosphère, de nombreux processus affectent leur évolution. Que ce soit l'agglomération entre plusieurs particules ou les transferts de gaz à particules, la taille ainsi que la composition chimique des particules évoluent à chaque instant.

#### La coagulation

Lorsque deux particules d'aérosol entrent en contact, il peut se produire le processus de coagulation, c'est-à-dire que les deux particules s'agrègent pour n'en former plus qu'une nouvelle. Ainsi, dans une population d'aérosols, le processus de coagulation modifie le nombre total de particules ainsi que les tailles de ces dernières. Différents types de coagulation existent, suivant différentes lois. Ainsi, on distinguera la coagulation brownienne (*Seinfeld et Pandis*, 2006), faisant intervenir le mouvement brownien des particules, et les autres types de collisions entraînées par les mouvements dus à d'autres forces, telles que la gravité, les forces hydrodynamiques ou encore électriques.

On distingue deux types de mécanismes de coagulation :

- La coagulation intramodale intervient lorsque deux particules d'un même mode entrent en collision. La nouvelle particule créée présentera ainsi un volume équivalent à la somme des deux précédents volumes. Le diamètre équivalent de la nouvelle particule est alors plus élevé. Dans certains cas, la nouvelle particule peut appartenir au mode immédiatement supérieur.
- La coagulation intermodale intervient lorsque les particules entrant en contact sont de tailles différentes.

#### La condensation

Le processus de condensation est un processus discontinu. En effet, pour engendrer un changement de phase, la pression partielle doit dépasser une valeur critique qui dépend fortement des

propriétés de surface de l'aérosol. Les particules sont alors généralement considérées en équilibre avec leur environnement, et à chaque instant l'équilibre thermodynamique des particules avec les gaz environnants dicte les transferts entre gaz et particules.

Cet équilibre est considéré entre les phases liquides, gazeuses et solides de la particule. Dans ce calcul d'équilibre interviennent alors les tensions de surface ainsi que les réactions de dissociation, notamment des acides.

## La sédimentation

Lorsque la particule d'aérosol atteint un certain poids et que les conditions météorologiques ne permettent plus à la particule de rester en suspension dans l'atmosphère, cette dernière sédimente. Ce processus est gouverné par la diffusion brownienne ainsi que par l'expression de la vitesse de chute de l'aérosol (*Tulet et al.*, 2005, 2006) :

$$Dp = \left( \frac{kT}{6\pi\nu\rho_{air}r_p} \right) C_c \quad (2.1)$$

Avec  $D_p$  la diffusion brownienne,  $k$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température ambiante,  $\nu$  la vitesse cinématique de l'air,  $\rho_{air}$  la densité de l'air,  $r_p$  le rayon de la particule, et  $C_c$  le coefficient de glissement.

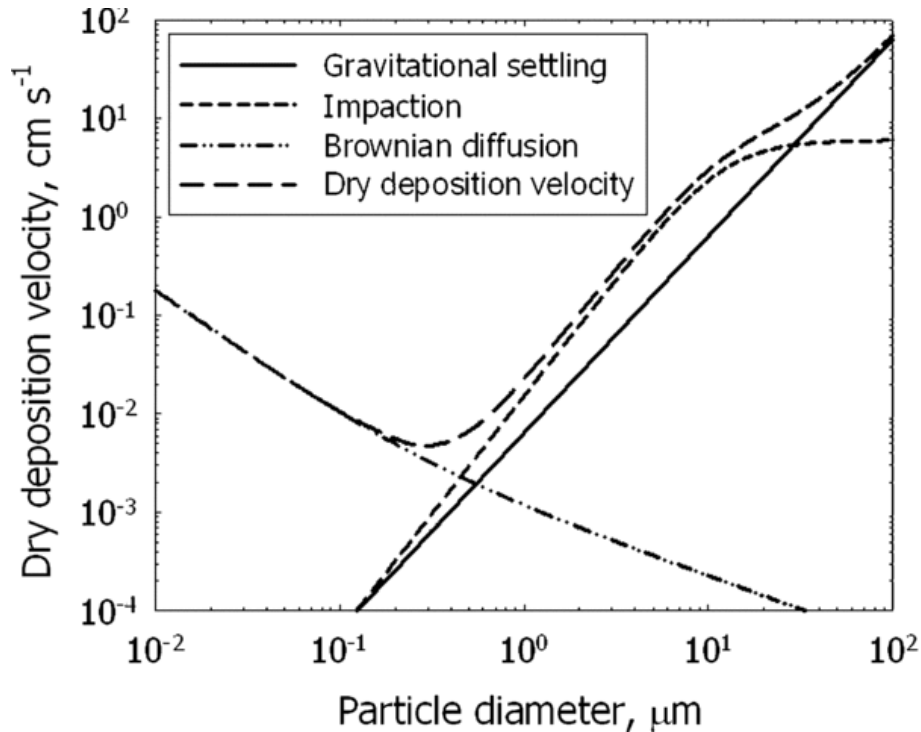
$$V_g = \left( \frac{2g}{9\nu} \frac{\rho_p}{\rho_{air}r_p^2} \right) C_c \quad (2.2)$$

Avec  $V_g$  la vitesse de sédimentation,  $g$  l'accélération gravitationnelle, et  $\rho_p$  la densité de la particule.

### 2.2.3 Le dépôt

Les particules en suspension dans l'atmosphère finissent leur vie d'aérosol en se déposant sur la surface. Ce processus peut résulter soit d'une sédimentation aboutissant à atteindre naturellement la surface, on parlera dans ce cas de dépôt sec ou d'impaction ; soit d'une capture par collection par une gouttelette d'eau qui atteint la surface, dans ce cas on parlera de dépôt humide. La vitesse de dépôt est déterminante pour évaluer la quantité de particules lessivées de l'atmosphère. Cette vitesse est directement fonction de la taille des particules.

La figure 2.7 nous montre la vitesse de dépôt en fonction du diamètre de la particule pour une surface liquide dans une soufflerie, ainsi que les trois composantes desquelles elle résulte. Nous remarquons que les vitesses maximum de dépôt sont pour des particules avec un diamètre



**Fig. 2.7:** Composantes de la vitesse de dépôt pour une surface donnée. (Bae et al., 2009)

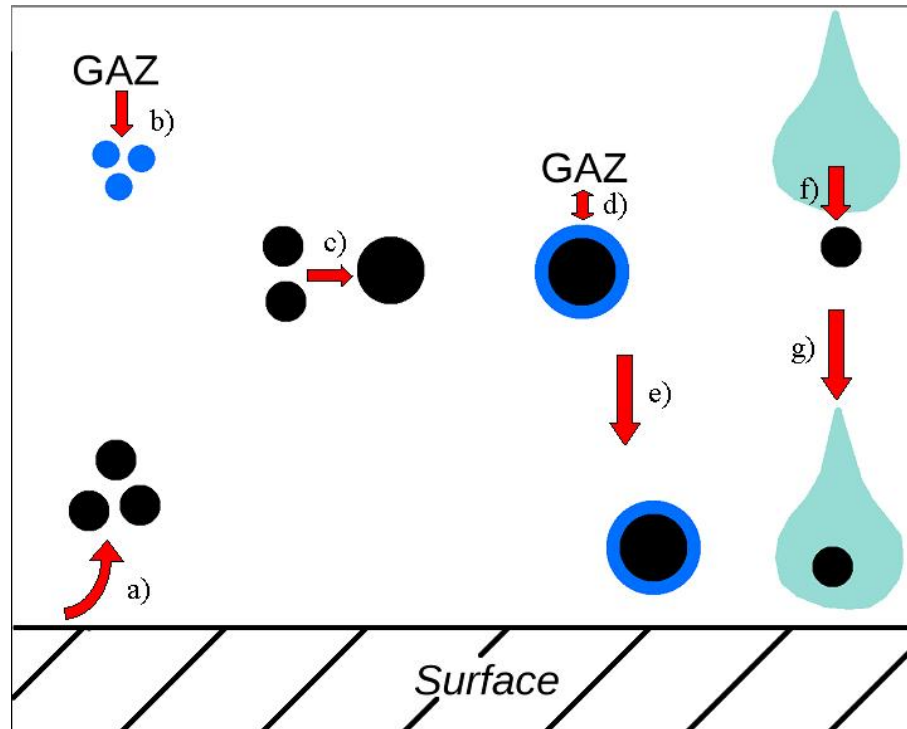
important, rendant leur poids et ainsi leur attraction par la gravité importante. Cependant, on peut également noter que les particules ayant un rayon inférieur à  $0.1 \mu m$  présentent également des vitesses de dépôt importantes. Ceci est dû au fait que les très petites particules sont transportées de manière efficace par la diffusion brownienne à travers la couche quasi-laminaire.

Le type de surface joue également un rôle prépondérant pour déterminer la vitesse de dépôt. Les différentes forces qui composent la résultante de la vitesse de dépôt sont représentées sur la figure 2.7. On remarque ainsi que pour les particules dont le diamètre est inférieur à  $0.1 \mu m$ , seule la composante brownienne est présente, alors qu'elle devient négligeable pour les diamètres supérieurs à  $1 \mu m$  pour lesquels la force gravitationnelle est prépondérante. En effet, chaque type de surface présente une résistance aérodynamique ainsi qu'une résistance quasi-laminaire propre qui influe directement sur l'écoulement et donc sur la vitesse de dépôt. La résistance aérodynamique représente la résistance au transfert des particules au travers de la couche de surface. La résistance quasi-laminaire est associée au transfert à travers la couche quasi-laminaire atmosphérique directement au contact de la surface, et est partiellement contrôlée par la diffusion moléculaire.

La figure 2.8 illustre l'ensemble des processus présentés ci-dessus intervenant dans le cycle



de vie d'une particule d'aérosol atmosphérique, de la formation au dépôt des particules.



**Fig. 2.8:** a : Emissions ; b : nucléation ; c : coagulation ; d : condensation ; e : sédimentation/dépôt sec ; f : collection ; g : dépôt humide.

## 2.3 Les impacts des aérosols dans l'atmosphère

### 2.3.1 Le rôle de l'aérosol dans la formation de CCN et d'IFN

La formation de gouttelettes d'eau nuageuse s'effectue dans l'atmosphère par le processus de nucléation homogène. Ce processus implique qu'une sursaturation suffisante soit présente afin que la phase gaz puisse condenser en eau liquide. Cependant, la sursaturation nécessaire à ce phénomène dépend fortement de la présence ou non de corps étranger comme support de nucléation. En effet, *Pruppacher et Klett (1997)* mettent en évidence que sans la présence de corps étranger comme support, la sursaturation nécessaire à la nucléation homogène est de plusieurs centaines de pourcents. Dans l'atmosphère, la présence de particules d'aérosol leur permet de jouer le rôle de support de condensation, et ainsi de réduire la valeur de sursaturation nécessaire pour la nucléation. Ce sont donc autour de ces particules d'aérosol que l'eau se condense formant alors des gouttelettes d'eau. Ces particules sont alors appelées noyaux de

condensation nuageuse ou CCN. Cependant, toutes les particules dans l'atmosphère ne sont pas capables de jouer ce rôle. Le paramètre d'hygroscopicité permet de définir le pouvoir de la particule à servir de noyau de condensation nuageuse, et ainsi à déterminer le caractère hygrophile et hygrophobe d'une particule.

### Propriétés hygroscopiques des aérosols

Les particules dont les propriétés physico-chimiques leur permettent de servir de noyau de condensation nuageuse peuvent être activées en gouttelettes d'eau, c'est-à-dire que la vapeur d'eau présente dans l'atmosphère condense sur la particule. L'hygroscopicité d'une particule caractérise son pouvoir à devenir un noyau de condensation nuageuse, et rassemble ainsi ses caractéristiques physiques et chimiques. Le phénomène d'activation est décrit par la théorie de Köhler. Köhler (1936) décrit la sursaturation  $S$  (en %) nécessaire à la particule pour s'activer. Elle s'exprime de la manière suivant :

$$S = \frac{A}{r} - \frac{B}{r^3} \quad (2.3)$$

avec le terme  $A$  représentant l'effet Kelvin (contrôlé par la taille de la particule) et le terme  $B$  l'effet Raoult (contrôlé par la composition chimique de la particule).

En explicitant les termes  $A$  et  $B$ , l'équation peut s'écrire :

$$S = \frac{2\sigma M_w}{RT\rho_l r} - \frac{3n_s M_s}{4\pi\rho_l r^3} \quad (2.4)$$

Avec  $M_s$  : masse molaire du soluté en  $g.mol^{-1}$  ;  $M_w$  : masse molaire de l'eau en  $g.mol^{-1}$  ;  $n_s$  : nombre de moles du soluté ;  $\sigma$  : tension de surface ;  $\rho_l$  : masse volumique du soluté constitutif du noyau de condensation ;  $r$  : rayon de la gouttelette.

L'équation 2.4 faisant intervenir, entre autres termes, à la fois la masse molaire du soluté et le rayon de la gouttelette, il en vient que la composition chimique tout comme la taille de la particule influent directement sur le caractère hygroscopique de la particule.

La figure 2.9 illustre l'évolution de la sursaturation en fonction du diamètre de la particule humide pour différents composés. On remarque notamment que le CCN doit atteindre un certain diamètre critique pour s'activer.

### Les interactions entre les particules d'aérosol et les nuages

Les particules d'aérosol étant nécessaires à la formation des gouttelettes nuageuses, de nombreuses études menées dès les années 1950 se sont intéressées à l'impact de la concentration

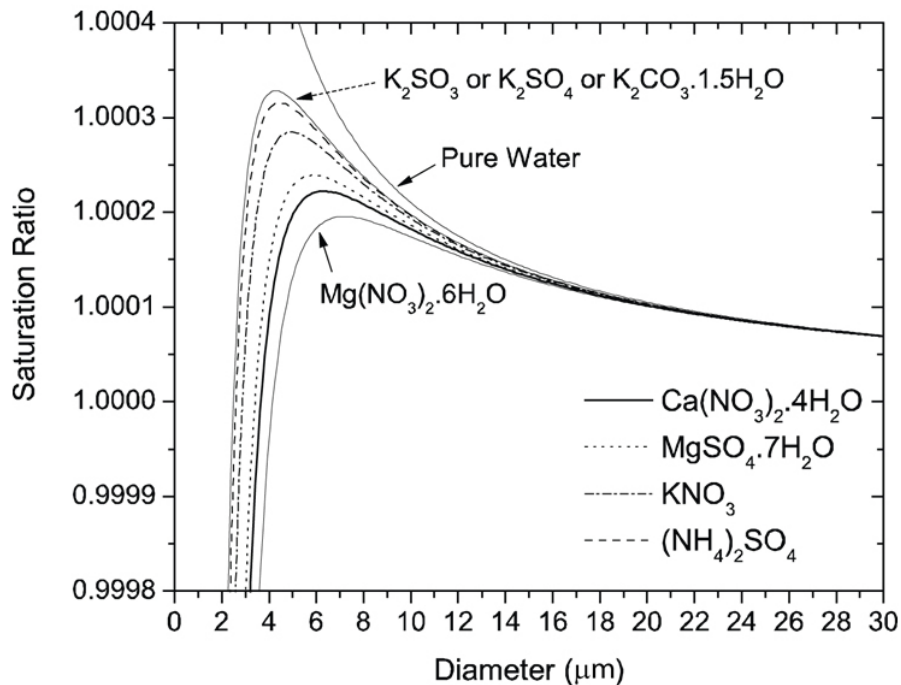


Fig. 2.9: Courbes de Köhler pour différents composés chimiques.

des aérosols sur la vie et le comportement des nuages. Ainsi, *Gunn et Phillips* (1957); *Squires* (1958); *Squires et Twomey* (1961); *Warner* (1968); *Warner et Twomey* (1967) ont montré que l'augmentation de la concentration de particules CCN, observée notamment aux abords de zones urbaines fortement développées ou dans des panaches de feux de biomasses, conduisait à l'augmentation de la concentration des gouttelettes nuageuses, et pouvait ainsi modifier la stabilité des nuages ainsi que leur efficacité de précipitation. Plus tard, *Twomey* (1977) a montré que l'augmentation de la concentration des gouttelettes nuageuses conduisait à une augmentation de l'albédo du nuage, et ce à contenu intégré en eau condensée équivalent. Ce phénomène est aujourd'hui connu comme étant le premier effet indirect de l'aérosol. Depuis, de nombreux travaux s'intéressent à l'étude précise des interactions entre les concentrations de particules et l'évolution des nuages. *Sandu et al.* (2008) ont notamment montré que le cycle diurne du stratocumulus est fortement affecté par l'augmentation de la concentration en particules et que la réponse du nuage à l'augmentation de la concentration d'aérosols n'est pas monotone.

Les interactions entre aérosols et nuages sont donc nombreuses et complexes, chacune nourrissant des rétroactions difficiles à quantifier en pratique. Elles sont résumées en figure 2.10.

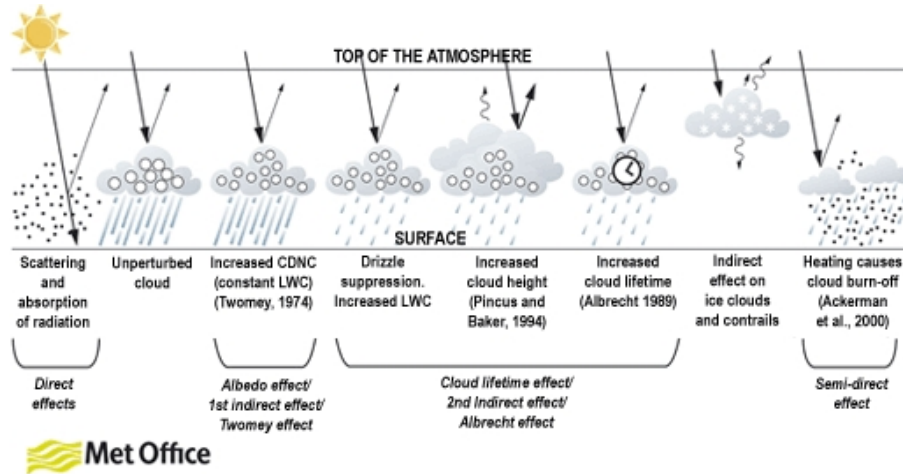


Fig. 2.10: Résumé de l'ensemble des interactions entre particules d'aérosol et nuages. Courtesy Met Office

### Cas des aérosols agissant comme IFN (Ice Forming Nuclei)

Les particules d'aérosols jouent également un rôle lors de la formation des cristaux de glace. Bien que les études et les observations soient moins importantes que pour les noyaux de condensation nuageuse, il est cependant admis que la formation des cristaux de glace, qui peut intervenir à l'issue de différents mécanismes, nécessite presque toujours la présence de particules. La formation de cristaux de glace peut cependant avoir lieu sans la présence de particules lorsque la température est inférieure à  $-40\text{ }^{\circ}\text{C}$  (Hobbs, 1995).

Ces particules pouvant servir de noyaux de glace (IFN pour Ice Freezing Nuclei) sont majoritairement différentes des CCN. En effet, il est admis que les poussières désertiques ainsi que les particules issues de la combustion dans leur état primitif peuvent jouer le rôle d'IFN alors que ces mêmes particules ont un potentiel CCN peu élevé dans l'atmosphère (Seinfeld et Pandis, 2006).

### 2.3.2 Les impacts radiatifs des aérosols

Les particules d'aérosol présentes dans l'atmosphère interagissent avec le rayonnement solaire et tellurique à tout moment. Ces interactions sont gouvernées par les propriétés optiques des aérosols dépendant directement de la taille et la forme ainsi que de la composition chimique et minérale de la particule. Ainsi, selon leur taille et leur composition chimique, les particules vont absorber ou diffuser une quantité variable du rayonnement émis ou réémis. Selon la localisation de l'aérosol et sa capacité à absorber ou diffuser le rayonnement (Johnson, 2003; Johnson et al., 2004), l'impact radiatif aura deux effets. Il aura pour conséquence soit de refroidir une certaine

hauteur de couche de l'atmosphère si les particules sont par exemple concentrées au-dessus de la couche limite de mélange et ont la capacité de réfléchir le rayonnement solaire (effet direct), soit de réchauffer la couche limite si les particules sont concentrées dans la couche limite et qu'elles ont la capacité d'absorber le rayonnement solaire. Les impacts de ces réchauffements ou refroidissements de la couche atmosphérique peuvent conduire à la dissipation totale d'une couche nuageuse (on parle alors dans ce cas d'effet semi-direct), ou à un refroidissement de plusieurs degrés de la couche limite dans le cas d'épisodes sévères mettant en jeu l'effet direct des aérosols comme lors des épisodes de tempêtes de poussières désertiques (*Tulet et al., 2008; Mallet et al., 2009*).

Pour estimer les propriétés optiques des aérosols, il est nécessaire de définir son indice de réfraction complexe. Cet indice composé d'une partie réelle et d'une partie imaginaire dépend directement de la composition chimique de l'aérosol, et s'exprime alors de la façon suivante :

$$k = k_r - i.k_i \quad (2.5)$$

Dans la réalité, les aérosols étant composés d'un mélange de plusieurs espèces différentes, il existe plusieurs méthodes pour calculer l'indice de réfraction équivalent d'une particule.

Pour les particules considérées sphériques, et une fois l'indice de réfraction de la particule défini, les propriétés optiques des aérosols sont généralement calculées selon soit la théorie de Mie (*Mie, 1908*), soit par la théorie de Rayleigh. Le choix dépend de la taille de la particule par rapport à la longueur d'onde. Ainsi, lorsque les particules sont très petites et lorsque le paramètre de forme défini par  $\frac{\pi \cdot d}{\lambda}$ , avec  $d$  le diamètre de la particule et  $\lambda$  la longueur d'onde, est très inférieur à 1, il convient d'appliquer la théorie de Rayleigh. Dans ce cas les interactions entre les particules et le rayonnement sont du même type que les interactions entre les gaz et le rayonnement. Lorsque la taille des particules est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde, il convient d'appliquer la théorie de Mie.

Les propriétés optiques relatives à une particule sont définies par les efficacités d'absorption, de diffusion et d'extinction respectivement notées  $Q_{abs}$ ,  $Q_{dif}$ ,  $Q_{ext}$ , ainsi que par la fonction de phase. Ces propriétés optiques répondent à la loi :

$$Q_{ext} = Q_{abs} + Q_{dif} \quad (2.6)$$

Afin de prendre en compte ces propriétés optiques dans les modèles, trois paramètres sont généralement préférés pour des raisons de simplicité et de coût de calcul : le coefficient d'extinction  $b$  en  $m^{-1}$ , l'albédo de diffusion simple  $SSA$  et le facteur d'asymétrie  $g$ . Ils sont déduits des efficacités de la façon suivante :

$$b(\lambda) = \int_0^{+\infty} Q_{ext}(r, \lambda) \pi r^2 n(r) dr \quad (2.7)$$

$$SSA(\lambda) = \frac{\int_0^{+\infty} Q_{sca}(r, \lambda) \pi r^2 n(r) dr}{\int_0^{+\infty} Q_{ext}(r, \lambda) \pi r^2 n(r) dr} \quad (2.8)$$

$$g(\lambda) = \frac{\int_0^{+\infty} r^2 n(r) Q_{sca}(r, \lambda) g'(r, \lambda) dr}{\int_0^{+\infty} r^2 n(r) Q_{sca}(r, \lambda) dr} \quad (2.9)$$

avec  $n(r)$  la distribution granulométrique de la population d'aérosols et  $g'$  déduit du premier polynôme de Legendre solution de la fonction de phase  $\langle \cos\theta \rangle$ .

Ces trois paramètres sont très utiles pour caractériser les propriétés optiques des aérosols car ils renseignent sur leurs propriétés à diffuser ou absorber le rayonnement à une longueur d'onde donnée.

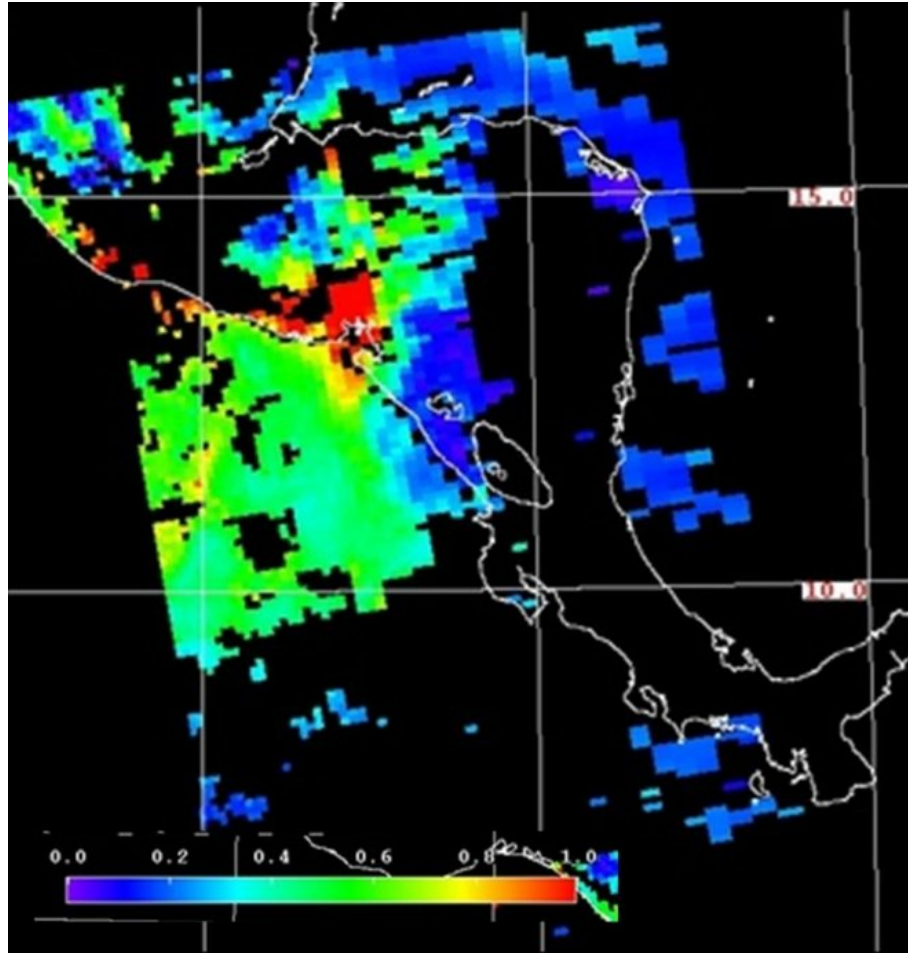
Ainsi, le coefficient d'extinction caractérise la quantité de rayonnement interagissant, c'est-à-dire absorbé ou diffusé par les particules. Lorsque ce coefficient est intégré sur toute la colonne de l'atmosphère, il donne l'épaisseur optique d'extinction ou AOD pour Aerosol Optical Depth, qui nous renseigne sur la quantité de rayonnement diffusé ou absorbé par la colonne entière de l'atmosphère. Cette information est également pratique car elle est facilement mesurable, soit par des systèmes instrumentés au sol, soit par des observations satellitaires.

L'albédo de diffusion simple (SSA) nous renseigne sur la capacité des particules à avoir un comportement plutôt absorbant ou plutôt diffusant. Ainsi, une particule présentant un SSA tendant vers 1 indique une capacité forte à diffuser le rayonnement, alors qu'une particule caractérisée par un SSA tendant vers 0 aura tendance à fortement absorber le rayonnement.

Enfin, le facteur d'asymétrie renseigne sur la direction dans laquelle les particules diffusent la lumière de façon privilégiée. Variant entre -1 et 1, ce facteur tend vers 1 lorsque le rayonnement est diffusé vers l'avant, vers -1 lorsqu'il est diffusé vers l'arrière et vaut 0 lorsque la diffusion est totalement isotrope.

Il est également à noter qu'il existe d'autres théories et méthodes pour calculer les propriétés optiques des particules, notamment dans le cas où les aérosols ne sont pas sphériques, ou dont la taille se trouve à la limite de l'applicabilité de la théorie de Mie (T-Matrice de Mishchenko).

À titre d'exemple, la figure 2.11 illustre le paramètre d'épaisseur optique des aérosols (AOD) observé par le satellite Aqua de la NASA durant un épisode de feux de forêts au Nicaragua et au Honduras en 2008.



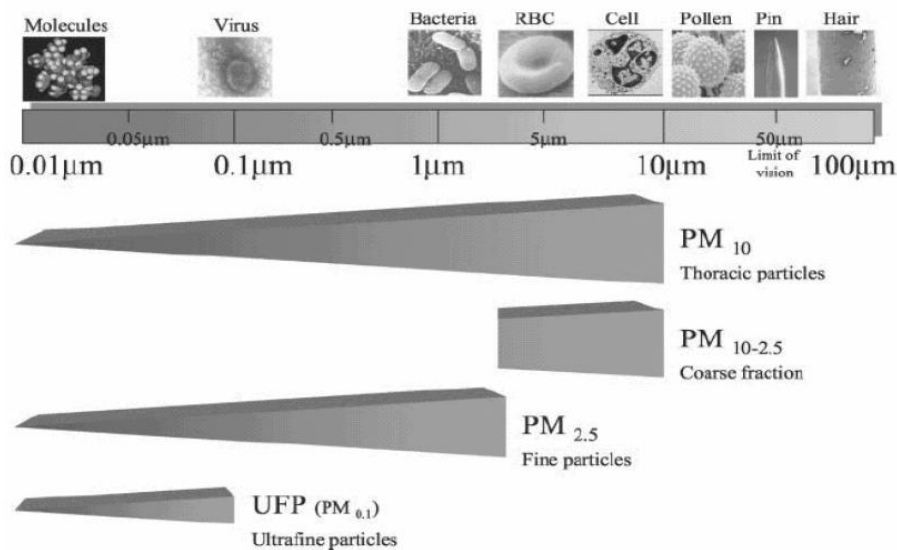
**Fig. 2.11:** Image d'Aerosol Optical Depth (AOD) de feux présents au Nicaragua et au Honduras à partir du satellite Aqua de la NASA avec l'instrument Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS), le 27 avril 2008.

### 2.3.3 Les enjeux sanitaires

La pollution urbaine est un enjeu de plus en plus important depuis la fin du 20<sup>e</sup> siècle. Alors que la pollution gazeuse est surveillée depuis de nombreuses années, la pollution particulaire a été récemment mise en lumière comme potentiellement dangereuse pour la santé publique. En effet, de nombreuses études (*Brimblecombe, 1987/1988; Nemery et al., 2001*) montrent que l'inhalation de particules peut entraîner des effets néfastes pour la santé. Alors que les particules les plus grosses sont retenues par les voies respiratoires supérieures, les particules plus fines dont le diamètre est inférieur à  $2.5 \mu\text{m}$  pénètrent plus profondément dans l'appareil respiratoire où elles peuvent provoquer une inflammation et altérer la fonction respiratoire dans son ensemble. Les particules ultrafines ( $< 0.1 \mu\text{m}$ ) sont suspectées de provoquer également des mala-

dies cardio-vasculaires. Elles peuvent également avoir des propriétés mutagènes et cancérigènes : c'est notamment le cas de certaines particules émises par les moteurs Diesel qui véhiculent certains hydrocarbures aromatiques polycycliques ou HAP (*Donaldson et al.*, 1998; *Hannigan et al.*, 1998).

La taille ainsi que la composition chimique des particules sont décisives sur l'impact sanitaire de ces dernières. Ces constatations ayant alerté les autorités publiques, des seuils d'alerte ont été mis en place (*Dockery et al.*, 1993; *Pope et al.*, 1995; *Hoek et al.*, 2002) et des lois sur la qualité de l'air introduites.



**Fig. 2.12:** Différents types de particules pénétrant dans le système cardiovasculaire et analogie de taille avec des composants du corps humain.

La figure 2.12 illustre les différentes tailles de particules pouvant pénétrer dans le système respiratoire, et compare leur taille à différents composants caractéristiques du corps humain.

## 2.4 Enjeux de l'étude de la météorologie urbaine

L'environnement urbain est un système complexe qui nécessite aujourd'hui des études conjointes de la part de météorologues, d'économistes ainsi que de chercheurs en sciences sociales afin de mettre en place des projections fiables de l'évolution de cet environnement. Depuis le début du 20<sup>e</sup> siècle, le pourcentage ainsi que le nombre de la population mondiale vivant dans des zones urbaines n'a cessé d'augmenter. Cette évolution démographique est considérée par beaucoup (*Brown*, 2001) comme la tendance contemporaine dominante, et ne semble pas s'affaiblir. En ef-



fet, avec un accroissement de la population trois fois supérieur en ville par rapport à la campagne (Nilsson et al., 1999), les projections de *Platt et al.* (1994) estiment que 60 % de la population mondiale résidera dans un environnement urbain d'ici 2025. Depuis 2007, plus de la moitié de la population mondiale habite dans une ville. Avec cette concentration de la population mondiale qui ne fait que s'accroître, étudier l'adaptation de la ville au changement climatique apparaît comme un enjeu légitime.

Les villes sont des centres d'échanges économiques, culturels et sociaux concentrant une part importante de la population sur une surface restreinte. Améliorer la qualité de vie des habitants est donc un terrain d'étude en perpétuel mouvement. Pour ce faire, étudier la météorologie urbaine est un aspect important de ce cadre général. Depuis 2000, la communauté scientifique s'est regroupée au sein de l'IUAC, l'Association Internationale pour le Climat Urbain. Cette organisation a coordonné un grand nombre d'études, à la fois sur les aspects de qualité de l'air, mais aussi sur la compréhension des processus météorologiques typiquement urbains. En effet, la nature même de la ville influe directement sur la structure de la dynamique, et donc sur les impacts en cas d'évènements extrêmes tels que les brouillards denses, les fortes précipitations ou les grandes chaleurs.

### 2.4.1 La couche limite urbaine

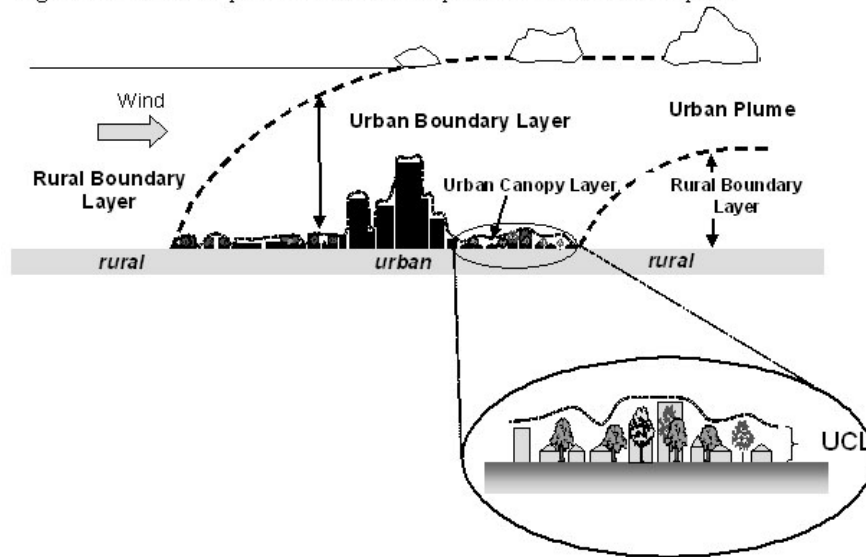
Le concept de couche limite atmosphérique a été introduit pour la première fois par *Foude* en 1970. Dans le domaine des sciences de l'atmosphère, le terme de couche limite atmosphérique se réfère à la couche de la troposphère directement influencée par la rugosité de la surface ainsi que par les échanges d'énergie avec la surface. La hauteur de cette couche varie fortement de 100 mètres sous conditions météorologiques stables à 2500 mètres dans des conditions convectives. Le temps de réponse de la couche aux forçages de la surface est d'environ une heure. Les principales particularités de la couche limite atmosphérique résident en ce qu'à l'intérieur de celle-ci, le mélange vertical est important et les fluctuations des quantités thermodynamiques telles que la température, le vent ou encore l'humidité sont rapides (*Stull*, 1988). La façon dont les bilans d'énergie et d'humidité sont traités est très différente selon la nature urbaine ou végétale de la surface (*Oke*, 1987).

La couche limite urbaine dépendant fortement des propriétés de la surface, elle devient très difficile à représenter dans le cas de zones urbaines pour lesquelles la variabilité spatiale de la rugosité de surface ou des échanges d'énergie est importante. La couche limite urbaine est alors définie comme la couche atmosphérique présente au-dessus de la canopée urbaine, elle-même définie comme la couche contenue entre la surface et le sommet des toits. De plus en plus d'études se sont portées sur la couche limite urbaine (*Oke et al.*, 1999; *Grimmond et Oke*, 1999). La nature même de l'environnement urbain entraîne de nombreuses perturbations sur la couche limite atmosphérique classique. Entre autres études, *Richards* (2004) met notamment en évidence une réduction de la rosée dû à l'environnement urbain, *Sachweh et Koepke* (1995, 2004) étudient la diminution de la présence de brouillard radiatif à l'intérieur des villes, et de nombreuses études sur l'impact de la ville sur les précipitations sont résumées par *Shepherd* (2004).

On peut également noter la présence d'îlots de chaleur urbain, positifs ou négatifs (décrits ci-après).

Une des principales caractéristiques de la couche limite urbaine par rapport à la couche limite atmosphérique rurale est une augmentation du mélange vertical, et ainsi de la hauteur de mélange. Pour les études de qualité de l'air, il est primordial de connaître correctement la hauteur de mélange. En effet, les polluants émis étant mélangés sur une certaine hauteur, la concentration résultante correspond naturellement au rapport de la masse totale sur le volume de mélange. La difficulté de cette représentation est aujourd'hui l'un des points majeurs restant à améliorer dans les modèles de qualité de l'air (*Piringer et al., 2007*).

Figure 1. Schematic depiction of the main components of the urban atmosphere.



**Fig. 2.13:** Représentation schématique des couches limite urbaine et rurale (*Oke, 1995*).

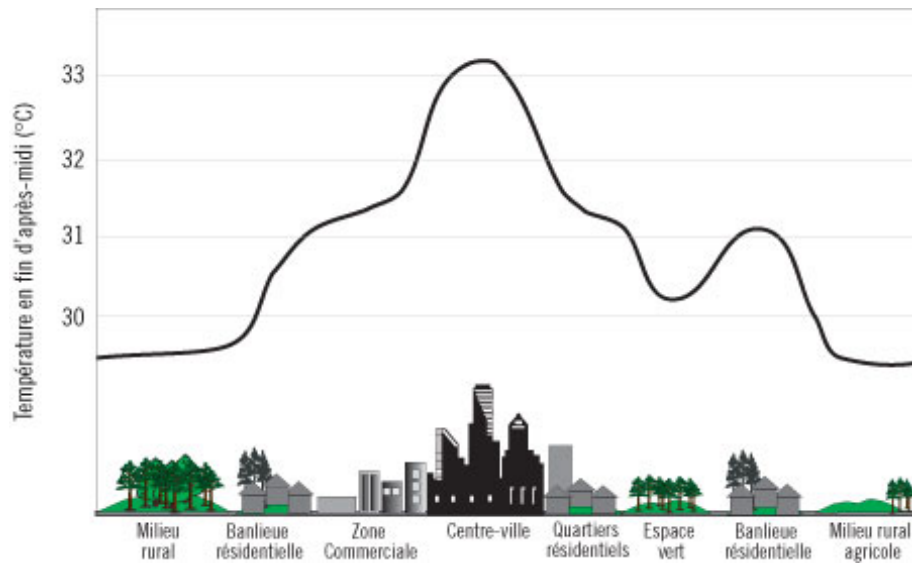
La figure 2.13 illustre la différence entre les couches limite urbaine et rurale. La différence de hauteur de mélange est notamment mise en évidence, avec une hauteur de couche limite urbaine plus importante que pour la couche limite rurale. Le panache urbain est également montré, ainsi que la canopée urbaine.

## 2.4.2 L'îlot de chaleur urbain

On définit l'îlot de chaleur urbain comme la différence de température entre des environnements urbains et ruraux voisins observés au même moment. Ce phénomène est largement caractérisé par son cycle diurne. En effet, l'îlot de chaleur urbain augmente à partir de la fin

d'après-midi, jusqu'à atteindre un maximum de 5 à 8 degrés durant la nuit pour une ville moyenne (Oke, 1983). Puis il décroît de l'aube jusqu'au matin jusqu'à pouvoir présenter une différence négative pouvant valoir 1 degré. Il augmente ensuite à nouveau et présente des valeurs de l'ordre de 1 à 2 degrés durant la journée (Shea et Auer, 1978; Yoshikado, 1992; Hidalgo et al., 2008).

Les causes de la formation de l'îlot de chaleur urbain maximum la nuit sont les suivantes. Durant la nuit, alors que la couche limite rurale est généralement stable du fait d'un refroidissement par la surface, la couche limite urbaine est réchauffée par la surface qui la caractérise par l'émission d'énergie emmagasinée durant la journée par la surface urbaine. Ce réchauffement réduit donc le refroidissement de l'atmosphère en zones urbaines, et s'accompagne d'un mélange vertical qui subsiste en ville, menant à l'apparition d'une couche limite neutre voire légèrement instable.



**Fig. 2.14:** Représentation schématique de l'îlot de chaleur urbain en fin d'après-midi.

La figure 2.14 illustre l'influence du type de surface et notamment de la surface urbaine sur les profils de température en fin d'après-midi. Globalement en moyenne sur le cycle diurne complet, la surface urbaine, et dans une moindre mesure périurbaine, conduit à une augmentation de la température par rapport à une surface « verte ». On remarque également que la disposition de l'urbanisation a une influence notable sur la température. En effet, dans cet exemple les structures d'urbanisation étant différentes à droite et à gauche de la ville, les valeurs de la température sont également différentes.

Il est également intéressant de noter que la présence de l'îlot de chaleur urbain localisé au

centre-ville peut induire des phénomènes de brise urbaine. Cette brise résulte de la différence de température entre la ville et la campagne. Il se crée alors une différence de pression atmosphérique, avec une pression de l'air plus faible au dessus de la ville (l'air y est plus chaud donc moins dense) que dans la zone rurale autour. Cette différence de pression génère un vent vers la ville, appelé brise urbaine.

### 2.4.3 Interactions entre la météorologie urbaine et les aérosols atmosphériques

Dans la configuration météorologique complexe de la ville, les aérosols sont à la fois une source de perturbation de l'équilibre météorologique urbain, mais sont également impactés par cet environnement urbain complexe. Les effets de turbulence ainsi que l'îlot de chaleur propre aux zones urbaines modifient la distribution spatiale des aérosols. Ces zones urbaines concentrant des émissions d'aérosols, la dynamique propre à la ville dicte alors les modes de dispersion de ces particules.

Cependant, les modifications des processus se font également dans l'autre sens. En effet, les particules d'aérosols interagissant avec le rayonnement modifient également la dynamique urbaine. En absorbant ou diffusant le rayonnement solaire, les aérosols peuvent refroidir ou réchauffer la couche limite urbaine dans laquelle ils sont fortement concentrés, et ainsi perturber l'équilibre dynamique mis en place au-dessus des zones urbaines.

L'ensemble de ces interactions sont complexes et liées entre elles. Etudier les rétroactions des aérosols sur la ville ainsi que les impacts de la ville sur les aérosols apparaît complexe car il est nécessaire de distinguer les effets propres à chacun.

## 2.5 Conclusions

Que ce soit la dynamique atmosphérique, et plus particulièrement la couche limite urbaine, les réactions chimiques ou encore l'évolution des particules d'aérosol et les propriétés associées, l'ensemble de ces processus ainsi que les interactions qui en découlent sont complexes à représenter. L'outil de modélisation permet de représenter l'ensemble de ces processus conjointement. En effet, les simulations numériques décrivant le système atmosphérique complet permettent d'analyser les évolutions des paramètres descriptifs ainsi que les impacts de certains processus sur l'équilibre du système Terre-Atmosphère-Espace.

## Chapitre 3

# Modélisations du système atmosphérique et de l'évolution de l'aérosol

### Sommaire

---

<b>3.1</b>	<b>Le modèle atmosphérique Méso-NH . . . . .</b>	<b>46</b>
<b>3.2</b>	<b>Le modèle de surface Surfex . . . . .</b>	<b>46</b>
3.2.1	Le module de ville TEB . . . . .	48
3.2.2	Le module de canopée ISBA . . . . .	50
<b>3.3</b>	<b>Le schéma de rayonnement . . . . .</b>	<b>55</b>
<b>3.4</b>	<b>Le schéma de turbulence . . . . .</b>	<b>55</b>
<b>3.5</b>	<b>Le schéma de chimie gazeuse . . . . .</b>	<b>56</b>
3.5.1	Introduction à Méso-NH-Chimie . . . . .	56
3.5.2	Les précurseurs gazeux et les espèces émises . . . . .	56
<b>3.6</b>	<b>Le schéma d'aérosol . . . . .</b>	<b>57</b>
3.6.1	Description du spectre par la méthode lognormale . . . . .	58
3.6.2	Dynamique des aérosols . . . . .	59

---

Afin de représenter l'ensemble des processus d'évolution de l'aérosol dans son environnement atmosphérique et de quantifier ses impacts, l'outil de modélisation permet de résoudre les lois physiques régissant son comportement.

### 3.1 Le modèle atmosphérique Méso-NH

Pour simuler l'ensemble des processus dynamiques de l'atmosphère, le modèle Méso-NH est utilisé. Méso-NH est un modèle de recherche atmosphérique non-hydrostatique, autorisant les fluctuations de pression sur la verticale, à aire limitée et suivant l'hypothèse anélastique, c'est-à-dire suivant le système d'équations anélastiques de Durran (1988), interdisant aux fluctuations d'atteindre le domaine acoustique. Il est développé conjointement par le Laboratoire d'Aérodynamique (UMR 5560 UPS/CNRS) et par le CNRM-GAME (URA 1357 Météo-France/CNRS). Il peut être utilisé, suivant sa configuration, pour simuler des mouvements atmosphériques depuis l'échelle LES (Large Eddy Simulation : de l'ordre du mètre) jusqu'à l'échelle synoptique (de l'ordre de la centaine de kilomètres). Plusieurs paramétrisations différentes ont été introduites, notamment pour la convection (*Bechtold et al.*, 2001), la microphysique nuageuse (*Pinty et Jabouille*, 1998; *Cohard et Pinty*, 2000b) ou la turbulence (*Bougeault et Lacarrère*, 1989). De plus, Méso-NH peut adopter une configuration de domaines emboîtés, utilisant la technique de grid-nesting de *Clarck et Forley* (1989).

Le schéma d'advection utilisé, appelé PPM pour Piecewise Parabolic Method, est basé sur une technique numérique développée en astrophysique pour la modélisation de fluides (*Colella et Woodward*, 1984; *Carpenter et al.*, 1990). Cette formulation repose sur une méthode de volumes finis dans laquelle plusieurs hypothèses sont faites notamment sur les valeurs des variables approximées entre chaque point de grille. Les variables sont calculées selon une interpolation de fonctions paraboliques continues par morceaux entre chaque point de grille. Cette méthode permet de gérer les forts gradients ainsi que les discontinuités de façon très précise. De plus, ce schéma est monotone et permet l'intégration de semi-Lagrangiens stables en utilisant des nombres de courant supérieurs à 1.

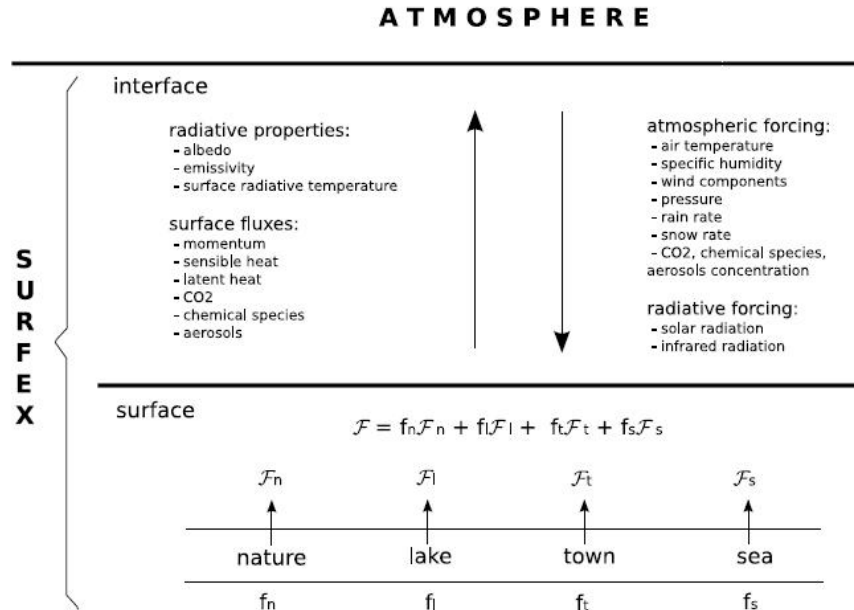
Ce schéma est utilisé pour l'advection des variables météorologiques comme la température ou l'humidité, ainsi que des scalaires passifs comme les concentrations en gaz ou particules. Il a également montré de très bons résultats concernant la conservation de la masse. La description du modèle Méso-NH est détaillée par *Lafore et al.* (1998).

### 3.2 Le modèle de surface Surfex

Le modèle Surfex est le modèle de surface externalisé couplé avec Méso-NH. Il modélise les processus propres à la surface ainsi que les échanges de flux avec le modèle atmosphérique. Le modèle Surfex est décomposé en quatre modules gérant chacun un type de surface :

- Le module ISBA pour Interface Soil Biosphere Atmosphere (*Noilhan et Planton*, 1989) modélise les surfaces végétales et ainsi l'évolution des flux et les déformations atmosphériques dues au couvert végétal.

- Le module TEB pour Town Energy Balance (*Masson, 2000*) modélise la surface urbaine. Les phénomènes de canyons urbains ainsi que d'îlot de chaleur urbain sont ainsi simulés pour reproduire de façon précise la météorologie urbaine.
- Le module SEAFLUX (*Mondon et Redelsperger, 1998*) modélise les surfaces océaniques.
- le module FLAKES (*Salgado et Moigne, 2010*) modélise les lacs.



**Fig. 3.1:** Description des échanges entre le modèle atmosphérique fournissant les champs météorologiques et radiatifs à la surface, et *Surfex* composé de quatre modules calculant chacun les variables  $F$  pour la fraction  $f$  de la maille correspondant.

La figure 3.1 schématise le principe des quatre modules calculant chacun pour la fraction  $f$  de la maille qui le caractérise l'ensemble des variables nécessaires, et renvoyant ainsi la variable de flux équivalente  $F$  à l'ensemble de la maille.

Dans *Surfex*, les échanges entre la surface et l'atmosphère sont réalisés en calculant la moyenne d'une interface standardisée (*Polcher et al., 1998; Best et al., 2004*) proposant un couplage généralisé entre l'atmosphère et la surface. A chaque pas de temps du modèle (Mésos-NH), chacun des quatre modules indépendants de la surface reçoit des forçages atmosphériques calculés par Mésos-NH à chaque pas de temps, tels que la température de l'air situé au-dessus de la surface, l'humidité spécifique, les composantes du vent horizontal, la pression, les précipitations totales, les flux radiatifs en courtes (SW) et grandes (LW) longueurs d'onde, ou encore les concentrations

en espèces chimiques gazeuses et en aérosols. Surfex calcule en retour les flux moyens de chaleur sensible et latente, ainsi que les flux d'espèces chimiques et les renvoie au modèle atmosphérique accompagnés des termes radiatifs tels que la température de surface, l'albédo direct et diffus, et l'émissivité de la surface. Toutes ces variables sont alors utilisées comme conditions aux limites inférieures par le modèle Méso-NH. Comme explicité précédemment, chaque maille dans Surfex est décomposée en quatre fractions de différents types de surface. La fraction correspondant à chacune de ces surfaces est connue à partir de la base de donnée ECOCLIMAP (*Masson et al.*, 2003), construite à partir de cartes de couverts surfaciques ainsi que d'informations satellitales. Les cas présents dans notre étude correspondent à un cadre urbain entouré de surfaces rurales. Aussi, les modules TEB et ISBA calculant respectivement les flux pour les surfaces urbaines et rurales sont détaillés ci-dessous.

### 3.2.1 Le module de ville TEB

Il existe de nombreuses études climatologiques à fine échelle sur les bâtiments. Dans celles-ci, plusieurs bâtiments individuels sont généralement présents dans le but d'étudier les interactions radiatives, les effets de tunnel de vents, ou encore l'isolation des bâtiments. Le concept de canyon urbain développé par des climatologues de la ville (*Oke*, 1987) se place dans ce même contexte, en considérant une route bordée par des façades d'immeubles. Dans ces travaux, les modèles urbains sont au mieux forcés par des données atmosphériques telles que le vent ou les flux radiatifs, mais n'interagissent pas avec ces champs. Le module TEB a pour but de paramétrer la dynamique atmosphérique propre à la ville ainsi que les interactions thermodynamiques. La forme individuelle de chaque bâtiment n'est plus prise en compte. La géométrie de TEB repose sur l'hypothèse de canyon. Cependant, pour des échelles horizontales de l'ordre de la centaine de mètres ou du kilomètre, représenter un seul canyon serait trop limitant. C'est pourquoi la représentation de la ville est organisée de la manière suivante :

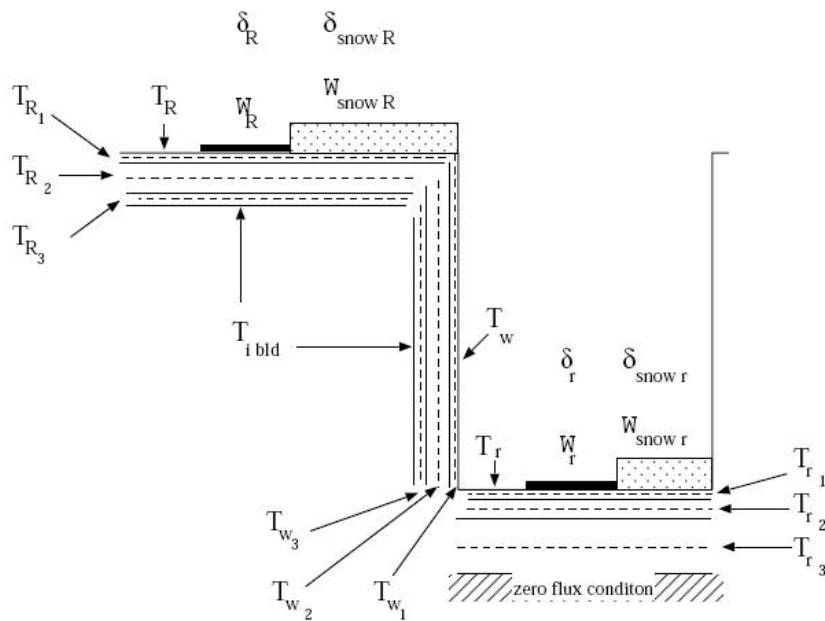
- Les bâtiments ont tous la même longueur et largeur à l'intérieur d'une même maille.
- Le sommet des toits est considéré par le modèle atmosphérique comme la surface.
- Les bâtiments sont situés le long de routes identiques qui sont définies avec une longueur bien plus grande que leur largeur. C'est l'espace contenu entre chaque façade de bâtiment qui définit un canyon.
- Les routes peuvent être orientées dans toutes les directions, et elles sont prises en compte avec la même probabilité d'orientation. Cette hypothèse permet de calculer les forçages moyens pour les routes et les surfaces des bâtiments. Ainsi lors du calcul des flux dans lequel l'orientation du canyon (et ainsi son inclinaison par rapport au rayonnement solaire) intervient, le résultat est intégré sur 360 °.



Le module TEB ne repose pas sur une seule température de surface, mais sur trois températures différentes, représentant les toits, les routes et les murs. Les raisons de ce choix sont les suivantes :

- Pour des raisons de consistance avec les résultats des climatologues de la ville utilisés dans TEB, et qui considèrent des géométries complexes (non plates) pour représenter la ville, il est nécessaire de calculer explicitement de multiples bilans d'énergie, et donc de considérer plusieurs températures de surface.
- Bien que dans les modules de surface végétale, une seule température de surface équivalente soit utilisée pour calculer les flux turbulents selon la théorie des similarités de Monin-Obukhov, la rugosité caractérisant la surface des villes peut entraîner l'inconsistance et donc la non applicabilité de cette théorie. Ainsi, il est nécessaire de considérer plusieurs températures différentes pour ne pas se retrouver dans un tel cas.

La figure 3.2 montre l'ensemble des variables pronostiques considérées dans le module TEB, et schématisées dans l'espace du canyon urbain.



**Fig. 3.2:** Représentation du principe de canyon urbain ainsi que de l'ensemble des variables pronostiques considérées.

L'ensemble de ces variables est explicité dans le tableau 3.1.

Variable	Description	Unité
$T_{R_k}$	Température du $k^{ième}$ toit	$K$
$T_{r_k}$	Température de la $k^{ième}$ route	$K$
$T_{w_k}$	Température du $k^{ième}$ mur	$K$
$W_R$	Capacité en réservoir d'eau des toits	$kg.m^{-2}$
$W_r$	Capacité en réservoir d'eau des routes	$kg.m^{-2}$
$W_{snowR}$	Capacité en réservoir de neige des toits	$kg.m^{-2}$
$W_{snowr}$	Capacité en réservoir de neige des routes	$kg.m^{-2}$
$\delta_R$	Fraction des toits couverts par l'eau	%
$\delta_r$	Fraction des routes couvertes par l'eau	%
$\delta_{snowR}$	Fraction des toits couverts par la neige	%
$\delta_{snowr}$	Fraction des routes couvertes par la neige	%

**Tab. 3.1:** Descriptions et unités des variables pronostiques utilisées dans TEB.

### 3.2.2 Le module de canopée ISBA

ISBA a été développé au CNRM par *Noilhan et Planton* (1989). ISBA repose sur une physique simple de type « Bucket » (ou seau d'eau), utilisant la méthode « force-restore » utilisant les variables préalablement calculées comme termes de rappel, et dépendant seulement de quelques paramètres liés au type de sol et de végétation. Conformément à l'approche de *Deardorff* (1977, 1978), la version utilisée ici dispose de deux couches hydrologiques (une couche superficielle de surface incluse dans la seconde couche totale de sol représentant la zone racinaire) et d'une représentation de la végétation (*Noilhan et Planton*, 1989). Le modèle calcule l'évolution temporelle d'une dizaine de variables pronostiques (tableau 3.2) représentatives de la température du sol, de l'eau et de la glace contenues dans chaque couche de sol, de l'eau stockée sur la canopée et des propriétés du manteau neigeux. Il permet donc de simuler à la fois les bilans hydrique et thermique des surfaces continentales.

Dans un souci de simplicité, ISBA utilise relativement peu de paramètres en entrée (tableau 3.3). Ces paramètres d'entrées sont classés en deux catégories : les paramètres dits « primaires » et ceux appelés « secondaires ». On distingue trois sortes de paramètres primaires :

- Les types de sols relatifs à l'information texturale donnée par les pourcentages de sable, Xsand, et d'argile, Xclay.

Variables pronostiques	Symboles
<b>Bilan d'énergie dans le sol</b>	
Température du sol en surface	$T_s$
Température moyenne de la couche racinaire sur un jour	$T_2$
<b>Bilan d'eau et de gel dans le sol</b>	
Contenu volumique en eau de chaque couche	$w_i$ (i=1,2)
Contenu volumique équivalent en eau gelée de chaque couche	$w_{ice,i}$ (i=1,2)
<b>Bilan d'eau sur la canopée</b>	
Contenu en eau du réservoir d'interception (canopée)	$W_r$
<b>Bilan d'eau lié à la neige</b>	
Contenu équivalent en eau du manteau neigeux	$W_n$
Albédo de la neige	$\alpha_n$
Masse volumique de la neige	$\rho_n$

**Tab. 3.2:** Liste des variables pronostiques utilisées dans ISBA.

- Les types de végétations relatifs à la présence au sein de la maille de prairies, de feuillus, de conifères, de cultures d'été, d'hiver, etc...
- La profondeur des couches de sol, l'albédo et l'émissivité de la surface forment une troisième classe de paramètres primaires caractéristiques à la fois du type de sol et de végétation.

Les paramètres secondaires liés au sol sont estimés à partir des textures, suivant les régressions établies par *Noilhan et Lacarrere* (1995). Ceux liés à la végétation sont tabulés en fonction des différents types, à partir des étalonnages disponibles et des données expérimentales. Notons que l'albédo, l'indice foliaire, la hauteur de rugosité et la fraction de végétation (tous les termes non explicités le seront par la suite) sont généralement prescrits en entrée du modèle au pas de temps mensuel. Le but est de pouvoir représenter l'évolution saisonnière de l'état de surface, comme par exemple la croissance de certaines plantes durant le printemps et leur mort passé l'été. Comme précédemment, les données requises sont interpolées linéairement à partir de la donnée précédente et de la donnée suivante.

Le bilan d'énergie au niveau du sol est décrit comme suit :

$$G = R_n - H - LE \quad (3.1)$$

$$LE = L_v(E_{soil} + E_{veg}) + L_s(S_{ice} + S_{snow}) \quad (3.2)$$

Paramètres primaires	Paramètres secondaires	Symboles
<b>Type de sol</b> Fraction d'argile Fraction de sable	Contenu en eau à saturation (porosité) Contenu en eau à la capacité au champ Contenu en eau au point de flétrissement Conductivité hydraulique à saturation Potentiel hydrique à saturation Pente de la courbe de rétention d'eau Valeur de $C_1$ à saturation Valeur de $C_2$ pour $w_2 = 0.5w_{sat}$ Coefficient de drainage des couches profondes Coefficient de diffusion entre les couches profondes Coefficient de régression (calcul de $w_{geq}$ ) Coefficient thermique du sol nu à saturation	$X_{clay}$ $X_{sand}$ $w_{sat}$ $w_{fc}$ $w_{wilt}$ $k_{sat}$ $\psi_{sat}$ $b$ $C_{1sat}$ $C_{2ref}$ $C_{3,i}$ (i=2,3) $C_4$ $a, p$ $C_{Gsat}$
<b>Type de Végétation</b>	Résistance stomatique minimale Indice foliaire Hauteur de rugosité Fraction de végétation	$R_{smin}$ $LAI$ $z_0$ $veg$
<b>Les deux types</b> Profondeur de sol Albédo Emissivité		$d_i$ (i=2,3) $\alpha$ $\epsilon$

**Tab. 3.3:** Liste des paramètres de surface nécessaires au fonctionnement d'ISBA.

où  $G$  représente la conduction du sol,  $R_n$  le rayonnement net,  $H$ , la chaleur sensible,  $LE$  la chaleur latente,  $E_{soil}$  l'évaporation du sol nu,  $E_{veg}$  l'évapotranspiration de la végétation et  $S_{ice}$  et  $S_{snow}$  respectivement la sublimation de la glace et de la neige lors de leur fonte.  $L_v$  et  $L_s$  ( $J.kg^{-1}$ ) sont respectivement les chaleurs latentes de vaporisation et de sublimation.

Dans ISBA, l'évolution de la température du sol au cours du temps repose sur la méthode « force-restore » de *Bhumralkar* (1975) et *Blackadar* (1976) qui suggèrent que l'évolution de la température en surface est influencée « ou rappelée » vers la température journalière moyenne

du sol. Cette méthode implicite apporte aussi l'avantage de limiter le coût numérique des simulations tout en présentant des erreurs relativement faibles par rapport aux modèles multicouches plus précis. Considérant l'équation du bilan d'énergie en surface ainsi que la fonte de la neige et du gel du sol, le système d'équations reliant l'évolution de la température de surface à la température du sol s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{dT_s}{dt} = C_T \cdot [R_N - H - LE - L_f(S_m - F_{1,w})] - \frac{2\pi}{\tau}(T_s - T_2) \quad (3.3)$$

$$\frac{dT_2}{dt} = \frac{1}{\tau}(T_s - T_2) + C_G L_f F_{2,w} \quad (3.4)$$

Le coefficient  $C_T$  est défini comme étant le coefficient d'inertie thermique du composite sol-végétation-neige (*Douville et al.*, 1995), alors que  $C_G$  est le coefficient d'inertie thermique du sol nu qui tient compte du gel (*Boone et Etchevers*, 2000). Le coefficient  $S_m$  représente la fonte de la glace. Le résultat est normé par la durée d'une journée  $\tau$ .

$F_{1,w}$  et  $F_{2,w}$  ( $kg.m^2.s^{-1}$ ) prennent en compte le changement de phase eau-glace en surface et dans le sol, et correspondent aux termes puits de chaleur dus aux changements d'état (en  $kg.m^2.s^{-1}$ ).

La version d'ISBA utilisée au cours de cette thèse prend en compte deux couches hydrologiques dans le sol. L'évolution de ces deux réservoirs est basée sur les équations-bilans suivantes :

$$\frac{dw_1}{dt} = \frac{1}{\rho_w d_1} [C_1(I - E_{soil}) - F_{1,w}] - D \quad (3.5)$$

avec  $w_{min} < w_1 < w_{sat,1}^*$

$$\frac{dw_2}{dt} = \frac{1}{\rho_w d_2} (I - E_{soil} - E_{transp} - F_{2,w}) - K \quad (3.6)$$

avec  $w_{min} < w_2 < w_{sat,2}^*$

où  $w_1$  et  $w_2$  représentent les teneurs en eau volumiques moyennes pour respectivement la surface et la zone racinaire du sol. Le contenu en eau de chaque réservoir est contraint par la teneur en eau liquide à saturation,  $w_{sat}$  ( $m^3.m^{-3}$ ), corrigée de l'effet gel du sol :

$$w_{sat,i}^* = w_{sat} - w_{ice,i} \quad (3.7)$$

$i = 1, 2$

De plus, il ne peut être en dessous d'un seuil minimum,  $w_{min}$  (égal à  $1.10^{-3}m^3.m^{-3}$ ) introduit pour des raisons numériques, ce qui évite un assèchement total du sol.  $K$  ( $s^{-1}$ ) représente le drainage gravitationnel et  $D$  ( $s^{-1}$ ) la diffusion verticale d'humidité dans le sol.  $d_1$  (m) est la profondeur superficielle de sol et  $d_2$  (m) la profondeur de la couche racinaire. L'eau candidate à l'infiltration  $I$  ( $kg.m^{-2}.s^{-1}$ ) est la somme de l'eau non interceptée par la canopée, de l'eau ruisselée à partir de ce réservoir et de celle provenant de la fonte de la neige :

$$I = (1 - veg)R_r + d_r + S_m \quad (3.8)$$

Finalement, le schéma de neige utilisé dans ce travail est un schéma simple à une couche, basé sur le principe force-restore, permettant de représenter la surface comme un composite, c'est-à-dire avec une température de surface commune au triplet sol-végétation-neige (*Douville et al.*, 1995). Lorsque la chaleur contenue dans le manteau neigeux est assez importante pour faire fondre ou pour sublimer la neige, alors la quantité de neige fondue,  $S_m$ , ou la vapeur d'eau produite par sublimation,  $S_{snow}$ , contribuent au bilan hydrique du système. Conformément à la loi de conservation de la masse, on peut donc représenter simplement l'évolution du manteau neigeux,  $W_n$ , comme suit :

$$\frac{dW_n}{dt} = S_r - (S_m + S_{snow}) \quad (3.9)$$

où  $S_r$  représente le taux de précipitation neigeuse.

Lorsque la température de surface est supérieure à la température de fusion de la glace (273.16K), le taux de fonte est calculé en fonction de la température à la surface du manteau neigeux égale à la moyenne pondérée de la température de surface sur sol nu et de la température profonde sur la végétation du pas de temps précédent. Le but est de prendre en compte l'effet d'atténuation du rayonnement solaire par la végétation.

Pour plus d'informations, le lecteur pourra se référer à la documentation scientifique de SURFEX, disponible sur internet à l'adresse suivante :

[http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir\\_doc/surfex\\_v5\\_19May2009/surfex\\_scidoc.pdf](http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir_doc/surfex_v5_19May2009/surfex_scidoc.pdf)

### 3.3 Le schéma de rayonnement

Le modèle atmosphérique Méso-NH est couplé au code de transfert radiatif du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (CEPMMT) (*Fouquart et Bonnel*, 1980; *Morcrette et al.*, 1986). Ce code calcule les flux radiatifs selon une dimension, négligeant ainsi les interactions entre colonnes. Les calculs sont effectués en tenant compte de la nature de la surface ainsi que de la présence ou non de nuages et d'aérosols dans l'atmosphère.

Ainsi, le schéma radiatif calcule le flux radiatif net afin d'évaluer le taux de réchauffement dû au rayonnement selon l'équation :

$$\frac{dT}{dt} = \frac{g}{C_{ph}} \cdot \frac{dF}{dp} \quad (3.10)$$

avec  $T$  la température,  $g$  l'accélération gravitationnelle,  $C_{ph}$  la capacité calorifique de l'air humide,  $p$  la pression atmosphérique, et  $F$  correspondant au flux net.

Les flux montants et descendants sont séparés, et les calculs sont effectués sur 18 bandes spectrales : les processus de réflexion, diffusion et absorption du rayonnement solaire sont calculés sur 6 bandes (0.185-0.25-0.44-0.69-1.19-2.38-4.00  $\mu m$ ), et les processus d'absorption et d'émission du rayonnement infrarouge sont calculés sur 16 bandes (3.33-3.85-4.20-4.44-4.81-5.55-6.76-7.19-8.47-9.26-10.2-12.2-14.3-15.9-20-40-100  $\mu m$ ).

Les calculs de flux issus du rayonnement solaire sont effectués selon le schéma développé par *Fouquart et Bonnel* (1980). Ce schéma intègre les flux sur l'ensemble du spectre solaire en tenant compte de l'absorption et de la diffusion causées par les particules d'aérosol, les gaz et les gouttelettes nuageuses. Pour calculer les flux montants et descendants, l'hypothèse de plans parallèles homogènes est faite pour délimiter les couches de l'atmosphère. De plus, les réflexions multiples entre couches sont prises en compte. Le rayonnement infrarouge est calculé selon le schéma Rapid Radiation Transfer Model (RRTM) décrit par *Mlawer et al.* (1997). Ce schéma utilise la méthode des k-corrélations (*Lacis et Oinas*, 1991; *Fu et Liou*, 1992) permettant d'appliquer un coefficient d'absorption à partir des intervalles considérés.

### 3.4 Le schéma de turbulence

Le schéma de turbulence présent dans Méso-NH a été conçu pour être utilisé dans les simulations 3D. Selon l'échelle adoptée, la configuration de la turbulence peut être soit résolue en trois dimensions explicitement selon le schéma de *Cuxart et al.* (2000), soit être paramétrée selon une dimension lors de simulations à l'échelle régionale selon le schéma décrit par *Bougeault et*

Lacarrère (1989). Dans ces deux cas, le schéma est basé sur la résolution du système d'équations des flux turbulents de moment 2 (Deardorff, 1973).

## 3.5 Le schéma de chimie gazeuse

### 3.5.1 Introduction à Méso-NH-Chimie

Le schéma de chimie atmosphérique Méso-NH-C (Tulet *et al.*, 2003) est une extension du modèle Méso-NH permettant de prendre en compte un certain nombre d'espèces chimiques gazeuses et de calculer l'évolution de leurs concentrations en ligne à chaque pas de temps et interagissant avec les paramètres atmosphériques.

A chaque pas de temps du modèle Méso-NH et pour chaque point de grille, un ensemble d'équations différentielles sont résolues afin de décrire l'évolution des variables chimiques. De plus, les vitesses de réaction sont également calculées en fonction des paramètres météorologiques tels que la température, la pression, ou encore l'humidité. Le schéma réactionnel utilisé dénommé ReLACS2 (Tulet *et al.*, 2006) se base sur une réduction du schéma réactionnel CACM (Griffin *et al.*, 2005) et traite un ensemble de 82 espèces chimiques gazeuses comme variables pronostiques. Les taux de photolyse sont calculées à partir de tables précédemment construites à partir du schéma de transfert radiatif troposphérique TUV en version 3.9 développé par Madronich *et Weller* (1990).

### 3.5.2 Les précurseurs gazeux et les espèces émises

Il est nécessaire de porter une attention particulière à la représentation des espèces précurseurs gazeux. En effet, après les processus de nucléation ou de condensation, ce sont ces gaz qui peuvent contribuer à former des particules d'aérosol.

Ces précurseurs gazeux peuvent être classés en deux types : ceux pouvant former la partie inorganique des aérosols, et les composés organiques volatiles pouvant condenser en aérosols organiques secondaires.

Les précurseurs des aérosols inorganiques (les ions  $NH_4^+$ ,  $NO_3^-$ , et  $SO_4^{2-}$ ) sont donc les gaz  $NH_3$ ,  $NO_2$ ,  $NO$ , et  $SO_2$ . Les COVs (Composés Organiques Volatiles) comprenant un nombre très important d'espèces chimiques différentes ont été regroupés en différentes classes selon leur capacité à former différents types d'aérosols organiques secondaires. Sans entrer dans les détails pour lesquels le lecteur pourra se référer aux études de Griffin *et al.* (2002) et Tulet *et al.* (2006), les groupes d'espèces de composés organiques volatils considérés dans le schéma ReLACS2 sont au nombre de 23, répartis en trois classes de COV biogéniques et 20 classes de COV anthropiques.

Afin d'étudier la modélisation des aérosols, notamment secondaires, il est donc nécessaire de



prendre en compte l'émission de ces gaz précurseurs. Le tableau 3.4 résume l'ensemble des gaz précurseurs émis intervenant dans le schéma réactionnel ReLACS2 afin de pouvoir autoriser la condensation et la nucléation des aérosols secondaires, organiques ou inorganiques.

Formulation	Description
<b>PRECURSEURS INORGANIQUES</b>	
<i>NO</i>	Monoxyde d'azote
<i>NO<sub>2</sub></i>	Dioxyde d'azote
<i>SO<sub>2</sub></i>	Dioxyde de soufre
<i>NH<sub>3</sub></i>	Ammoniac
<b>PRECURSEURS ORGANIQUES</b>	
<i>ALKL</i>	Alcanes à courte chaîne carbonée ( $\leq C_6$ )
<i>ALKM</i>	Alcanes à moyenne chaîne carbonée ( $C_7 \leq C_{11}$ )
<i>ALKH</i>	Alcanes à grande chaîne carbonée ( $\geq C_{12}$ )
<i>ETHE</i>	Ethylène
<i>OLEL</i>	Alcènes à courte chaîne carbonée ( $\leq C_6$ )
<i>OLEH</i>	Alcènes à grande chaîne carbonée ( $\geq C_7$ )
<i>AROH, AROL, AROO</i>	Espèces aromatiques
<i>ARAL, ARAC, HAP</i>	Espèces aromatiques monoaldéhydes
<i>ALD2</i>	Aldéhydes
<i>HCHO</i>	Formaldéhyde
<i>MEOH</i>	Méthanol
<i>ETOH</i>	Ethanol
<i>MGLY</i>	Méthylglyoxal
<i>ISOP</i>	Isoprène
<i>BIOL, BIOH</i>	Monoterpènes

**Tab. 3.4:** Espèces et groupes d'espèces gazeuses émises nécessaires pour la condensation ou la nucléation dans le schéma réactionnel ReLACS2.

### 3.6 Le schéma d'aérosol

Pour évaluer les évolutions des particules d'aérosol, le module d'aérosol ORganic Inorganic Lognormal Aerosol Model (ORILAM) a été utilisé en le couplant avec le modèle atmosphérique

Méso-NH. Ce schéma développé par *Tulet et al.* (2005) et étendu par *Tulet et al.* (2006) pour prendre en compte les aérosols organiques secondaires (*SOA*) est basé sur l'ensemble des lois physiques généralement utilisées pour décrire les aérosols.

### 3.6.1 Description du spectre par la méthode lognormale

La principale difficulté dans la modélisation des aérosols tient en la complexité de leur distribution granulométrique. L'évolution de la distribution en taille de ces particules est gouvernée par l'équation générale dynamique (*Friedlander, 1977; Seinfeld et Pandis, 2006*) de type intégral-différentiel :

$$\frac{dn(r_p)}{dt} = f(n(r_p)) \quad (3.11)$$

où  $n$  est la fonction du spectre granulométrique de l'aérosol ( $part.cm^{-3}$ ),  $r_p$  le rayon de l'aérosol (en  $\mu m$ ) et  $f$  une fonction décrivant l'ensemble des processus modifiant la distribution granulométrique des particules, tels que la condensation, la nucléation, la coagulation ou le dépôt. Il n'existe aucune solution analytique générale à cette équation générale, et doit donc dans tous les cas être résolue à l'aide de méthodes numériques. Cette équation générale peut être intégrée pour obtenir le système d'équations suivant :

$$\frac{dM_k}{dt} = f(M_k) \quad (3.12)$$

où  $M_k$  est le moment d'ordre  $k$  donné par

$$M_k = \int_0^{+\infty} r_p^k n(r_p) dr_p \quad (3.13)$$

en  $m^k \cdot m^{-3}$

Moyennant le choix de la représentation du spectre granulométrique, le système d'équation peut alors être fermé en exprimant  $f(M_k)$  en terme de moments. Il existe classiquement deux types principaux de représentations du spectre granulométrique de l'aérosol : l'approche sectionnelle réalise l'approximation d'une distribution continue en taille par un nombre fini de sections dans lesquelles un moment de la fonction est supposé constant. Ce type d'approche résulte en une distribution sous forme d'histogramme dont la précision dépend fortement du nombre de

classes considéré. La seconde approche de type modale consiste à caractériser le spectre granulométrique par un nombre fixé de modes se recoupant partiellement et définis par une fonction analytique. Ces différentes approches ont été comparées par plusieurs études (*Seigneur et al.*, 1986; *Tsang et Rao*, 1988; *Harrington et Kreidenweis*, 1998). *Seigneur et al.* (1986) ont montré que pour des simulations de processus de coagulation et de condensation, l'approche de type modale présente des erreurs inférieures à 20 % pour des temps de calcul plus de 40 fois inférieurs à ceux correspondant à une approche sectionnelle donnant la même précision de résultats. *Harrington et Kreidenweis* (1998) trouvent que pour des simulations de processus de nucléation, coagulation, condensation et de dépôt sec, l'approche modale fournit de meilleurs résultats pour un nombre d'équations à résoudre identique.

C'est donc l'approche modale qui est utilisée par le module ORILAM. Chaque mode est représenté par une fonction lognormale :

$$n(\ln D) = \frac{dN}{d(\ln D)} = \frac{N}{\sqrt{2\pi \ln \sigma_g}} \exp\left(-\frac{\ln^2\left(\frac{D}{D_g}\right)}{2\ln^2(\sigma_g)}\right) \quad (3.14)$$

où  $N$  est la concentration volumique totale en particules du mode,  $D$  le diamètre des particules,  $D_g$  le diamètre médian des particules du mode, et  $\sigma_g$  l'écart-type géométrique de la distribution pour le mode.

### 3.6.2 Dynamique des aérosols

La modélisation des processus dynamiques des aérosols est basée sur les travaux de *Whitby et al.* (1991); *Binkowski et Shankar* (1995); *Binkowski et Roselle* (2003); *Ackermann et al.* (1998). Cependant, certaines hypothèses et modifications ont été apportées pour une meilleure adaptation à nos cas d'études. Tout d'abord, il a été choisi d'intégrer les moments d'ordre 0, 3 et 6 comme variables pronostiques afin de conserver tous les paramètres de la distribution lognormale. Ensuite, les paramétrisations de la résolution de la chimie organique et inorganique sont introduites, ainsi que la paramétrisation de la nucléation des sulfates.

#### La coagulation

Comme décrit dans la section précédente, le spectre granulométrique des aérosols peut être modifié par le processus de coagulation lorsque plusieurs particules entrent en contact. Afin de modéliser correctement ce processus, les hypothèses suivantes sont faites. Tout d'abord le volume de la particule résultant de la collision de deux particules est égal à la somme des volumes des deux particules. Ensuite, lorsque deux particules appartenant au même mode entrent en

contact, la nouvelle particule appartiendra au même mode. Par contre, lorsque deux particules qui appartiennent à deux modes différents entrent en contact, la nouvelle particule appartient au mode de la particule ayant le plus grand rayon. La description détaillée de la paramétrisation du processus de coagulation peut être lue dans *Tulet et al.* (2005).

## La Conversion gaz-particules

### – La nucléation :

étant donné les conditions nécessaires au processus de nucléation décrites au chapitre précédent, et le peu de connaissances dans la littérature sur la nucléation organique, seule la nucléation des sulfates est considérée. Ce processus est paramétré selon *Kulmala et al.* (1998) afin de rester en accord avec la théorie classique de la nucléation homogène (*Willemski*, 1984) et de considérer les effets d'hydratation.

### – La Condensation inorganique :

l'équilibre thermodynamique des espèces inorganiques est traité par le schéma EQSAM décrit par *Metzger et al.* (2002). Le nombre réduit d'espèces inorganiques susceptibles de condenser permet ainsi de calculer l'équilibre thermodynamique de ces espèces à chaque pas de temps.

Le schéma EQSAM repose sur l'hypothèse principale qu'un équilibre thermodynamique et chimique existe entre l'eau présente dans l'atmosphère et sur l'aérosol. De cette hypothèse découle le fait que la quantité d'eau liquide présente sur l'aérosol est égale à la quantité d'eau liquide condensée dans les conditions d'humidité relative présentes dans l'atmosphère. Ceci est valable si la pression de vapeur d'eau est suffisamment grande devant la pression de vapeur partielle des composés de l'aérosol, ce qui est généralement le cas pour les aérosols troposphériques. Ainsi, étant donné la grande quantité de vapeur d'eau présente dans l'atmosphère, la vapeur d'eau et l'eau contenue dans l'aérosol s'équilibrent relativement rapidement par rapport aux autres composés de l'aérosol. On peut donc déduire de cet équilibre une valeur de pH ainsi que la quantité d'eau liquide présente.

### – La Condensation organique :

les composés organiques volatiles (COV) sont les espèces organiques gazeuses susceptibles de condenser sur l'aérosol. Ces gaz ont des propriétés réactives diverses. A cause de ce nombre important d'espèces à considérer, il est numériquement trop coûteux de calculer l'équilibre thermodynamique pour chacune de ces espèces. C'est pourquoi ORILAM utilise le schéma réactionnel chimique ReLACS2 (*Tulet et al.*, 2006) basé sur le schéma CACM (*Griffin et al.*, 2002, 2005) qui regroupe les produits de la condensation des COV en un nombre restreint de classes d'aérosols organiques secondaires (SOA) en fonction de leur capacité à condenser sous certaines conditions.

Ces dix classes de *SOA* sont présentées dans le tableau 3.5.

Dans cette étude, la méthode de résolution des équilibres thermodynamiques est le schéma MPMPO développé par *Griffin et al.* (2002). Il permet de calculer l'équilibre thermodynamique entre les espèces gazeuses et condensées en fonction de la tension de vapeur saturante de la phase gazeuse et de la constante de Henry caractérisant la phase aqueuse de l'aérosol. Pour ce calcul, l'eau résultante et le pH issus de l'équilibre thermodynamique inorganique sont utilisés. Le schéma MPMPO considère que deux phases sont présentes dans l'aérosol : une phase aqueuse et une phase organique. Chacune de ces deux phases est constituée des aérosols présents dans l'atmosphère de la manière suivante : dans la phase organique se trouve un mélange d'aérosol organique primaire ( $OC_p$ ) et d'aérosol organique secondaire (*SOA*). La phase aqueuse est composée d'eau (calculée précédemment), des ions inorganiques ainsi que de certaines molécules organiques secondaires capables de se dissoudre dans la phase aqueuse (acides). La dissociation et la dissolution des espèces dans cette phase se fait selon la loi de Henry et des constantes propres à chaque espèce qui sont associées. Le schéma MPMPO reposant sur le même schéma réactionnel chimique que ReLACS2, il distingue également les *SOA* selon les mêmes dix classes suivant leur caractéristiques.

<b>SOA Groupe 1</b>	<b>Une fois dissociable</b>
AP1 type	2-nitrooxymethyl-6-methyl-phenol
AP6 type	4-nitrooxymethyl-benzoic acid
UR31 type	2-(dimethyl-propenoic acid)-benzoic acid
<b>SOA Groupe 2</b>	<b>Une fois dissociable</b>
UR2 type	3-hydroxy-4-methyl-benzoic acid
UR14 type	2-nitro-4-methyl-benzoic acid
ADAC type	lumped aromatic diacids (terephthalic acid)
RP14 type	2-(dimethyl-propenal)-benzaldehyde
RP19 type	4-hydroxy-3, 5-dimethyl-2, 4-hexadiendial
RPR7 type	4-formyl-benzoic acid
<b>SOA Groupe 3</b>	<b>Une fois dissociable</b>
AP10 type	1-methyl-2-nitrooxymethyl-naphthalene
UR11 type	1, 2-dimethyl-3-hydroxy-naphthalene
UR15 type	1, 2-dimethyl-3-nitro-naphthalene
<b>SOA Groupe 4</b>	<b>Non dissociable</b>
AP11 type	8-hexadecylnitrate
AP12 type	8-hydroxy-11-hexadecylnitrate
UR20 type	11-hydroxy-8-hexadecanone
UR34 type	8-hexadecanone
<b>SOA Groupe 5</b>	<b>Non dissociable</b>
UR5 type	1-methyl-3-hydroxy-4-isopropyl-1, 2-cyclohexane epoxide
UR6 type	2-hydroxy-3-isopropyl-6-methyl-cyclohexanone
AP7 type	1-methyl-1-nitrato-2, 3-dihydroxy-4-isopropyl-cyclohexane
AP8 type	1-methyl-4-nitrato-4-isopropyl-5-hydroxy-cyclohexene
<b>SOA Groupe 6</b>	<b>Deux fois dissociable</b>
UR21 type	keto-propanoic acid
UR28 type	oxalic acid
<b>SOA Groupe 7</b>	<b>Deux fois dissociable</b>
UR26 type	4, 5-dimethyl-6-keto-2, 4-heptadienoic acid
UR29 type	4-hydroxy-3, 5-dimethyl-2, 4-hexadiendioic acid
UR30 type	2-methyl-5-carboxy-2, 4-hexadiendioic acid
RP13 type	2-carboxyl-5-methyl-2, 4-hexadiendial
RP17 type	4-hydroxy-3, 5-dimethyl-2, 4-hexadienalic acid
RP18 type	2-methyl-5-formyl-2, 4-hexadiendioic acid
<b>SOA Groupe 8</b>	<b>Non dissociable</b>
RPR9 type	4-hydroxy-3, 5-dimethyl-2, 4-hexadiendial
RP12 typ	: 2-methyl-5-formyl-2, 4-hexadiendia

**Tab. 3.5:** Descriptions des 10 classes de SOA considérées, avec la propriété de dissociation associée, les composés gazeux parents et pour chaque composé l'espèce chimique représentative. (Griffin et al., 2002)

<b>SOA Groupe 9</b>	<b>Une fois dissociable</b>
UR3 type	2-hydroxy-3-isopropyl-6-oxo-heptanoic acid
UR23 type	3-isopropyl-4-hydroxy-2-butenic acid
UR8 type	3-isopropyl-6-keto-3-heptenoic acid
<b>SOA Groupe 10</b>	<b>Non dissociable</b>
UR7 type	3, 7-dimethyl-6-keto-3-octenal
UR17 type	2-hydroxy-3-isopropyl-hexadial

**Tab. 3.6:** Descriptions des 10 classes de SOA considérées, avec la propriété de dissociation associée, les composés gazeux parents et pour chaque composé l'espèce chimique représentative (suite).





## Chapitre 4

# Développement et validation d'un module de calcul en ligne des propriétés optiques des aérosols

### Sommaire

---

4.1	Contexte scientifique et objectifs . . . . .	65
4.2	Description du module de calcul des propriétés optiques des aérosols : Premier article . . . . .	66
4.3	Conclusions . . . . .	80

---

### 4.1 Contexte scientifique et objectifs

Il existe de nombreuses incertitudes quant aux forçages radiatifs des aérosols urbains, notamment dû au fait que la nature physico-chimique des particules urbaines présente de fortes variabilités tant temporelles que spatiales. Leurs propriétés optiques découlant essentiellement de leur caractérisation physique (taille) et chimique (composition), les particules peuvent ainsi avoir des impacts opposés conduisant soit à un refroidissement, soit à un réchauffement de la couche atmosphérique.

Pour estimer et quantifier les effets radiatifs des aérosols de l'échelle globale à l'échelle locale, la modélisation constitue une fois de plus l'outil le mieux adapté. Cependant, les versions actuelles de la plupart des modèles atmosphériques 3D à fine échelle ne calculent pas explicitement en ligne les propriétés optiques des particules. Malgré une résolution précise de l'évolution des particules d'aérosol, leurs propriétés optiques sont généralement déduites d'une climatologie ou d'une paramétrisation simple fonction seulement de la concentration (*Kinne, 2006; Solomon et al., 2008*). Or dans des cas d'étude présentant des particules atmosphériques avec une forte

variabilité spatiale et temporelle, comme par exemple les aérosols urbains dont la taille et la composition chimique évoluent rapidement, ces méthodes ne permettent pas de quantifier et d'identifier les impacts radiatifs des particules de façon précise.

Dans les études à fines échelles portant sur les aérosols, l'évolution du vieillissement des particules doit être calculée à chaque pas de temps. Cependant, bien que la théorie qui détermine les propriétés optiques des particules sphériques homogènes soit aujourd'hui relativement bien connue (*Mie*, 1908), le coût en temps de calcul de la résolution des équations qui permettent de déterminer ces propriétés est tel qu'il est impossible de les résoudre en ligne en chaque point de grille du modèle et à chaque pas de temps.

Ce chapitre expose le développement et la validation d'un module de calcul en ligne des propriétés optiques des aérosols en fonction de leur taille et de leur composition chimique. Ce module repose sur la construction de tables (look-up tables) dépendant à la fois des paramètres descriptifs de la granulométrie des particules (rayon médian et écart-type de la loi lognormale de chaque mode), et de la composition chimique des particules. De ces paramètres est ensuite déduit un indice de réfraction équivalent, nécessaire au calcul des propriétés optiques des particules atmosphériques. Cette partie est exposée sous la forme d'un article publié dans la revue *Geoscientist Model Development* (*Geosci. Model Dev.*, 3, 553-564, doi :10.5194/gmd-3-553-2010).

## 4.2 Description du module de calcul des propriétés optiques des aérosols : Premier article

## Résumé

Obtenir une description correcte des propriétés optiques des aérosols en fonction d'un aérosol complexe et évoluant physiquement et chimiquement est à l'heure actuelle extrêmement coûteux en temps de calcul. Le but de cette étude est de proposer un nouveau module numérique pour calculer les propriétés optiques des aérosols complexes à faible coût afin de pouvoir être mis en oeuvre dans les modèles atmosphériques. Cette méthode vise à calculer en ligne les propriétés optiques en fonction d'un indice de réfraction complexe déduit de la composition chimique de l'aérosol et des paramètres définissant la distribution en taille des particules.

La construction de look-up tables à partir des parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction, ainsi que des paramètres décrivant la distribution en taille des particules, sera également explicitée. Cette approche est ensuite validée par des observations acquises durant la campagne EUCAARI (EUropean integrated project on aerosol Cloud Climate AiR quality Interactions) sur le site de Cabauw (Pays-Bas) durant le mois de mai 2008. Le temps de calcul nécessaire au fonctionnement du module sera également estimé.

Ces comparaisons montrent que le module arrive à reproduire les comportements absorbants et diffusants des aérosols durant la plupart des quinze jours d'observation, et ce avec un très faible temps de calcul.

# Development of an online radiative module for the computation of aerosol optical properties in 3-D atmospheric models: validation during the EUCAARI campaign

B. Aouizerats<sup>1</sup>, O. Thouren<sup>1</sup>, P. Tulet<sup>1,2</sup>, M. Mallet<sup>3</sup>, L. Gomes<sup>1</sup>, and J. S. Henzing<sup>4</sup>

<sup>1</sup>CNRM/GAME, Météo-France/CNRS-INSU, URA1357, 42 av G. Coriolis, 31057 Toulouse, France

<sup>2</sup>LACy, Université de La Réunion, 15 av René Cassin, 97715 Saint-Denis, France

<sup>3</sup>LA, Université de Toulouse, 14 av Ed Belin, 31400 Toulouse, France

<sup>4</sup>Netherlands Organisation for Applied Scientific Research, TNO, 80015 Utrecht, The Netherlands

Received: 30 April 2010 – Published in Geosci. Model Dev. Discuss.: 1 June 2010

Revised: 7 October 2010 – Accepted: 8 October 2010 – Published: 25 October 2010

**Abstract.** Obtaining a good description of aerosol optical properties for a physically and chemically complex evolving aerosol is computationally very expensive at present. The goal of this work is to propose a new numerical module computing the optical properties for complex aerosol particles at low numerical cost so that it can be implemented in atmospheric models. This method aims to compute the optical properties online as a function of a given complex refractive index deduced from the aerosol chemical composition and the size parameters corresponding to the particles.

The construction of look-up tables from the imaginary and the real part of the complex refractive index and size parameters will also be explained. This approach is validated for observations acquired during the EUCAARI (European integrated project on aerosol cloud climate air quality interactions) campaign on the Cabauw tower during May 2008 and its computing cost is also estimated.

These comparisons show that the module manages to reproduce the scattering and absorbing behaviour of the aerosol during most of the fifteen-day period of observation with a very cheap computationally cost.

## 1 Introduction

While the greenhouse effect on global warming is quite well understood and leads to a quantification of global temperature increases, the effects of aerosol particles on the radiative budget of the atmosphere are still modelled only roughly

(Forster et al., 2007). The direct, indirect and semi-direct effects of aerosols may have opposite impacts on the Earth's radiative budget, as noted in the third and fourth reports by the Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC, 2007), and there are still large uncertainties of radiative forcing by anthropogenic aerosols.

Modelling the aerosol particles' size distribution, chemical composition, optical properties, and impacts on radiative forcing is therefore a major objective in the understanding and quantification of the effects of aerosols on the atmosphere radiative budget. Atmospheric research models such as meteorological forecasting models and regional-global climate models, generally use climatology or parametrization of the aerosol optical properties in order to quantify their impacts on radiations (Kinne et al., 2006; Solmon et al., 2008).

Studying aerosols with meso- to fine-scale models may imply high variability of the physical and chemical properties, such as the description of size distributions and chemical compositions of urban polluted aerosols (Costabile et al., 2009; Raut and Chazette, 2008). In such cases, the temporal and spatial variability of aerosol size and chemical description is so high that online coupling with a radiative module is the only way to obtain a good quantification of the aerosol optical properties, radiative direct forcing and feedback. The current methods used to quantify the optical properties are not accurate enough to take the high variability of aerosol composition and size distribution into account.

At those resolutions, it is imperative to consider the ageing of the aerosol and then, the evolution of the size distribution and the chemical composition of the aerosol particles. For example, the absorptivity of primary absorbing carbonaceous particles is due to the coating of carbonaceous aerosols by secondary hydrophilic particles (Jacobson, 2000;



Correspondence to: B. Aouizerats  
(benjamin.aouizerats@cnrm.meteo.fr)

Mikhailov et al., 2006). In parallel, the increase of the particle size also impacts the scattering and absorbing power of the aerosol (Seinfeld and Pandis, 1997). In that sense, it is necessary to have a good description of both chemical and physical aspects. Modelling the chemical evolution of aerosols and computing the aerosol optical properties as prognostic variables is numerically very expensive. Because of this high cost, which results from an iterative computation of particle optical properties, the computation of aerosol optical properties as a function of its size distribution and chemical composition is never performed within meso-scale atmospheric models nor within weather models. In several models, the impacts of aerosols on radiation is parameterized either by climatology tables or as a function of the main compounds concentration deduced from the literature (Kinne et al., 2006). In Grini et al. (2006), the effect of dust particles on radiation is studied with an evolving aerosol size distributions, but the aerosol is supposed to be only one kind of chemical composition. We propose a more complex approach, with a number of aerosol compounds taken into account higher than in usual methods (Lesins et al., 2002).

In this context, the goal of the present work is to set up a computationally cheap module depending on a complex physical and chemical aerosol description to compute the optical properties at six short wavelengths.

The EUCAARI (European integrated project on aerosol cloud climate air quality interactions) field experiment (Kulmala et al., 2009) which took place during May 2008 near Cabauw (Netherlands) provided us with a complete data set of aerosol measurements for the validation of the work. The Cabauw tower was fully equipped with a set of instruments measuring various aerosol properties. The location of the Cabauw site between the North Sea and the industrialized area of Rotterdam allowed different aerosol types, from polluted to maritime air masses, to be observed.

The first section will describe the bases used to compute the aerosol optical properties, and highlight the sensitivity of those parameters as a function of both physical and chemical aerosol description. Then the building of look-up tables in order to save time during the computation will be explained, and the resulting optical properties will be evaluated in regard of Mie computations. Finally, the comparisons between observations acquired during the EUCAARI campaign at the Cabauw tower and computations from the module will be presented.

## 2 Computation of optical parameters

In order to compute the aerosol optical properties, we applied the Mie theory (Mie, 1908) assuming that the aerosol was made up of spherical particles. Relative to other theories that exist to compute the optical properties of a particle, the Mie theory remains the method that is the most commonly used at present. For a given complex refractive index  $k=k_r+i\cdot k_i$  and a given effective radius  $r$  at a wavelength  $\lambda$ , the Mie theory

computes the extinction, absorption and scattering, efficiency of the particle which are noted  $Q_{\text{ext,abs,sca}}(r,\lambda)$ , respectively, and the phase function  $P(\theta,r,\lambda)$ . The asymmetry parameter  $g'$  can be defined from the phase function as:

$$g'(r,\lambda) = \frac{1}{2} \int_0^\pi P(\theta,r,\lambda) \cos(\theta) \sin(\theta) d\theta$$

Because of the high cost of the explicit fluxes computation, the radiative models commonly use the following three optical parameters: the extinction coefficient or  $b$ , the single scattering albedo (ratio of scattering to extinction) or SSA, and the asymmetry parameter for the aerosol population,  $g$ , by integrating  $g'$  over the radius. Considering the aerosol size distribution  $n(r)$ , the optical parameters can be computed for a given radius  $r$  as:

$$b(\lambda) = \int_0^{+\infty} Q_{\text{ext}}(r,\lambda) \pi r^2 n(r) dr$$

$$\text{SSA}(\lambda) = \frac{\int_0^{+\infty} Q_{\text{sca}}(r,\lambda) \pi r^2 n(r) dr}{\int_0^{+\infty} Q_{\text{ext}}(r,\lambda) \pi r^2 n(r) dr}$$

$$g(\lambda) = \frac{\int_0^{+\infty} r^2 n(r) Q_{\text{sca}}(r,\lambda) g'(r,\lambda) dr}{\int_0^{+\infty} r^2 n(r) Q_{\text{sca}}(r,\lambda) dr}$$

One of the first steps to apply the Mie theory to an aerosol particle with a complex chemical composition, is to define a refractive index for the whole aerosol.

It is important to consider an evolving refractive index for the aerosol. Indeed, the main objective of this study is to perform an online computation of the aerosol optical properties considering an aerosol evolving through its size distribution and its chemical composition. The purpose of this study is to set up a module for a large set of aerosol compositions. As discussed in Chylek et al. (2000), the Maxwell-Garnett mixing rule suits the best for situations with many insoluble particles suspended in solution. Yet, the small scale studies about aerosol particles and with a high spatial variability usually take place in urban areas, which precisely show those conditions.

In order to define a refractive index corresponding to an aerosol particle composed of different chemical components, the Maxwell-Garnett equation (Maxwell-Garnett, 1904) as defined in Tombette et al. (2008) allows us to link the chemical composition of the aerosol to a refractive index and then to take the particle size distribution into account.

### 2.1 The Maxwell-Garnett equation

This approach considers the aerosol as being made up of an inclusion and an extrusion.

The inclusion is composed of the primary and solid parts of the aerosol, whereas the extrusion is composed of the secondary and liquid parts of the aerosol. Then the effective refraction index is:  $k_{\text{aer}} = \epsilon^2$

$$\text{with } \epsilon = \epsilon_2 \frac{\epsilon_1 + 2\epsilon_2 + 2f(\epsilon_1 - \epsilon_2)}{\epsilon_1 + 2\epsilon_2 - f(\epsilon_1 - \epsilon_2)} \text{ where}$$

**Table 1.** Refractive indices used for the main aerosol species at six wavelengths from Krekov (1993) and from Tulet et al. (2008) for dust.

Specie/ Wavelength	217.5 nm	345 nm	550 nm	925 nm	2.285 $\mu\text{m}$	3.19 $\mu\text{m}$
BC	1.80–0.74 <i>i</i>	1.80–0.74 <i>i</i>	1.83–0.74 <i>i</i>	1.88–0.69 <i>i</i>	1.97–0.68 <i>i</i>	2.10–0.72 <i>i</i>
OCp	1.45–0.001 <i>i</i>	1.45–0.001 <i>i</i>	1.45–0.001 <i>i</i>	1.46–0.001 <i>i</i>	1.49–0.001 <i>i</i>	1.42–0.0126 <i>i</i>
Du	1.448–0.00292 <i>i</i>	1.448–0.00292 <i>i</i>	1.478–0.01897 <i>i</i>	1.4402–0.00116 <i>i</i>	1.41163–0.00106 <i>i</i>	1.41163–0.00106 <i>i</i>
H <sub>2</sub> O	1.36–3.60E–8 <i>i</i>	1.34–3.00E–9 <i>i</i>	1.33–1.80E–8 <i>i</i>	1.33–5.75E–7 <i>i</i>	1.31–1.28E–4 <i>i</i>	1.42–2.54E–1 <i>i</i>
NO <sub>3</sub> <sup>–</sup>	1.53–5.00E–3 <i>i</i>	1.53–5.00E–3 <i>i</i>	1.53–6.00E–3 <i>i</i>	1.52–1.30E–2 <i>i</i>	1.51–1.30E–2 <i>i</i>	1.35–1.00E–2 <i>i</i>
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.51–5.00E–4 <i>i</i>	1.35–1.40E–2 <i>i</i>
SO <sub>4</sub> <sup>2–</sup>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.52–5.00E–4 <i>i</i>	1.51–5.00E–4 <i>i</i>	1.35–1.40E–2 <i>i</i>
SOA	1.45–0.001 <i>i</i>	1.45–0.001 <i>i</i>	1.45–0.001 <i>i</i>	1.46–0.001 <i>i</i>	1.49–0.001 <i>i</i>	1.42–0.0126 <i>i</i>

–  $\epsilon_i$  are the complex effective dielectric (square root of the refractive index) constants in which subscripts 1 and 2 stand for the inclusion and the extrusion.

–  $f$  is the volumic fraction of inclusion.

In the computation it is assumed that aerosol particles are only composed of primary Organic Carbon (OCp), Black Carbon (BC), dust, nitrates (NO<sub>3</sub><sup>–</sup>), sulphates (SO<sub>4</sub><sup>2–</sup>), ammonium (NH<sub>4</sub><sup>+</sup>), water (H<sub>2</sub>O) and Secondary Organic Aerosols (SOA).

The inclusion or core of the aerosol is then composed of the OCp, the BC and the dust whereas the extrusion or shell is composed of NO<sub>3</sub><sup>–</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2–</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, H<sub>2</sub>O and SOA.

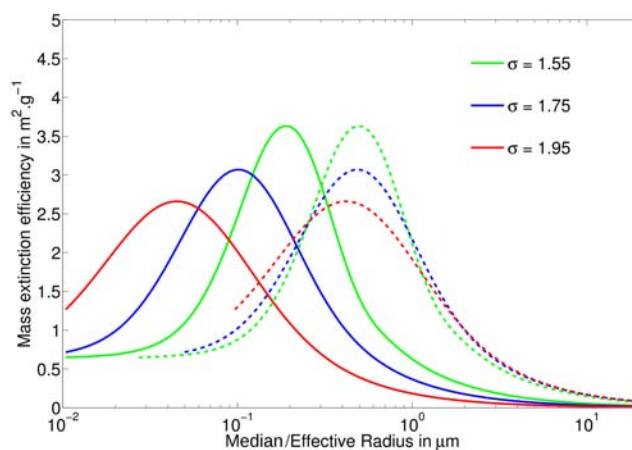
The refractive index for each component considered is as defined by Krekov (1993) and Tulet et al. (2008) and shown in Table 1.

## 2.2 Sensitivity of optical parameters

Here, we conducted various sensitivity tests based on variations of the aerosol size distribution (Sect. 2.3.1) and chemical composition (Sect. 2.3.2). Although these results are well known by the radiation community, the goal of this section is to highlight the non-linearity of the aerosol optical properties evolution and the necessity of the proposed parametrization. In order to show the importance of considering a consistent size distribution and chemical composition for the aerosol, Mie computations were performed with different refractive indices and different size distributions.

### 2.2.1 Sensitivity to size distribution

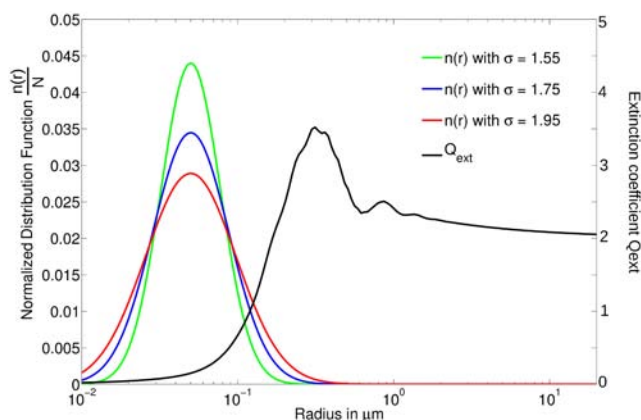
The size distributions were represented by a lognormal function and described by a median radius and a geometric standard deviation. The effective radius, representing the predominant radius with respect to radiation, is expressed as  $r_{\text{eff}} = r_v^3 / r_s^2$  with  $r_v$ ,  $r_s$  standing respectively for the volume mean radius and surface mean radius depending on the geometric standard deviation.



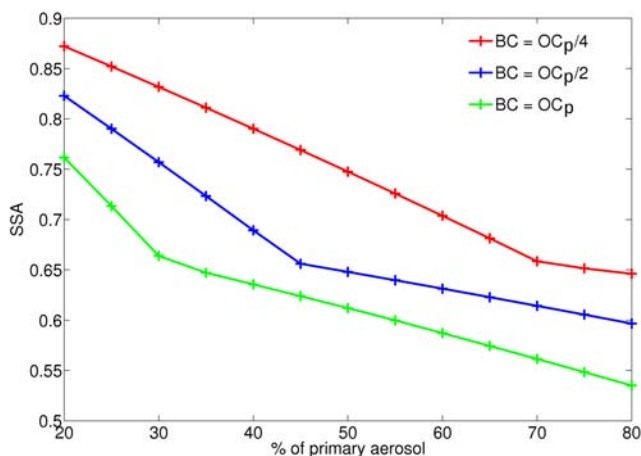
**Fig. 1.** Mass extinction efficiency as a function of the median radius in solid lines and in function of the effective radius in dashed lines for three geometric standard deviation at the wavelength of 550 nm and a complex refractive index of 1.55–0.1*i*.

Figure 1 shows that for a given refractive index of 1.55–0.1*i*, the increase of the median radius and the geometric standard deviation has a direct impact on the mass extinction efficiency distribution. For the three geometric standard deviations considered: 1.55, 1.75 and 1.95, the evolution of the mass extinction efficiency is non-linear with respect to both the median radius and the effective radius, and can show a difference of 40%. The maximum value for each geometric standard deviation considered stands for a different median radius and can reach 3.6 m<sup>2</sup> g<sup>–1</sup> for a geometric standard deviation of 1.55 whereas it reaches only 2.5 m<sup>2</sup> g<sup>–1</sup> for a geometric standard deviation of 1.95.

Because aerosol size distributions are usually expressed according to the median radius and also because the non-linearity of the parameters stand as a function of both effective and median radius, the results will be shown as a function of the median radius in the rest of the study, for ease of understanding. Figure 2 shows the extinction efficiency  $Q_{\text{ext}}$ , drawn in black and the three size distributions corresponding



**Fig. 2.** Extinction efficiency as a function of radius overlaid on the three size distributions corresponding to the same geometric standard deviations as in Fig. 1 and the same median radius of  $0.045 \mu\text{m}$  and a refractive index of  $1.55\text{--}0.1i$ .



**Fig. 3.** Single scattering albedo at the 550 nm wavelength versus percentage of primary aerosol for 3 different core compositions with a median radius of  $0.15 \mu\text{m}$  and a geometric standard deviation of 1.65.

to the same median radius of  $0.045 \mu\text{m}$  and the three geometric standard deviation are overlaid in red blue and green. The mass extinction efficiency results from the integration of the extinction efficiency multiplied by the size distribution (and a factor of  $\pi r^2$ ). Figure 2 shows that the non-linearity of the extinction efficiency versus the median or effective radius mainly comes from the high fluctuations of the extinction efficiency up to  $2 \mu\text{m}$ .

### 2.2.2 Sensitivity to chemical composition

The influence of the chemical composition of the aerosol is shown in Fig. 3. The aerosol is considered to have a fixed median radius of  $0.15 \mu\text{m}$ , a fixed geometric standard deviation of 1.6, and a fixed total mass concentration of  $10 \mu\text{g m}^{-3}$ .

We calculated the aerosol SSA for different refractive indices by using the Maxwell-Garnett equation (see Sect. 2.2), considering an aerosol composed of 20 to 80% of core (primary aerosol), and 80 to 20% of a shell of secondary species composed with the following mass ratio:  $0.75 \text{NH}_4^+$ ,  $1 \text{H}_2\text{O}$ ,  $1.35 \text{SO}_4^{2-}$ ,  $0.9 \text{NO}_3^-$  and 1 SOA to ensure the electroneutrality of the secondary solution.

The resulting SSA is computed for 3 different core compositions depending of the BC/OCp ratio, and for a core proportion varying from 20 to 80% of the total aerosol mass in steps of 5%. For example, an aerosol composed of 20% primary species with  $\text{BC}=0.25 \text{OCp}$  inside the core, gives a SSA computed at 550 nm of 0.87 whereas for an aerosol composed of 80% primary species with the same OCp/BC ratio, the SSA value at the same wavelength is 0.64.

It is noteworthy that, for the same primary mass, the core composition is also very important for the computation of the SSA. For a primary mass of 50%, and for as much BC as OCp, the SSA computed reaches 0.62 whereas, with  $\text{BC}=1/4 \text{OCp}$  the SSA value is 0.77.

This is consistent with our expectations because a low SSA means that the extinction efficiency is mainly caused by absorption, and the SSA has lower values when the black carbon concentration, which is a primary and highly absorbing component, increases.

The same phenomenon is observed at the six wavelengths considered but is not shown here.

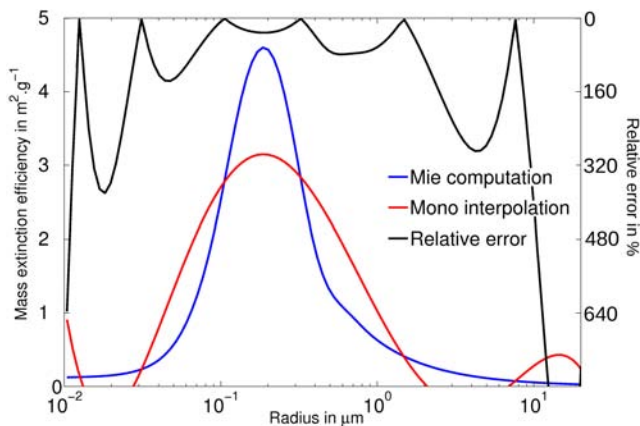
## 3 Methodology for the building of the look-up tables

An analytical solution was used, employing a look-up table of aerosol optical properties and a mathematical analytical function approximating the Mie computation.

In order to minimize the number of stored terms, the construction of the look-up tables was adjusted in two different ways described thereafter.

### 3.1 Description of the polynomial interpolation method

The first way to minimize the number of stored terms was by approximating the optical parameters with a double 5th degree polynomial interpolation according to the median radius. Considering the median radius as a stored input parameter would be consistent for no more than a hundred cases as pointed out by Grini et al. (2006). To avoid this constraint, the computation and storage of the fifth degree polynomial coefficients that best fitted the optical parameters evolving according to the median radius was taken. In this way, the input terms of the look-up tables are the complex refractive index and the geometric standard deviation. However, in several cases as shown in Fig. 4, the shape of the Mie resulting parameter evolution was poorly reproduced by the best fitted mono polynomial interpolation. The mean relative errors were around 200% and showed a difference of  $1.5 \text{m}^2 \text{g}^{-1}$



**Fig. 4.** Mass extinction efficiency (left) at 550 nm for given values of  $\sigma$  and  $k_r$ ,  $k_i$  as a function of the radius for the Mie computation versus the mono polynomial interpolation and the relative error (right).

at the maximum of mass extinction efficiency. For this reason the interpolation of the curve was divided into two different curves defined by the evolution from the first radius considered to radius corresponding to the maximum of the curve  $r_{\text{cut}}$ , and from  $r_{\text{cut}}$  to the last radius considered. Then as shown on Fig. 5, for each case considered, the two fifth degree polynomial coefficient and the  $r_{\text{cut}}$  were stored. The total number of stored terms was 13, which is around an eighth of the 100 stored for a discrete radius computation.

To summarize, the polynomial coefficients stored corresponding to the polynomial  $P(r)$  follow the equation:

$$P(r) =$$

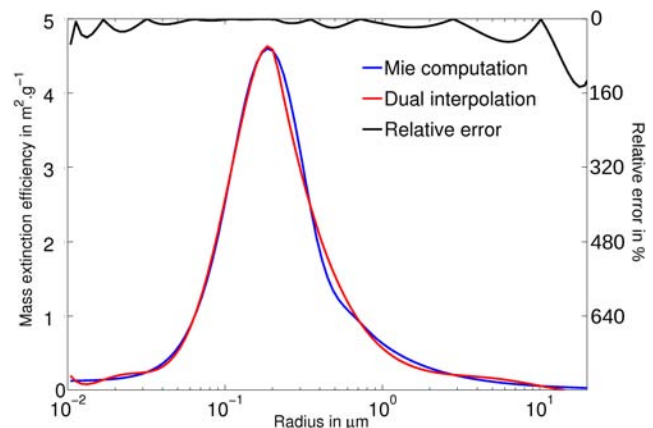
$$\begin{cases} a_{10} + a_{11}r + a_{12}r^2 + a_{13}r^3 + a_{14}r^4 + a_{15}r^5 & \text{if } r < r_{\text{cut}} \\ a_{20} + a_{21}r + a_{22}r^2 + a_{23}r^3 + a_{24}r^4 + a_{25}r^5 & \text{if } r > r_{\text{cut}} \end{cases}$$

where  $r_{\text{cut}}$  is defined as the median radius corresponding to the maximum value of the optical parameter, and the 12  $a_{i,j}$ , with  $i = 1, 2$ ,  $j = 0$  to 5 are stored in the look-up table. The coefficients  $a_{i,j}$  were computed by a least square approach for the fitting of the two parts of the curve.

### 3.2 Range of parameters chosen

The input terms of the look-up tables are then the imaginary and real part of the complex refractive index of the aerosol, and the geometric standard deviation of the size distribution. The second way to minimize the stored terms was by choosing of input terms in the look-up tables so as to obtain pseudo linearity between adjacent pairs of resulting optical properties.

Tests were performed to select a minimum amount of stored terms (not shown here), and six  $k_i$ , eight  $k_r$  and eight  $\sigma$  were chosen because of the pseudo linearity between pairs



**Fig. 5.** Mass extinction efficiency (left) at 550 nm for given values of  $\sigma$  and  $k_r$ ,  $k_i$  as a function of the radius for the Mie computation versus the dual polynomial interpolation and the relative error (right).

**Table 2.** Input stored terms into the look-up tables for the polynomial interpolation.

$k_r$	$k_i$	$\sigma$	$\lambda$
1.45	-0.001	1.05	217.5 nm
1.50	-0.006	1.25	345 nm
1.55	-0.008	1.45	550 nm
1.60	-0.02	1.65	925 nm
1.65	-0.1	1.85	2.285 $\mu\text{m}$
1.70	-0.4	2.05	3.19 $\mu\text{m}$
1.75	×	2.25	×
1.80	×	2.45	×

of terms. This selection method allowed us to interpolate between the results of each optical property corresponding to the two stored values. The stored terms of the input parameters as well as the 6 wavelengths are reproduced in Table 2. As an example, if the value of the geometric standard deviation is 1.52, the corresponding aerosol optical properties are the weighted interpolations between the optical properties corresponding to the stored geometric standard deviations of 1.45 and 1.65.

As in most cases, if we position ourselves between two stored  $k_i$ ,  $k_r$  and  $\sigma$  we compute the eight polynomials corresponding for the eight different combinations and we interpolate with the appropriate weight for obtaining the weighted optical properties. Although the computation is performed at 6 wavelengths which may be considered as input parameters, there is no possible interpolation between the wavelengths as performed for the other input parameters.

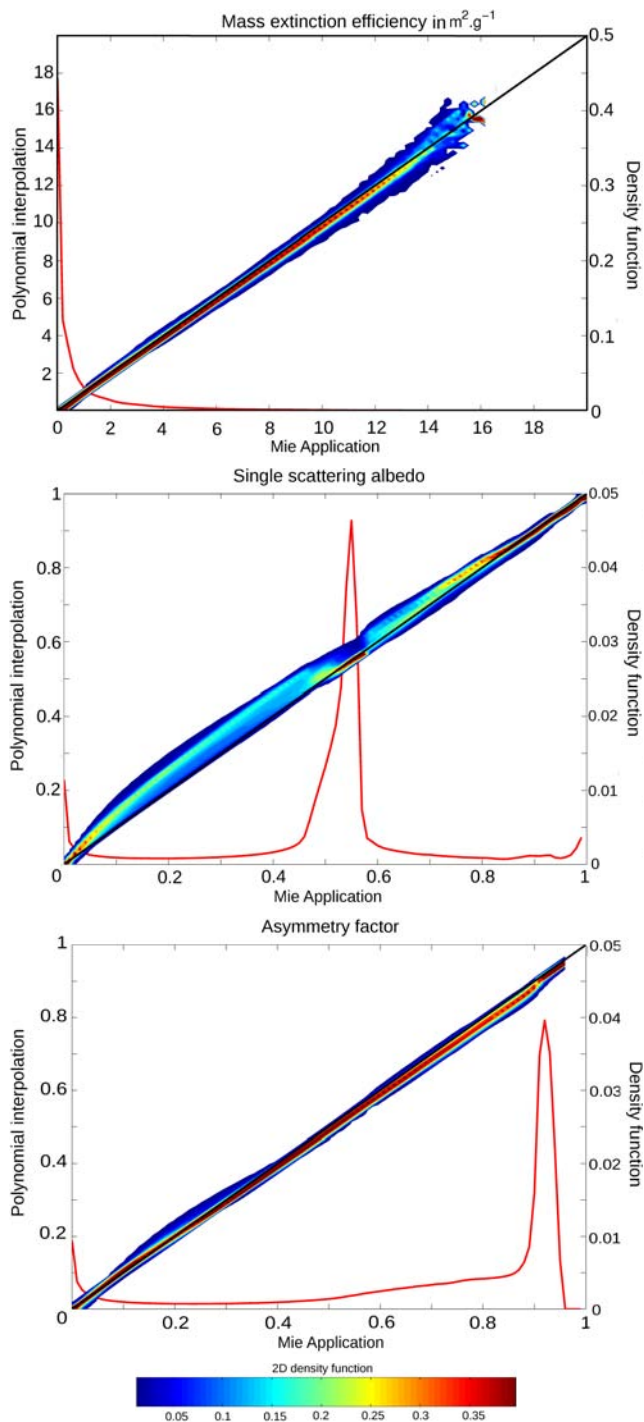


### 3.3 Evaluation of the method in regard of direct Mie computations

In order to evaluate the dual polynomial interpolation method, a comparison between the resulting and the direct Mie computed aerosol optical properties was performed. This comparison was done at the 6 previously explicated  $\lambda$ , for 100 considered values of median radii, and for 20  $k_r$ , 20  $k_i$  and 18  $\sigma$  equally spaced in order not to be located at the stored values, leading to 4 320 000 comparison points for the 3 optical parameters. Because the computed parameters stands for values of  $k_r$ ,  $k_i$  and  $\sigma$  which require an interpolation by the module (they do not match to the stored values), this comparison allows to evaluate the module in regard of both polynomial interpolation method and choice of input stored terms.

Figure 6 shows the result of the comparison for the three optical properties between the dual polynomial interpolation module and the direct Mie application. On the top (respectively middle and bottom) is represented the mass extinction efficiency, single scattering albedo and asymmetry parameter, computed by the dual polynomial interpolation as a function of the same parameter computed from the direct Mie application. Due to the very high number of scatter plots (4 320 000 for each optical parameter), the comparison is shown as a 2-D density function computed over 100 equally splitted bins. For each bin, the 2-D density function is computed as a function of the number of sampling included in the bin. The first coloured contour (dark blue) stands for 99% of the optical parameters computed by the dual polynomial interpolation included within the area. The 1-D density function of the Mie computed optical parameters are represented by the continuous red lines and shows to which optical parameter values do the most cases stand for. The 1-D density function is computed as a function of the total number of sampling.

First, Fig. 6 shows that for the three optical parameter computations, the dual polynomial interpolation method manages to reproduce the values computed by the direct Mie application. Indeed, almost all of the parameters computed by the module follow the linear curve  $x=y$  represented by a continuous black line. The correlation coefficients value standing for the three optical parameters are respectively 0.9992, 0.9946 and 0.9994. The most large differences stand for extreme cases with very low median radius or very high geometric standard deviation. As an example, the highest values of mass extinction efficiencies which can reach more than  $15 \text{ g m}^{-2}$  stand for very unusual combinations of parameters such as a geometric standard deviation below 1.4, a real part of the refractive index of 1.80. These extreme cases all occur on the first wavelength. We can also notice that for the single scattering albedo, the highest dispersion stand for very low values, meaning that the extinction is mainly absorbing. Moreover, the most computed cases, represented by the continuous red line, occur where the density function is



**Fig. 6.** Comparison of the optical properties (mass extinction efficiency, single scattering albedo and asymmetry parameter) computed by the dual interpolation method (y-axis) and the direct Mie application (x-axis) represented by the 2-D density function in color. Overlaid is the 1-D density function (right scale, continuous red line) of the Mie computed parameters, and the continuous black line represents  $x=y$  regression.

the highest, and at this points there is a good linearity between the two methods.

#### 4 Validation during the EUCAARI campaign

For the validation of the module, a full set of measured data for the inputs and of the outputs was required. Concerning inputs, a description of the aerosol size distribution giving the median radius and the geometric standard deviation for each mode, associated with the aerosol chemistry giving the aerosol composition was needed. Concerning outputs, the measurements of the aerosol optical properties was also necessary.

During the EUCAARI field experiment, a complete set of instruments were available at the Cabauw tower. Between 15 and 29 May 2008, all the selected instruments requested to test this module were operational.

#### 4.1 Description of observations

##### 4.1.1 Period and instruments

The data were processed to give one average value over 30 min for each parameter during the 15 days.

- The aerosol size distribution was deduced after merging the size spectral observations from a SMPS (model TSI 3034) and an APS (model TSI 3321): the SMPS measures the aerosol size distribution between 10 and 500 nm, and the APS between 500 nm and 20  $\mu\text{m}$ . All the measurements were made in dry conditions (RH < 50%).

Then, a lognormal fit that best approached the observed distribution was found. At each time step, a least square approach gave the median radius, the geometric standard deviation and the mass concentration for each aerosol mode observed by both instruments. To link the number of aerosol directly measured to the mass of aerosol, the assumption of spherical particles with a density of 2.5 g cm<sup>-3</sup> was done.

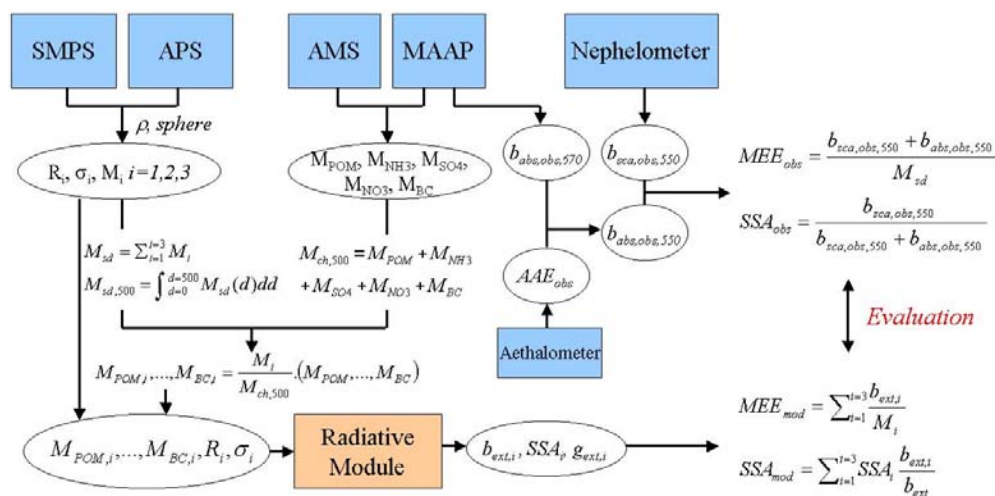
- The chemical composition of the aerosol was deduced from the observations of an aerosol mass spectrometer (AMS, cTOF type) and a multi angle absorption photometer (MAAP model 5012). The AMS gave us the mass concentration of particulate organic matter (POM), NO<sub>3</sub><sup>-</sup>, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> at each time step and the black carbon (BC) concentration was deduced from the MAAP measurements. The water concentration was deduced from the thermodynamical equilibrium EQSAM (Metzger et al., 2002) on dry conditions.
- The scattering coefficient at 550 nm was measured by a nephelometer (model TSI 3563). A truncation correction is performed on the nephelometer data according to Mallet et al. (2009). The absorption coefficient

was measured by the MAAP at 670 nm and deduced at 550 nm by using the absorption Angström coefficient measured with an aethalometer. All these measurements were also made in dry conditions.

A summary of the instruments and the associated aerosol properties is presented in Table 3.

##### 4.1.2 Methodology and assumptions

Figure 7 shows as a diagram the methodology used for the validation of the radiative module. Some assumptions were made from the observations. The choice was to split the POM between primary organic carbon and secondary organic carbon with a 60–40% distribution according to Dentener et al. (2006). A second assumption was to split the aerosol compounds equally between modes. The SMPS+APS observations are fitted to describe the aerosol mass size distribution along three lognormal modes:  $M_i, \sigma_i, r_i$  with  $i$  for the mode index. This fit is performed according to two assumptions allowing to compute the mass concentration from the observed number concentration: the aerosol is supposed to be spherical and has a constant density  $\rho$ . From this fit is also deduced the total aerosol mass concentration  $M_{sd}$  and the aerosol mass concentration integrated from 0.01 to 0.5  $\mu\text{m}$  ( $M_{sd,500}$ ). The particle organic matter, ammonium, nitrate, sulfate, and black carbon mass concentration are deduced from the AMS+MAAP observations (respectively  $M_{POM}$ ,  $M_{NH_4}$ ,  $M_{SO_4}$ ,  $M_{NO_3}$ ,  $M_{BC}$ ). It was noticed that the AMS had a cut-off diameter of 500 nm. The total aerosol mass concentration for aerosols with a diameter inferior to 500 nm and as observed by the AMS+MAAP is also computed ( $M_{ch,500}$ ). Then, for each of the three considered mode, the mass concentration of each aerosol compounds is computed and weighted by the total mass concentration observed by the SMPS+APS ( $M_{POM,i}$ ,  $M_{NH_4,i}$ ,  $M_{SO_4,i}$ ,  $M_{NO_3,i}$ ,  $M_{BC,i}$ ). The inputs for the radiative module are then for each mode:  $M_{POM,i}$ ,  $M_{NH_4,i}$ ,  $M_{SO_4,i}$ ,  $M_{NO_3,i}$ ,  $M_{BC,i}$ ,  $r_i$ ,  $\sigma_i$ . The outputs are then for each of the  $i$ -th mode: the extinction coefficient  $b_{ext,i}$ , the single scattering albedo  $SSA_i$ , and the asymmetry parameter  $g_i$ . The aerosol optical properties are then computed for the total aerosol population: the mass extinction efficiency  $MEE_{mod}$  and the single scattering albedo  $SSA_{mod}$ . These parameter are evaluated regarding the observations. The absorption coefficient is measured by the MAAP at the wavelength of 670 nm ( $b_{abs,obs,670}$ ). The value of the absorption coefficient at the wavelength of 550 nm ( $b_{abs,obs,550}$ ) is deduced from the multiplication by the absorption Angström coefficient ( $AAE_{obs}$ ) measured by an aethalometer. Finally, the scattering coefficient is measured by the nephelometer at the wavelength of 550 nm ( $b_{sca,obs,550}$ ). The mass extinction efficiency and the single scattering albedo are then computed ( $MEE_{obs}$ ,  $SSA_{obs}$ ) and compared to the module's outputs.



**Fig. 7.** Diagram representation of the methodology used for the validation.  $\rho$  is the density considered for the aerosol particle.  $i$  is the index of the aerosol lognormal mode.  $M_i$  is the aerosol mass concentration value for the  $i$ -th mode obtained from the lognormal fit adjusted on the SMPS+APS size distribution observations.  $M_{sd}$  is the total mass concentration deduced from the fit of the SMPS+APS size distribution observations.  $M_{sd,500}$  is the mass concentration calculated from the fit of the SMPS+APS size distribution observations integrated up to 500 nm.  $M_{POM}$ ,  $M_{NH_4}$ ,  $M_{SO_4}$ ,  $M_{NO_3}$ , is the particle organic matter, ammonium, sulfate, nitrate mass concentration respectively measured by the AMS.  $M_{BC}$  is the black carbon mass concentration deduced from the MAAP.  $M_{ch,500}$  is the mass concentration deduced from the AMS+MAAP observations up to 500 nm.  $b_{abs,obs,670}$  is the absorption coefficient measured by the MAAP at the wavelength of 670 nm.  $AAE_{abs,obs}$  is the absorption Angström coefficient measured by the aethalometer. MEE is the Mass extinction efficiency.

**Table 3.** Summary of aerosol measurements on Cabauw tower during the EUCAARI campaign.

	Size distribution	chemistry	optical properties
SMPS	$D_i, \sigma_i, M_i$	×	×
APS	$D_i, \sigma_i, M_i$	×	×
AMS	×	$M_{POM}, M_{NO_3^-}, M_{SO_4^{2-}}, M_{NH_4^+}$	×
MAAP	×	$M_{BC}$	$b_{abs}$
Aethalometer	×	×	AAE
Nephelometer	×	×	$b_{scat}$

#### 4.1.3 First results from instruments

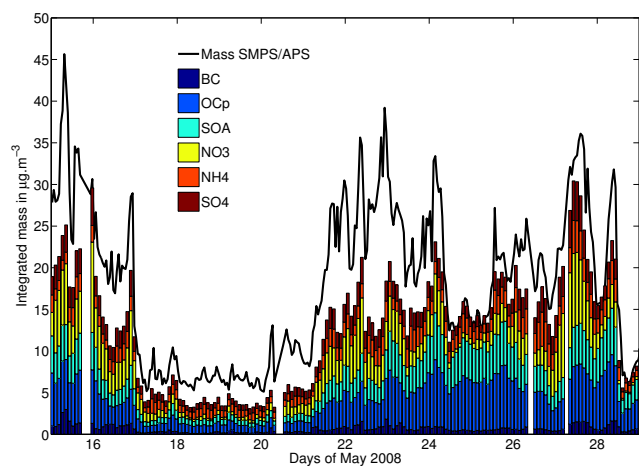
The 15-day period of the study showed different aerosol concentration level due to different regimes. As presented in Fig. 8, the aerosol composition gives us several items of information: from 15 to 17 May, the aerosol shows a continental composition; from 17 to 21 May, the low level of aerosols is characteristic of a scavenging period with a clean air mass and fresh aerosols; from 21 to 29 May, the aerosol comes again from a continental air flux and the secondary fraction of the aerosol, in particular the inorganic species, also grows in proportion. The total measured mass concentration is also represented in Fig. 8 as a black line. Also one can note that the ratio of primary aerosol to secondary aerosol remains quite stable during the fourteen days of measurements.

Figure 9 shows the evolution of the aerosol size distribution during the fourteen days of measurement. This figure is

the result of the fit applied to the SMPS+APS data and used as inputs in the module.

The Fig. 9 shows the evolution of all the size distribution parameters versus time. The maximum of mass also evolves consequently as already shown in Fig. 8. Finally, the combination of data measuring size description and chemical composition gives a good representation of the period.

It is also noticeable that the absorption Angström exponents observed by the aethalometer show values between 1.21 and 1.27 with a mean of 1.24. These values show a relatively limited dispersion, and according to bibliography (Russel et al., 2010) are in the same range than continental and urban aerosols.



**Fig. 8.** Evolution of aerosol chemical composition from AMS+MAAP and mass integrated from the SMPS and APS in  $\mu\text{g m}^{-3}$  during the fourteen days of measurement.

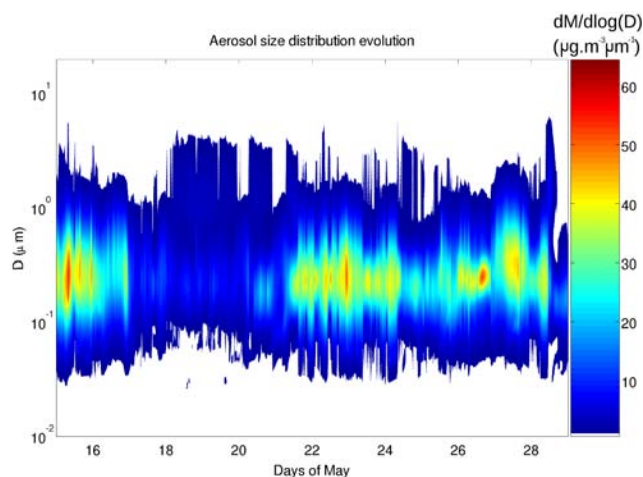
#### 4.2 Comparison of computed optical properties and observations

Figure 10 shows the single scattering albedo at 550 nm as calculated from the nephelometer and the MAAP measurements (continuous red line) and computed by the module (dashed blue line).

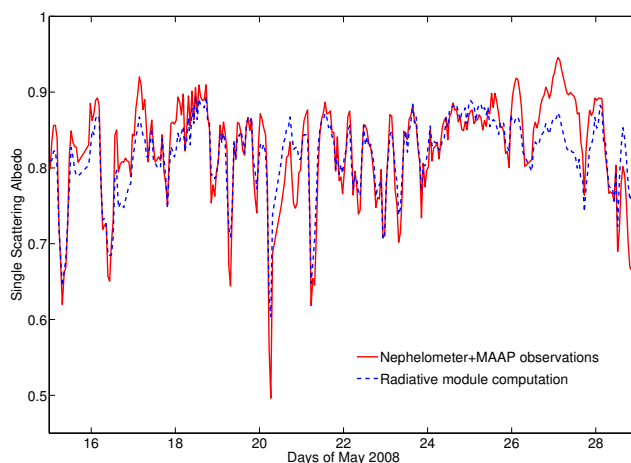
Figure 11 shows the mass extinction efficiency at 550 nm as calculated from observations (continuous red line) and computed by the module (dashed blue line). There were no instruments able to measure the asymmetry parameter during the EUCAARI campaign. Therefore, there is no comparison possible with the computed values.

First, the main trend shows that both mass extinction efficiency and single scattering albedo are correctly reproduced by the module during the 15 days. The correlation coefficient for the 15-day period and for the mass extinction efficiency is 0.94, and 0.89 for the single scattering albedo and the associated biases are 0.32 and 0.0025, respectively.

Concerning the single scattering albedo, the module mainly manages to reproduce the highest as the lowest values observed, even with high temporal variability. Single scattering albedo values observed and modelled in dry conditions fluctuate around 0.8 (with a mean value of 0.815 for the modelled values and 0.818 for the observed values during the period studied). However, some isolated measurements show low values of single scattering albedo below 0.7. Although such very low values could be unusual, recent studies (Marley et al., 2009; Gomes et al., 2008; Babu et al., 2002; Singh et al., 2005; Ganguly et al., 2006) show single scattering albedo observations showing chronic very low values below 0.6 indicating an higher concentration of absorbing aerosols. In addition, it has to be noted that the SSA observed and modelled are both under dry conditions, leading to lower SSA values compared to wet conditions.



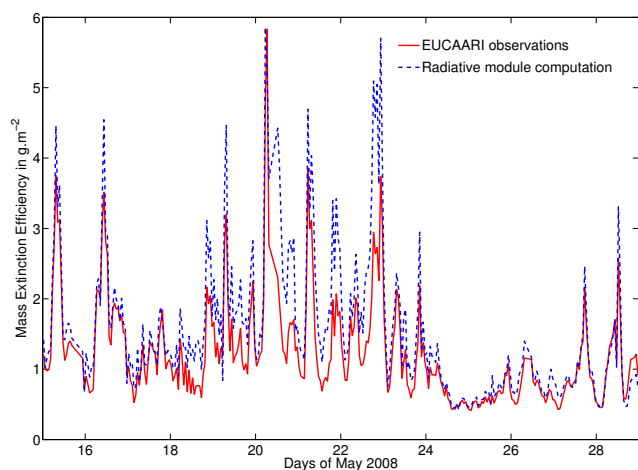
**Fig. 9.** Evolution of aerosol size distribution fits obtained from SMPS+APS during the fourteen days of measurement.



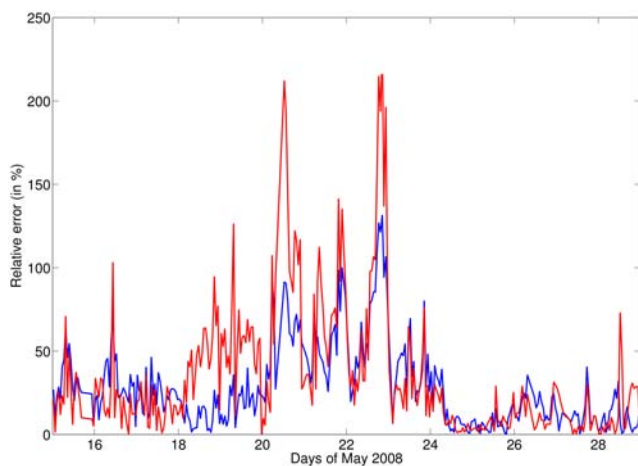
**Fig. 10.** Evolution of the dry single scattering albedo at 550 nm measured at Cabauw during EUCAARI by the nephelometer and the MAAP, and computed by the module.

Concerning the mass extinction efficiency comparison, again there is a good agreement between the observations and the computations. However, it is noticeable that from 20 to 24 May, the computations overestimate the mass extinction efficiency by 10 to 80%. To understand why there is a less good correlation especially between 20 and 24 May, Fig. 12 shows the evolution of the difference between the observed and computed mass extinction efficiency (in red) during the 15-day period, and the evolution of the relative error on the integrated mass up to 500 nm observed by the SMPS+APS  $M_{sd,500}$  and by the AMS+MAAP  $M_{ch,500}$ .

The discrepancy between observed and computed mass extinction efficiency between 20 and 24 May, may be directly linked to a major difference of masses calculated from by the two different experimental systems, the SMPS+APS for the aerosol size distribution and AMS+MAAP for the aerosol



**Fig. 11.** Evolution of the dry mass extinction efficiency in  $\text{g m}^{-2}$  at 550 nm measured at Cabauw during EUCAARI and computed by the module.



**Fig. 12.** Relative error between the mass concentration measured by the AMS+MAAP and that deduced from the SMPS+APS for particles up to 500 nm (blue line) and difference between mass extinction efficiency observed and computed (red line).

chemical composition. Between 20 and 24 May, the relative error between both systems on the aerosol integrated mass up to 500 nm can reach more than 100% and the major differences between the observed and computed mass extinction efficiency occur at these same maxima. Thus, the main differences observed may probably come from a discrepancy in the instruments in term of mass measurement, leading to an inconsistency between the inputs and outputs of the module. Moreover, the constant density used for the computations of the module's inputs certainly leads to the main limitation of this evaluation.

## 5 Conclusions

In order to quantify the direct and semi-direct effect of aerosols, it is necessary to compute the aerosol optical properties in atmospheric models depending on an evolving and complex aerosol particle. To study the aerosol particles interaction with radiation in highly temporal and spatial variable locations, such as urban areas, it is necessary to consider a large number of chemical species.

Nevertheless, the high computing cost of the classically applied Mie theory generally leads to a climatological parametrization of aerosol optical properties in regional-climate models.

The numerical computation was performed for six wavelengths using a vectorial computer (NEC SX8 type), in order to compare the time cost of this module with the other atmospheric processes (turbulence, advection, chemistry, aerosol solver, etc.).

The comparison was made between two standard simulations, with and without computation of the aerosol optical properties. The standard simulation required a cpu time per point per time-step of 98.0  $\mu\text{s}$  versus the standard simulation with the aerosol optical properties computation has a cpu time per point per time-step of 99.7  $\mu\text{s}$ . These results show that the numerical cost of the module was no more than 1.7% of the standard simulation total cost. As an example, the chemistry solving cost of these same simulations is 35.6%.

We can then consider that the previously described module is numerically very cheap relative to other processes and is consequently affordable for most atmospheric modelling.

This work presents a new, computationally cheap module dedicated to the online computation of optical properties according to the particle chemical composition and size distribution.

To minimize the computing cost, the module is founded on look-up tables built by a dual fifth degree polynomial interpolation of the parameters depending on the median radius of the aerosol size distribution. The parameters are the geometric standard deviation of the lognormal size distribution of the aerosol mode considered, and the imaginary and real part of the complex aerosol refractive index corresponding to a chemical composition deduced from the Maxwell-Garnett equation.

The module was then evaluated by using observations acquired during the EUCAARI campaign (May 2008). The numerical cost was also tested.

The comparisons between optical properties modelled by the module and those acquired at the Cabauw tower during fifteen days of measurements shows a good correlation. Furthermore, the numerical cost of the module is shown to be very low, allowing its implementation in atmospheric models treating aerosol size distribution and chemical composition. This optical module is already coupled with the ORILAM aerosol scheme (Tulet et al., 2005, 2006) implemented into the atmospheric research model Meso-NH (Lafore et al.,

1998). This development will be used in future works to investigate feedbacks of polluted aerosols on radiation and urban climate (especially impacts on radiative heating, development of the urban boundary layer and the urban breeze). Such a model could also be used for studying the effect of urban aerosols on UV radiation and the possible feedbacks on atmospheric photochemistry (such as the ozone production) in urban zones.

**Supplement related to this article is available online at:**  
<http://www.geosci-model-dev.net/3/553/2010/gmd-3-553-2010-supplement.zip>.

*Acknowledgements.* This work has been partially funded by European Commission 6th Framework program project EUCAARI, contract no. 036833-2 (EUCAARI), and by the French National Research Agency (ANR) under the AEROCLOUD program, contract no. 06-BLAN-0209. Astrid Kiendler-Scharr from Research Center Juelich, Germany, is acknowledged for providing AMS data. The Meso-NH team is also acknowledged for its support. The topical editor O. Boucher is also acknowledged for his constructive remarks improving this manuscript.

O. Boucher



The publication of this article is financed by CNRS-INSU.

## References

- Babu, S.S., Satheesh, S.K., and Moorthy, K.K.: Aerosol radiative forcing due to enhanced black carbon at an urban site in India, *J. Geophys. Res.*, 29, 1880, doi:10.1029/2002GL015826, 2006.
- Chylek, P., Videen, G., Geldart, W., Dobbie, S., and Tso, W.: Effective medium approximation for heterogeneous particles, in: *Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Meas. Geophys. Appl.*, 273–308, 2000.
- Costabile, F., Birmili, W., Klose, S., Tuch, T., Wehner, B., Wiedensohler, A., Franck, U., König, K., and Sonntag, A.: Spatio-temporal variability and principal components of the particle number size distribution in an urban atmosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 3163–3195, doi:10.5194/acp-9-3163-2009, 2009.
- Dentener, F., Kinne, S., Bond, T., Boucher, O., Cofala, J., Geroso, 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, doi:10.5194/acp-6-4321-2006, 2006.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D., Myrhe, 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*, edited by: Solomon, S., Qin, D., Manning, M., Chen, Z., Marquis, M., Averyt, K. B., Tignor, M., and Miller, H. L., Cambridge University Press, 2007.
- Ganguly, D., Jayaraman, A., Rajesh, T.A., and Gadhavi, H.: DWintertime aerosol properties during foggy and nonfoggy days over urban center Delhi and their implications for short-wave radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 111, D15217, doi:10.1029/2005JD007029, 2006.
- Gomes, L., Mallet, M., Roger, J.C., and Dubuisson, P.: Effects of the physical and optical properties of urban aerosols measured during the CAPITOUL summer campaign on the local direct radiative forcing, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 108, 289–306, 2008.
- Grini, A., Tulet, P., and Gomes, L.: Dusty weather forecast using the MesoNH atmospheric model, *J. Geophys. Res.*, 111, D19205, doi:10.1029/2005JD007007, 2006.
- IPCC (Ed.): *Climate change 2007: The scientific basis. Contribution of working group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, <http://www.ipcc.ch/>, last access: 27 May 2010, 2007.
- Jacobson, M.: A physically-based treatment of elemental carbon optics: Implications for global direct forcing of aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 217–220, 2000.
- 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.: An AeroCom initial assessment – optical properties in aerosol component modules of global models, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1815–1834, doi:10.5194/acp-6-1815-2006, 2006.
- Krekov, M.: *Aerosols Effects on Climate*, University of Arizona Press, USA, 9–72, 1993.
- Kulmala, M., Asmi, A., Lappalainen, H. K., Carslaw, K. S., Pöschl, U., Baltensperger, U., Hov, Ø., Brenquier, J.-L., Pandis, S. N., Facchini, M. C., Hansson, H.-C., Wiedensohler, A., and O’Dowd, C. D.: Introduction: European Integrated Project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions (EU-CAARI) – integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2825–2841, doi:10.5194/acp-9-2825-2009, 2009.
- Lafore, J. P., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Hérelil, P., Mascart, P., Masson, V., Pinty, J. P., Redelsperger, J. L., Richard, E., and Vilà-Guerau de Arellano, J.: The Meso-NH Atmospheric Simulation System. Part I: adiabatic formulation and control simulations, *Ann. Geophys.*, 16, 90–109, doi:10.1007/s00585-997-0090-6, 1998.
- Lesins, G., Chylek, P., and Lohmann, U.: A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 107(D10), 4094, doi:10.1029/2001JD000973, 2002.
- Mallet, M., Van Dingenen, R., Roger, J.C., Despiiau, S., and Cachier, H.: In situ airborne measurements of aerosol optical

- properties during photochemical pollution events, *J. Geophys. Res.*, 110, D03205, doi:10.1029/2004JD005139, 2005.
- Marley, N.A., Gaffney, J.S., Castro, T., Salcido, A., and Frederick, J.: Measurements of aerosol absorption and scattering in the Mexico City Metropolitan Area during the MILAGRO field campaign: a comparison of results from the T0 and T1 sites, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 186–206, doi:10.5194/acp-9-186-2009, 2009.
- Maxwell-Garnett, J.: Colours in metal glasses and in metallic films, *Philos. T. Roy. Soc. A*, 203, 385–420, 1904.
- Metzger, S., Dentener, F., Pandis, S., and Lelieveld, J.: Gas/aerosol partitioning: 1. A computationally efficient model, *J. Geophys. Res.*, 107(D16), 4312, doi:10.1029/2002GL014769, 2002.
- Mie, G.: Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, *Ann. Phys.-Leipzig*, 330, 377–445, 1908.
- Mikhailov, E. F., Vlasenko, S. S., Podgorny, I. A., Ramanathan, V., and Corrigan, C. E.: Optical properties of soot water drop agglomerates: An experimental study, *J. Geophys. Res.*, 111, 1815–1834, doi:10.1029/2005JD006389, 2006.
- Raut, J.-C. and Chazette, P.: Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 901–919, doi:10.5194/acp-8-901-2008, 2008.
- Russell, P. B., Bergstrom, R. W., Shinozuka, Y., Clarke, A. D., DeCarlo, P. F., Jimenez, J. L., Livingston, J.M., Redemann, J., Dubovik, O., and Strawa, A.: Absorption Angstrom Exponent in AERONET and related data as an indicator of aerosol composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1155–1169, 2010, <http://www.atmos-chem-phys.net/10/1155/2010/>.
- Seinfeld, J. and Pandis, S.: *Atmospheric Chemistry and Physics*, Wiley Interscience Pub., New York, USA, 691–711, 1997.
- Singh, S., Nath, S., Kohli, R., and Singh, R.: Aerosols over Delhi during pre-monsoon months: Characteristics and effects on surface radiation forcing, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L13808, doi:10.1029/2005GL023062, 2005.
- Solmon, F., Chuang, P., Meskhidze, N., and Chen, Y.: Acidic processing of mineral dust iron by anthropogenic compounds over the North Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, 114, D02305, doi:10.1029/2008JD010417, 2008.
- Tombette, M., Chazette, P., Sportisse, B., and Roustan, Y.: Simulation of aerosol optical properties over Europe with a 3-D size-resolved aerosol model: comparisons with AERONET data, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 7115–7132, doi:10.5194/acp-8-7115-2008, 2008.
- Tulet, P., Crassier, V., Cousin, F., Shure, K., and Rosset, R.: ORILAM, a three moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model. On-line coupling into the MesoNH-C model and validation on the ESCOMPTE campaign, *J. Geophys. Res.*, 110, D18201, doi:10.1029/2004JD005716, 2005.
- Tulet, P., Grini, A., Griffin, R., and Petitcol, S.: ORILAM-SOA: a computationally efficient model for predicting secondary organic aerosols in 3D atmospheric models., *J. Geophys. Res.*, 111, D23208, doi:10.1029/2006JD007152, 2006.
- Tulet, P., Mallet, M., Pont, V., Pelon, J., and Boone, A.: The 7–13 March 2006 dust storm over West Africa: generation, transport, and vertical stratification, *J. Geophys. Res.*, 113, D00C08, doi:10.1029/2008JD009871, 2008.

### 4.3 Conclusions

Pour étudier de façon précise les effets directs et semi-directs des aérosols, il est impératif de calculer les propriétés optiques des aérosols. Or ces propriétés dépendent de façon non linéaire de la taille et de la composition chimique des particules qui peuvent évoluer fortement dans le temps. Aussi, il est nécessaire de pouvoir correctement estimer l'évolution de ces propriétés optiques, notamment dans le cas d'aérosols urbains pour lesquels l'évolution peut être très rapide et les caractéristiques physiques et chimiques très différentes à seulement quelques kilomètres de distance. Cependant, la théorie de Mie (*Mie*, 1908) classiquement appliquée pour déterminer les propriétés optiques nécessite un temps de calcul trop coûteux pour être appliqué en ligne, et a conduit la plupart des modèles atmosphériques à se reposer sur des tables climatologiques. Le module décrit dans le présent article a été évalué sur le plan de ses performances numériques. Des tests ont été portés sur le supercalculateur de Météo-France, une machine vectorielle de type NEC SX8. Les résultats de ces tests ont montré que pour une simulation standard utilisant le modèle Méso-NH en configuration chimie-aérosol, la différence de temps de calcul lorsque les propriétés optiques des aérosols sont calculées en chaque point de grille et à chaque pas de temps par le module radiatif, et lorsqu'elles ne le sont pas, était de 1.7 % (pour comparaison, le solveur de chimie gazeuse utilise 36 % du temps total de calcul pour ces simulations). Ainsi, ce module validé peut être considéré comme relativement peu coûteux en comparaison des autres processus, et son utilisation n'affecte pas significativement la puissance de calcul requise.

L'étude contenue dans cet article valide donc l'existence d'un module relativement économique capable de calculer les propriétés optiques des aérosols en fonction de leurs caractérisations physico-chimiques. Afin de minimiser le temps de calcul, ce module est basé sur la construction de look-up tables, elles-mêmes construites à partir d'une double interpolation polynômiale de degré cinq en fonction du rayon médian de la distribution en taille des particules. Les paramètres d'entrée de ces tables sont donc l'écart-type de la distribution en taille des particules (de type lognormale), ainsi que les parties réelle et imaginaire de l'indice de réfraction de l'aérosol, déduit de la composition chimique de la particule à partir de la loi de mélange de Maxwell-Garnett (*Maxwell-Garnett*, 1904). Cette méthode a été comparée aux calculs issus de la théorie de Mie, et présente des résultats satisfaisants. Le module a ensuite été validé par rapport à des observations des propriétés optiques des aérosols acquises durant la campagne EUCAARI sur le site de Cabauw durant le mois de mai 2008. Les paramètres optiques modélisés et observés montrent une bonne corrélation.

Pour résumer, le module précédemment décrit calcule les trois paramètres optiques que sont :

- l'albédo de diffusion simple
- le coefficient d'extinction



- la paramètre d'asymétrie.

Il admet comme données d'entrée et pour chaque mode d'aérosol considéré :

- Le rayon médian de la distribution lognormale
- L'écart-type géométrique de la distribution lognormale
- La masse de chacun des composants chimiques de l'aérosol :  $BC$ ,  $OC_p$ ,  $NH_4$ ,  $NO_3$ ,  $SO_4$ ,  $SOA$ ,  $H_2O$ .

Complètement externalisé, ce module peut être couplé avec tous les modèles atmosphériques. De ce fait, il est envisageable d'étudier l'impact radiatif des aérosols de façon précise de la très fine échelle à l'échelle régionale.

Dans cette optique, ce module a donc été implémenté dans le modèle atmosphérique Mésos-NH afin d'étudier dans un cas réel en trois dimensions les effets et les rétroactions des aérosols sur la dynamique urbaine. Le cas d'étude ainsi que la campagne de mesure seront exposés au chapitre 5, et les résultats des études d'impact présentés au chapitre 6.



## Chapitre 5

# La campagne CAPITOUL : analyse de la POI des 3 et 4 juillet 2004

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Description de la campagne CAPITOUL</b>	<b>83</b>
5.1.1	Les mesures dynamiques	84
5.1.2	Les mesures physico-chimiques (gaz et particules)	86
<b>5.2</b>	<b>Le cadastre d'émissions</b>	<b>89</b>
5.2.1	Généralités	89
5.2.2	Méthodologie	90
5.2.3	Evaluation quantitative du cadastre	95
<b>5.3</b>	<b>Description de la POI : Second article</b>	<b>98</b>
5.3.1	Contexte scientifique et objectifs	98
<b>5.4</b>	<b>Conclusion</b>	<b>116</b>

---

## 5.1 Description de la campagne CAPITOUL

La campagne CAPITOUL (CANopy and Particles Interaction in TOulouse Urban Layer) est une expérience qui s'est déroulée sur une année entre février 2004 et mars 2005 dans le but d'étudier les processus inhérents à la ville. Les principaux objectifs scientifiques de cette campagne sont :

- Etudier les échanges d'énergie entre la surface urbaine et l'atmosphère pour des conditions météorologiques variées : conditions estivales et hivernales, pluies, averses, vent, impact des sources de chaleur urbaines (chauffage, consommations d'énergie diverses) ; ces échanges

d'énergie sont à la source des effets météorologiques urbains.

- Observer l'impact de la ville sur l'écoulement de l'air au-dessus d'elle (de 0 à 1 km d'altitude) : îlot de chaleur urbain, dôme urbain, brise urbaine, panache urbain, effet sur le brouillard.
- Caractériser la formation et la transformation de l'aérosol urbain (particules en suspension dans l'atmosphère), des zones d'émissions jusqu'aux zones réceptrices à courte (1km) et moyenne (50km) distances.
- Etudier la dispersion à courte distance d'une simulation de rejet industriel par un exercice de lâcher de traceurs (gaz inertes) pour qualifier un système de modélisation.

Afin de répondre à l'ensemble des questions soulevées par ces nombreux domaines d'étude, un dispositif expérimental adapté a été mis en place durant une année.

### 5.1.1 Les mesures dynamiques

Pour étudier les processus de la météorologie urbaine, il est nécessaire de disposer d'une caractérisation précise de la situation dynamique. Pour ce faire, un dispositif expérimental déployé sur l'ensemble de la région toulousaine a été mis en place. Ce dispositif peut être détaillé de la façon suivante, et est illustré par la figure 5.1 :

- 21 stations de mesures météorologiques « légères » réparties sur l'ensemble de l'agglomération toulousaine mesurant la température à 2 mètres ainsi que l'humidité relative.
- Des stations de mesures météorologiques présentes dans tous les centres départementaux de mesure de Météo-France, notamment à Blagnac et pour les régions voisines à Carcassonne, Auch, Saint-Gaudens, Agen et Castres. Ces stations synoptiques mesurent l'ensemble des paramètres météorologiques classiques tels que la température, l'humidité relative, le vent, la pression, la pluie et les flux d'énergie.
- Un mât central disposé au centre-ville de Toulouse. Ce mât télescopique et instrumenté est représenté figure 5.2. Il pouvait adopter quatre hauteurs maximum différentes selon la situation météorologique, afin notamment de pouvoir s'adapter en cas de vents forts ou de situations orageuses. De plus, pour la mesure des flux turbulents, il est nécessaire que les

mesures soient faites à une hauteur d'au moins deux fois la hauteur moyenne des bâtiments (Oke, 2004). C'est pourquoi la disposition du mât permettait aux instruments d'acquérir les mesures à une hauteur d'environ 30 mètres au-dessus des toits des bâtiments.

- Un radar UHF disposé également au centre-ville de Toulouse mesurait les profils de vents verticaux.
- Une série de radiosondages ont été effectués durant les périodes étudiées sur deux sites différents (Valade au centre-ville et Merville à la périphérie rurale de Toulouse) et à différentes heures de la journée et de la nuit.



**Fig. 5.1:** Représentation de l'ensemble du dispositif expérimental dédié aux mesures dynamiques durant la campagne CAPITOU.

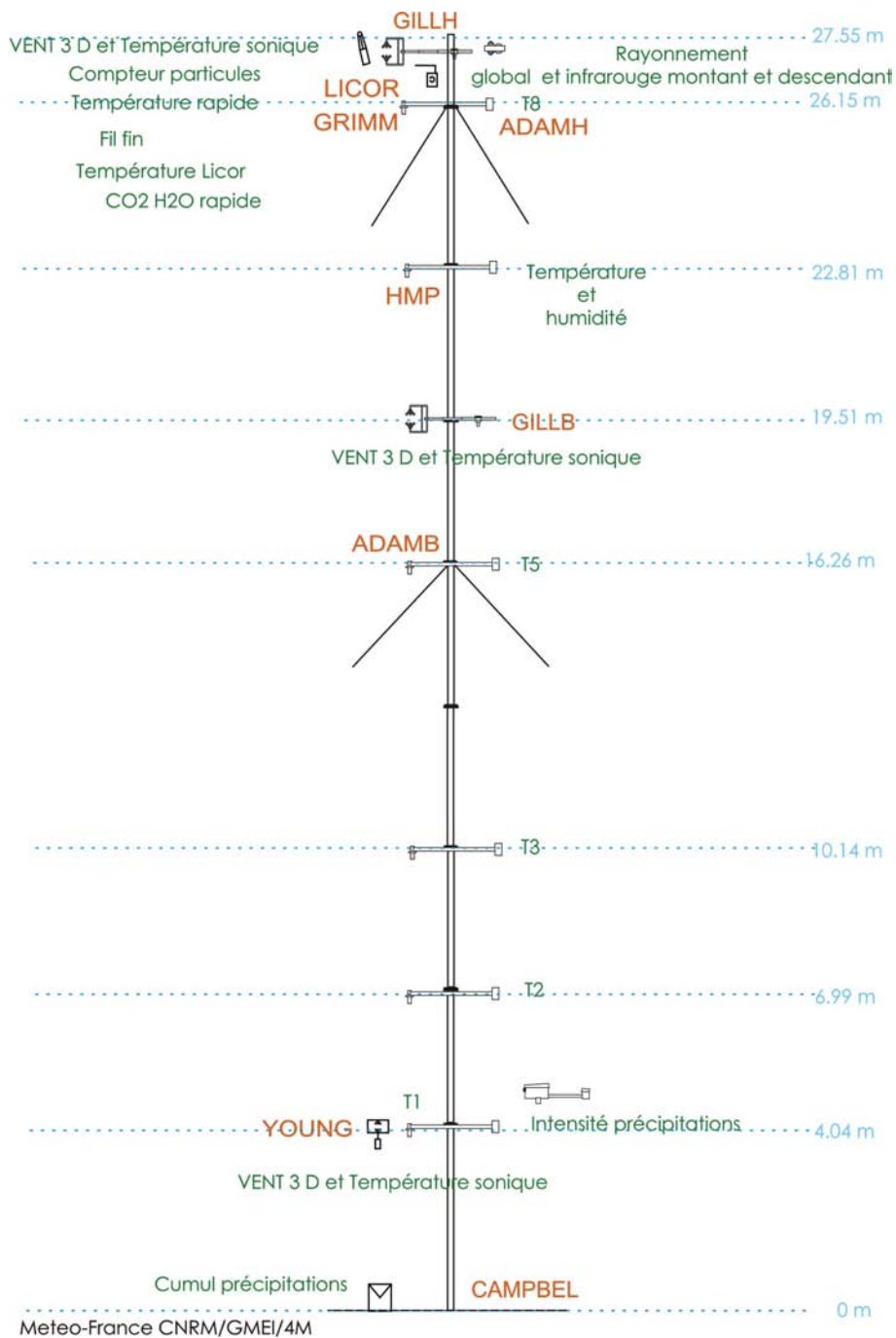


Fig. 5.2: Détails du mât instrumenté en position haute.

### 5.1.2 Les mesures physico-chimiques (gaz et particules)

Les mesures des propriétés physico-chimiques des particules et de composition de la chimie gazeuse étaient réparties de manière suivante :

- Pour les particules, l'ensemble des mesures a été effectué sur le toit du bâtiment de la Poste Centrale au centre-ville de Toulouse (rue Lafayette), et est détaillée dans la suite de ce paragraphe.
- Des mesures de chimie gazeuse ont été effectuées par le camion de mesure mobile du Laboratoire d'Aérogologie stationné à Escalquens, à une quinzaine de kilomètres au Sud-Est du centre de Toulouse.
- cinq stations de mesures de l'ORAMIP, organisme chargé de la surveillance de la qualité de l'air en région Midi-Pyrénées, ont mesuré les concentrations d'ozone et pour trois d'entre-elles de dioxyde d'azote dans cinq communes ou quartiers périphériques de Toulouse : Balma, Colomiers, Jacquier, Mazades et Berthelot.

Il est intéressant pour la suite de notre étude de détailler le type des mesures des propriétés des particules d'aérosol effectuées durant la campagne CAPITOUL. Ainsi, on distinguera les mesures visant à déterminer la concentration en particules et le spectre granulométrique de celles dont le but est de caractériser leur composition chimique, ou encore des mesures visant à évaluer les propriétés optiques des particules d'aérosol présentes.

### Concentration

Pour déterminer la concentration en nombre et en masse des particules, plusieurs instruments de mesures étaient installés sur le toit de la Poste :

- un compteur de particules à condensation (modèle CPC 3025) mesurait le nombre de particules présentes avec un diamètre supérieur à 3  $nm$ . Cette mesure est basée sur la capacité des particules ambiantes à pouvoir servir de noyau de condensation aux vapeurs d'alcools artificiellement mises en conditions de très forte sursaturation. Ainsi, ces fines particules sont grossies et peuvent être détectées optiquement comme dans un OPC.
- un instrument TEOM (modèle 1400A) mesurait la concentration massique des particules présentant un diamètre inférieur à 2.5  $\mu m$  (PM 2.5). Cette mesure repose sur la variation de fréquence mesurée d'un oscillateur en fonction de la masse de particule déposée sur cet oscillateur.

### Spectre granulométrique

Le spectre granulométrique de la population d'aérosols a pu être déterminé entre 10  $nm$  et

20  $\mu m$  en regroupant les mesures de deux instruments :

- un compteur optique de particules (OPC, modèle GRIMM 1.108) mesurait la concentration en particules de taille comprise entre 0.3 et 20  $\mu m$  en les séparant en 15 classes de mesures. Ce type de mesure repose sur la détection optique d'un rayon lumineux diffusé de façon différente en fonction de la taille des particules. L'acquisition est assurée par une cellule optoélectronique.
- un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer ; modèle 3936) permet de déterminer la concentration en particules submicroniques entre 0.01 et 0.5  $\mu m$  sur 64 classes. Il est constitué de deux sous-instruments : un DMA et un CPC. Le DMA (Differential Mobility Analyser) permet de séparer préalablement les particules en différentes classes de tailles selon leur mobilité électrique associée. Un CPC (modèle 3025) détecte ensuite le nombre de particules dans chacune des classes.

### Propriétés optiques

Les propriétés optiques des aérosols sont déduites des mesures complémentaires effectuées à l'aide de deux instruments :

- un aethalomètre (modèle MAGEE AE-31) mesure l'absorption de lumière due à la population de particules. Cette absorption est déduite de l'atténuation du rayonnement mesurée à 7 longueurs d'onde (370 nm, 470 nm, 520 nm, 590 nm, 660 nm, 880 nm, 950 nm) à travers un filtre de quartz qui collecte les particules. De cette mesure de l'atténuation on peut déduire la valeur du coefficient d'absorption  $b_{abs}$  en  $m^{-1}$ .
- la seconde mesure concerne la diffusion et a été effectuée par un néphélomètre (modèle Eco-tech M9003) à la longueur d'onde de 525 nm. Cet instrument mesure les signaux électriques proportionnels à l'intensité de la lumière diffusée recueillie sur un photo-détecteur. Ainsi, de cette mesure on déduit la valeur du coefficient de diffusion  $b_{dif}$  également en  $m^{-1}$ .

### Composition chimique

Enfin, la composition chimique des particules a été mesurée par des prélèvements sur filtres des particules ambiantes.

- deux types de filtres ont été utilisés afin de pouvoir déterminer les concentrations des composés d'aérosols. D'une part des filtres en téflon déterminaient par chromatographie la concentration en sulfate et nitrate, et d'autre part des filtres en quartz associés à une méthode thermo-optique établissaient la concentration en aérosol carboné ( $BC$ ,  $OC_p$  et  $SOA$ ).
- de plus, la mesure de l'absorption effectuée par l'aethalomètre à la longueur d'onde de 880 nm (longueur d'onde la plus sensible à la concentration de  $BC$ ) permet également de déduire la concentration en carbone suie ( $BC$ ) en appliquant un coefficient d'atténuation



massique des particules (en  $m^2.g^{-1}$ ) déduit expérimentalement.

Durant l'année pendant laquelle la campagne CAPITOUL a eu lieu, 14 périodes d'observations intensives (POI) ont eu lieu, réparties au printemps, en été et en hiver. La période d'observations intense qui sert au cadre de cette étude est la POI5, qui s'est déroulée du 3 au 4 juillet 2004. Durant ces dates, la situation météorologique était anticyclonique et très ensoleillée et ainsi propice à la formation de polluants secondaires par photo-oxydation ainsi qu'à la concentration des particules dans les basses couches. De plus, ces deux jours présentaient les deux principaux régimes de vent à Toulouse, c'est-à-dire un vent en provenance de l'océan Atlantique et suivant le corridor formé entre les Pyrénées et le Massif Central (régime du 3 juillet), et un régime de vent inversé en provenance de la mer Méditerranée, appelé vent d'Autan, empruntant le même corridor (régime du 4 juillet).

## 5.2 Le cadastre d'émissions

### 5.2.1 Généralités

Afin de pouvoir modéliser de façon précise l'évolution des particules d'aérosol durant cette période, il a été tout d'abord nécessaire de quantifier les émissions de ces particules ainsi que des gaz précurseurs des espèces secondaires. Pour ce faire, j'ai développé un cadastre d'émissions ayant pour but de référencer les flux d'émissions de chaque espèce considérée à chaque instant et à chaque point de grille du modèle.

Etant donné que l'objectif principal de cet exercice de modélisation est l'étude du vieillissement des aérosols urbains, l'échelle horizontale adoptée se doit d'être subkilométrique afin de prendre en compte les effets de variabilité spatiale inhérente à la ville. L'échelle la plus fine des simulations urbaines dans le cadre de la campagne CAPITOUL a donc été choisie égale à 500 mètres autour de Toulouse. Pour avoir une modélisation cohérente des aérosols, il a donc été nécessaire de construire un cadastre d'émissions à cette même échelle horizontale de 500 mètres. En effet, les concentrations et la représentation spatiale des espèces primaires notamment dépendent directement de l'intensité et de la localisation précise des émissions.

Généralement, les cadastres d'émissions distinguent les sources anthropiques des sources naturelles. Les émissions naturelles des aérosols et gaz biogéniques sont gérées dans Méso-NH par un module séparé (*Solmon et al.*, 2004), calculant, selon la saison et en fonction du type de couvert, les émissions de gaz et de particules. Les émissions anthropiques sont principalement dues au trafic, aux industries, au chauffage, ainsi qu'aux exploitations agricoles. Notre étude se passant au mois de juillet, il a été fait l'hypothèse de ne pas prendre en compte les émissions dues au chauffage. De plus, la région de Toulouse ne concentre pas un grand nombre d'industries. Ainsi, les émissions anthropiques considérées sont essentiellement celles dues au trafic ainsi

qu'aux exploitations agricoles. Les émissions dues aux exploitations agricoles ont été fournies par le cadastre GEMS.

### 5.2.2 Méthodologie

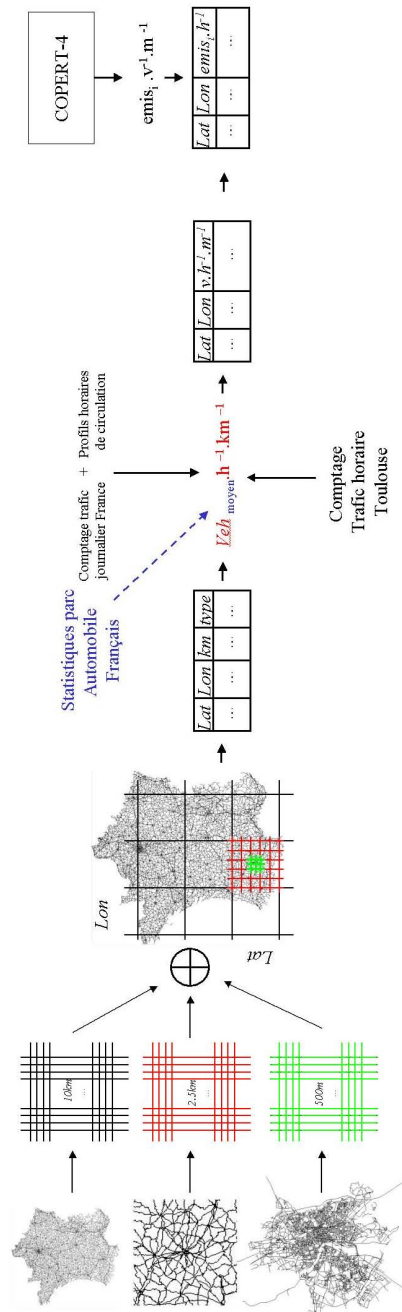
La résolution du cadastre d'émission dépend de la résolution adoptée par le modèle. La simulation adoptée a été configurée selon trois domaines imbriqués avec différentes résolutions (cf. figure 5.3). Ainsi, le cadastre a été construit de façon à avoir une résolution progressive centrée sur Toulouse, allant de 10 km pour l'ensemble de la France, puis une résolution de 2.5 km pour une zone de 125 km x 125 km autour de Toulouse, et enfin une résolution de 500 m sur une zone de 25 km centrée sur le centre-ville de Toulouse (Pont-Neuf). Un premier domaine englobe la grande partie Sud de la France et a une résolution horizontale de 10 km. Un second domaine centré sur Toulouse s'étend d'Agen à Carcassonne et a une résolution horizontale de 2.5 km. Enfin, un troisième domaine centré sur la ville de Toulouse a une résolution fine de 500 m.

La méthodologie adoptée pour construire ce cadastre est entièrement schématisée par la figure 5.3.

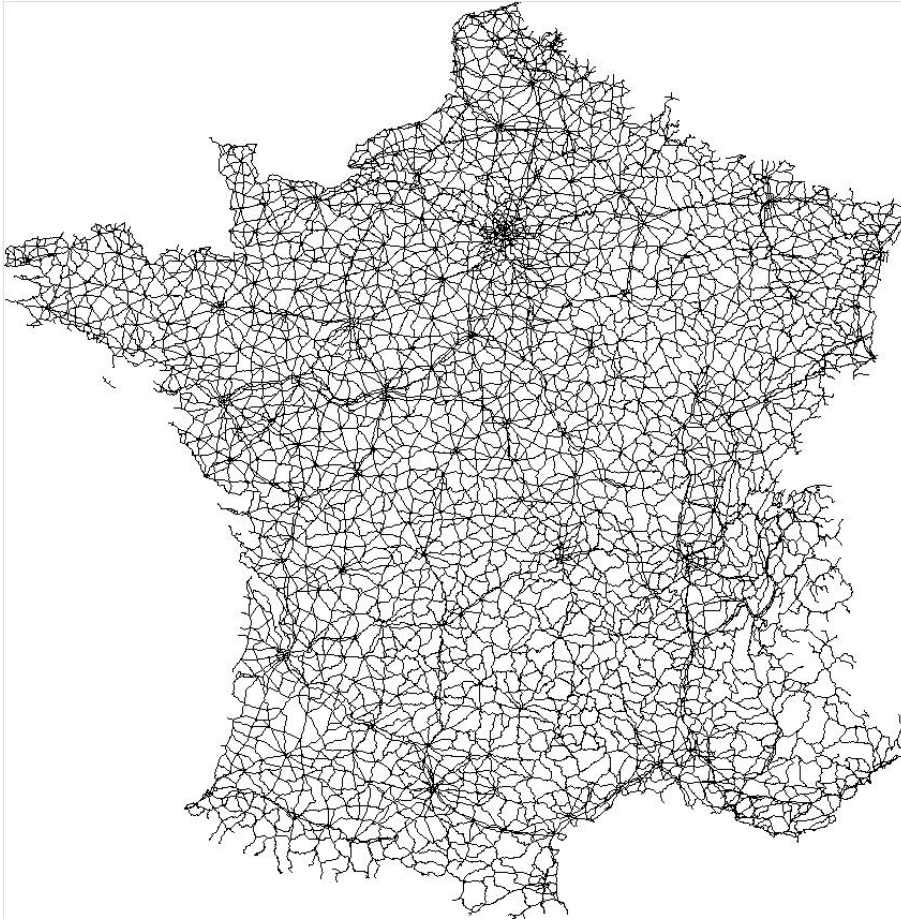
Afin de construire le cadastre d'émissions issues du trafic routier, on a utilisé les données géoréférencées des routes de France fournies par l'IGN (Route 120) et représentées en figure 5.4. Des données à plus fine résolution des routes et voies de Toulouse ont été fournies par la ville de Toulouse et sont représentées sur la figure 5.5. Ces données comprennent la position géographique des autoroutes, routes nationales, régionales, départementales et des principaux axes urbains. De plus, il est inclus pour chacune des routes les informations suivantes :

- le nombre de voies
- le sens (unique ou double)
- le type de voie (autoroute, nationale,...)
- la longueur de la voie

Ces données vectorielles ont ensuite été traitées avec le logiciel GRASS (Geographic Resources Analysis Support System) afin d'obtenir au final un tableau sous forme latitude-longitude-valeur découpé en fonction des échelles horizontales souhaitées. Les données du parc automobile français nous permettent de définir un véhicule moyen représentant de façon statistique le parc automobile français. En effet, ces données nous renseignent sur le nombre de véhicules de type Diesel ou essence, ou encore sur le nombre de poids lourds ou deux-roues circulant en France. Les données de ce tableau, couplées aux comptages journaliers effectués durant la POI (comptages urbain, périphérique et autoroute), ainsi qu'aux données statistiques du parc automobile français, nous permettent d'obtenir un nombre de véhicules par kilomètre dans chacune des mailles et par jour. Pour finir, afin d'affiner les émissions selon les heures de la journée, nous avons utilisé les comptages horaires disponibles pour l'agglomération toulousaine effectués durant la POI (applicables aux second et troisième domaines), ainsi que des profils moyens de circulation selon le type de route fournis par l'ORAMIP et représentés en figure 5.6.



**Fig. 5.3:** Représentation schématique de l'ensemble des processus menant à la construction du cadastre.



**Fig. 5.4:** Représentation des routes de France par le logiciel GRASS.

Nous obtenons alors 24 cartes de flux d'émissions pour chacune des 24 heures représentatives des 3 et 4 juillet (les deux journées présentent relativement les mêmes profils horaires selon les comptages), en nombre de véhicules moyens par kilomètre et par heure pour chaque maille. Afin de traduire l'information du nombre de véhicules moyens en émissions de gaz, nous avons utilisé le logiciel COPERT-4 (Ntziachristos et al., 2009). Ce logiciel issu de l'initiative de l'Agence Européenne pour l'Environnement et conçu selon la méthodologie issue du programme EMEP/CORINAIR, permet de calculer les émissions gazeuses et particulaires en fonction d'un nombre de véhicules, d'un (type ou plusieurs types) de véhicule(s), ainsi que d'une distance parcourue, en se basant sur les résultats de travaux effectués sur la combustion des moteurs. Les données représentant le véhicule moyen du parc roulant français sont donc les entrées dans ce logiciel, ainsi qu'une distance arbitraire de 100 km par laquelle nous diviserons ensuite le résultat pour obtenir les émissions par kilomètre. Les émissions  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ , et  $SO_2$  issues de ce logiciel ont été conservées. Ainsi, il est obtenu après ces opérations et pour chacune des 24 heures de la journée une carte des flux d'émissions des principales espèces gazeuses :  $CO$ ,



**Fig. 5.5:** Représentation des routes de Toulouse par le logiciel GRASS.

$CO_2$ ,  $NO$ ,  $NO_2$ , et  $SO_2$ .

Enfin, dans le but d'estimer les émissions de COVs, d'ammonium ainsi que de particules, différentes stratégies ont été adoptées :

Espèce	Rapport d'émission
<b>Espèces gazeuses</b>	
<i>ALKL</i>	0.59 <i>NO</i>
<i>ALKM</i>	0.074 <i>NO</i>
<i>ALKH</i>	0.012 <i>NO</i>
<i>ETHE</i>	0.094 <i>NO</i>
<i>OLEL</i>	0.036 <i>NO</i>
<i>OLEH</i>	0.0074 <i>NO</i>
<i>AROL</i>	0.097 <i>NO</i>
<i>AROH</i>	0.39 <i>NO</i>
<i>ISOP</i>	0.00049 <i>NO</i>
<i>BIOI</i>	0.00029 <i>NO</i>
<i>BIOH</i>	0.00042 <i>NO</i>
<i>HCHO</i>	0.064 <i>NO</i>
<i>ALD2</i>	0.011 <i>NO</i>
<i>ARAL</i>	0.096 <i>NO</i>
<i>ARAC</i>	0.000084 <i>NO</i>
<i>AROO</i>	0.00013 <i>NO</i>
<i>MEOH</i>	0.42 <i>NO</i>
<i>ETOH</i>	0.11 <i>NO</i>
<b>Espèces particulières</b>	
<i>BC</i>	0.00066 <i>CO</i>
<i>OC<sub>p</sub></i>	0.0032 <i>CO</i>

**Tab. 5.1:** Coefficients d'émission entre les COVs (précédemment décrits) et le NO (issus de Matsui et al. (2009)) et entre les particules primaires et le CO (issus des données de CAPITOUL).

- Les émissions de COVs ont été déterminées à partir de données recueillies par Matsui et al. (2009), desquelles un coefficient entre les émissions de COV et de NO a été déterminé et est présenté sur le tableau 5.1.
- Les émissions de  $NH_3$  étant principalement d'origine agricole (et donc non issues du trafic), nous avons choisi d'utiliser les données du cadastre d'émission GEMS.
- Les émissions de particules primaires urbaines ( $OC_p$  et  $BC$ ) ont été déduites des mesures effectuées durant la campagne CAPITOUL. Ces dernières ont permis de calculer un coef-

ficient d'émission en fonction du  $CO$ , qui est également présenté en table 5.1.

Finalement, 24 tables des émissions ont été obtenues. Elles correspondent aux 24 heures de la journée. Elles se présentent sous la forme latitude-longitude-valeur, avec une résolution dépendant de la localisation géographique de la maille (500 m pour l'agglomération toulousaine, 2.5 km sur une zone de 125 km x 125 km centrée sur Toulouse, et 10 km pour le reste de la France). Les valeurs correspondent ainsi aux flux d'émissions des espèces gazeuses et particulaires nécessaires à l'initialisation et au fonctionnement du schéma ORILAM.

### 5.2.3 Evaluation quantitative du cadastre

Afin d'estimer si les valeurs d'émissions construites dans le cadastre apparaissent comme réalistes, une comparaison quantitative des émissions de  $NO_x$  et de particules a été effectuée par rapport aux valeurs issues du cadastre EMEP. Cette comparaison a été réalisée entre les valeurs du cadastre EMEP correspondant au point de grille incluant la ville de Toulouse et sa région sur une zone de 50 km sur 50 km, et les valeurs issues du cadastre préalablement construit correspondant à la même zone. Il est également à noter que les valeurs d'émissions issues du cadastre EMEP ont été affinées afin de correspondre à la situation du mois de juillet 2004 par multiplication par un rapport relatif pour chaque type d'émissions correspondant au mois de juillet. Les résultats de cette comparaison sont présentés dans le tableau 5.2. Cette comparaison présente les valeurs du cadastre EMEP sur la zone de 50 km sur 50 km correspondant à la fois aux émissions totales, ainsi qu'aux émissions uniquement dues au transport routier.

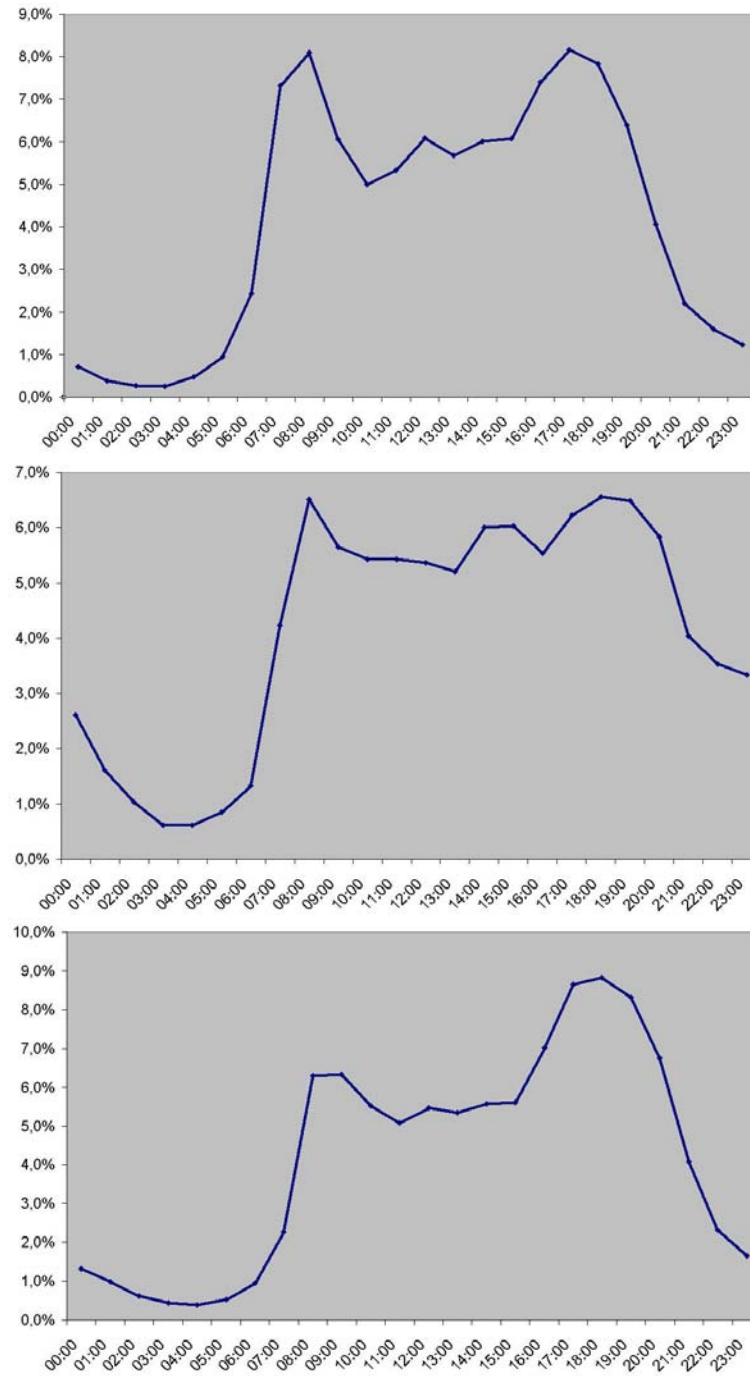
Espèce	Emissions construites	Emissions EMEP totales	Emission EMEP transport routier
$NO_x$	0.0187	0.013	0.0087
$PM_{2.5}$	0.00101	0.0023	0.00049

**Tab. 5.2:** Comparaison des valeurs d'émissions en  $g.m^{-2}.jour^{-1}$  issues du cadastre construit et des valeurs issues du cadastre EMEP.

La comparaison présentée dans le tableau 5.2 nous montre tout d'abord que les valeurs d'émissions issues du cadastre préalablement construit sont du même ordre de grandeur que les valeurs issues du cadastre EMEP. On peut également noter que dans le cadastre EMEP, les émissions de  $NO_x$  par le trafic routier sont estimées comme représentant deux tiers des émissions totales, alors que les émissions de particules issues du transport routier ne représente qu'un cinquième des émissions totales. Ainsi, la principale hypothèse lors de la construction du cadastre étant de ne considérer uniquement les émissions issues du trafic routier, il est probable que pour certaines espèces, un certain nombre d'émissions ne soient pas représentées, notamment dans

les zones relativement peu urbanisées pour lesquelles le trafic routier peut constituer une aprt  
minoritaire des émissions. Cependant, au vu des valeurs reportées dans le tableau 5.2, il semble  
que les approximations effectuées ne dégradent pas de manière significative les résultats des  
émissions, notamment urbaines.





**Fig. 5.6:** Profils horaires moyens de circulation en fonction du type de route : routes périphériques (en haut), routes urbaines (au milieu) et autoroutes (en bas). Les valeurs sont en pourcentage du total de circulation.

## 5.3 Description de la POI : Second article

### 5.3.1 Contexte scientifique et objectifs

La description de la campagne CAPITOUL a fait l'objet de la partie précédente, tout comme la mise en place du cadastre d'émission des gaz et particules. Cette partie présentée sous forme d'article scientifique décrit les résultats de la simulation ainsi que l'analyse de la situation. L'un des objectifs de cette étude de simulations est de s'intéresser à l'importance de la résolution horizontale afin de reproduire les processus dynamiques à l'échelle locale, tels que les rouleaux convectifs qui concentrent la grande majorité des polluants. Bien que ces simulations soient coûteuses en temps de calcul notamment à cause de la résolution des équilibres de chimie gazeuse et des particules à l'échelle locale, elles peuvent aujourd'hui être le seul moyen de reproduire ces structures dynamiques cohérentes dont l'apparition est confirmée par les observations.

Cette partie sera exposée sous la forme d'un article publié dans le journal Atmospheric Chemistry and Physics Discussion (ACPD), vol. 10, pp. 29569-29598, doi :10.5194/acpd-10-29569-2010.

## Résumé

Modéliser à haute résolution l'évolution complexe des particules d'aérosol et de la chimie gazeuse associée sur des zones urbaines est d'un grand intérêt pour la compréhension et la représentation des processus atmosphériques et de la pollution de l'air. Dans ce contexte, la campagne CAPITOUL (Canopy and Aerosol Particle Interactions in the Toulouse Urban Layer) vise une meilleure compréhension des interactions entre la dynamique atmosphérique urbaine et les panaches d'aérosols. Durant une POI de deux jours, une expérience de modélisation numérique a été mise en place afin de reproduire la distribution spatiale des polluants particulaires, à la fois à l'échelle régionale en prenant en compte les interactions entre les principales villes régionales, et à l'échelle locale où la structure turbulente induit des distributions locales spécifiques. Les observations acquises durant cette campagne montrent que la dynamique locale suit selon la journée soit une distribution selon des rouleaux associés à des cellules convectives, soit une distribution uniquement selon des rouleaux convectifs. La simulation dont la résolution horizontale est de 500 mètres permet de reproduire ces structures qui concentrent la majeure partie des aérosols, et ainsi affectent la dispersion des polluants.

# High resolution modelling of aerosol dispersion regimes during the CAPITOUL field experiment: from regional to local scale interactions

Aouizerats B.<sup>1</sup>, Tulet P.<sup>1,2</sup>, Pigeon G.<sup>1</sup>, Masson V.<sup>1</sup>, and Gomes L.<sup>1</sup>

<sup>1</sup>CNRM-GAME, 42 av G. Coriolis, 31057 Toulouse, France

<sup>2</sup>LACy, Université de La Réunion, 15 av René Cassin, 97715 Saint-Denis, France

## Abstract.

High resolution simulation of complex aerosol particle evolution and gaseous chemistry over an atmospheric urban area is of great interest for understanding air quality and processes. In this context, the CAPITOUL (Canopy and Aerosol Particle Interactions in the Toulouse Urban Layer) field experiment aims at a better understanding of the interactions between the urban dynamics and the aerosol plumes. During a two-day Intensive Observational Period, a numerical model experiment was set up to reproduce the spatial distribution of specific particle pollutants, from the regional scales and the interactions between different cities, to the local scales with specific turbulent structures. Observations show that local dynamics is driven either by convective cells coexisting with rolls or only by rolls depending on the day-regime. The 500 meter resolution simulation manages to reproduce these rolls, which concentrate most of the aerosol particles and can locally affect the pollutant dispersion and air quality.

## 1 Introduction

Since 2007, more than the half of the Earth's population lives in urban areas (Brown, 2001). Adding the fact that urban population is growing three times faster than rural population, urban issues are more than ever relevant issues. One of the deficiencies in urban standard of living is its vulnerability to meteorological events. Pollution events resulting from high population density are more frequent, and national regulations have been introduced in order to counter these effects.

Air quality models are used to forecast these pollution events, and are usually linked with regional models or

chemical transport models. For pollution events forecasting, meteorology is one of the main sources of uncertainties (Baklanov et al., 2007). Indeed, many meteorological processes can greatly affect the concentration of pollutants, and may increase the concentration to an alert level. Aerosol particles are now considered as a potential risk for health, and pollution alert criterias now take them into account. More and more studies investigate the particles pollution events (Cubison et al., 2006; Aiken et al., 2010). Most air quality models, such as CMAQ (Smith and Mueller, 2010), CHIMERE (Bessagnet et al., 2009), MOCAGE (Lefvre et al., 1994) or CAC (Gross and Sorensen, 2007) simulate the emissions and transport of particles, but the computations are averaged over several hours due to the horizontal resolution used. One of the specific aspects of this modelling exercise is to focus on the importance of the horizontal resolution in order to reproduce local scale processes such as convective roll structures driving the pollutant distribution. Such simulations where the chemistry and aerosol equilibrium are solved at small scale are numerically expensive but may be the only way to reproduce coherent dynamical structures which occur in observations.

The CAPITOUL (Canopy and Aerosol Particle Interactions in the Toulouse Urban Layer) field experiment took place during one year in Toulouse, France, to study specific urban processes (Masson et al., 2008). During the year of measurements, several IOP were sampled for different meteorological conditions from winter to summer. This study focuses on a two-day IOP (Intensive Observational Period) which occurred on 3 and 4 July 2004 to study the pollution events and the aging of aerosols during sunny conditions. In this context, the measurements acquired during this campaign led to a modelling experiment in order to reproduce the dynamical, chemical and aerosol fields observed during this IOP.

---

Correspondence to: Aouizerats B.  
(benjamin.aouizerats@cnrm.meteo.fr)

This article will first describe the methodology of the study, which includes the description of the CAPITOU campaign and the configuration of the simulation. Then, the two-day IOP will be analysed from the regional scale to the local urban scale. Finally, a focus on the roll structure reproduced by the simulation will be presented.

## 2 Methodology

### 2.1 The CAPITOU field experiment

The CAPITOU campaign took place from February 2004 to February 2005 in the city of Toulouse, located in southwest France (Masson et al., 2008). Figure 1a shows the location of Toulouse and the elevation levels highlighting the wind corridor from northwest to southeast. The two arrows represent the prevailing winds which exist over the Toulouse area: the Autan wind (AW) blows from the Mediterranean sea to the northwest, while the general synoptic wind (GW) blows from the Atlantic Ocean to the southeast. The main regional cities with a potential pollution interaction are shown with black contours: Marseille (M) with 1,000,000 inhabitants, Lyon (L) with 1,200,000 inhabitants, Bordeaux (B) with 800,000 inhabitants and Toulouse (T) with 860,000 inhabitants.

This campaign aimed at studying the urban climate, including the energetic exchanges between the surface and the atmosphere, the dynamics of the boundary layer over the city, and its interactions with aerosol chemistry. In this context the aging of aerosol particles and the interactions between the urban dynamics and the dispersion of pollutant particles is especially relevant during summer, when the photochemistry is high and encourages the formation of secondary aerosols. The IOP chosen for this study occurred during Saturday and Sunday (3–4 July 2004), which fell on a holiday week-end with high traffic. The choice of this IOP allows us to study the two main wind regimes which are representative of the dynamical situation in the Toulouse area. During this period, the observational network included surface stations (meteorology, energy balance, chemistry), profilers and balloons. Moreover a downtown-site located in Toulouse, described by Gomes et al. (2008) was equipped for in-situ aerosol measurements.

### 2.2 Model configuration

To perform this numerical study, the research atmospheric model Meso-NH was used. Meso-NH (Lafore et al., 1998) is a non-hydrostatic and anelastic atmospheric model jointly developed by CNRM-GAME (Meteo-France/CNRS) and Laboratoire d'Aérodynamique (UPS/CNRS). The turbulence scheme is one dimensional along the vertical axis (Bougeault and Lacarrere, 1989). The surface computations include four main surface schemes: Town Energy Balance (TEB, Masson (2000)) for managing the urban areas, ISBA for the natural and agricultural covers (Noilhan and Planton,

1989), FLAKES for the lakes (Salgado and Moigne, 2010), and a scheme for sea-surface coverage (Fairall et al., 2003). The Town Energy Budget (TEB) scheme is built following the canyon approach, generalized in order to represent larger horizontal scales. The physics treated by the scheme is relatively complete. Due to the complex shape of the city surface, the urban energy budget is split into different parts: three surface energy budgets are considered: one for the roofs, one for the roads, and one for the walls. Orientation effects are averaged for roads and walls. In addition to the meteorological variables, Meso-NH computes the gaseous chemistry evolution and solves the aerosol equilibrium at each time step and on each grid point (Tulet et al., 2003). The chemical reaction module employs an 82 species: ReLACS2 (Reduced Lumped Atmospheric Chemical Scheme 2) scheme (Tulet et al., 2005) based on the CACM (Caltech Atmospheric Chemistry Mechanism) scheme developed by Griffin et al. (2002). The aerosol particle module, ORILAM-SOA (Organic Inorganic Lognormal Aerosol Model including Secondary Organic Aerosol) (Tulet et al., 2005, 2006) drives the thermodynamical equilibrium between gases and particles along the MPMPO (Model to Predict the Multiphase Partitioning of Organics) scheme (Griffin et al., 2002) for organic species and the scheme EQSAM (Equilibrium Simplified Aerosol Module) (Metzger et al., 2002) for inorganic species. The aerosol species considered are:

- black carbon ( $BC$ ) and primary organic carbon ( $OC_p$ ) for the primary species
- $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ ,  $NH_4^+$  for the inorganic ions
- 10 classes of secondary organic aerosol ( $SOA_{1,\dots,10}$ ) from Griffin et al. (2002)
- water ( $H_2O$ )

The configuration used for the simulations is made of three nested domains represented in Figure 1. The black squares on the first and second domain represent the second and third domain location, respectively. The first domain covers 800 km by 400 km with a 10 km resolution. The second domain centered on the city of Toulouse represents a 125 by 125  $km^2$  square with a 2.5 km resolution. The third domain has a 500 m resolution and covers a 25 km by 25 km area centered on downtown Toulouse. The vertical axis has a 62-level non-linear resolution, from 10 meters above ground level to 1 km above 10 km. To initialize the 2-day simulation, a 2-day spin-up is performed. During this 2-day spin-up, the first day is performed only with the first domain and the second day with the first and the second domains.

The regional forcing and initialisation are driven by ARPEGE re-analysis for the dynamics and MOCAGE for the gaseous initialisation. For particles, the background aerosols have been set up by deriving the  $CO$  concentration (Cachier et al., 2005).

## 2.3 Emission inventory

In order to have a correct representation of the gas-phase chemistry and the aerosol particle concentrations, an emission inventory of particles and gases has been made.

For that purpose, road locations, traffic information during the IOP, and calculations from COPERT-4 software (Ntzichristos et al., 2009) are merged to perform a 500-m resolution emission inventory over the third domain. This horizontal resolution is needed to be consistent with the horizontal resolution of the model. The COPERT-4 software is used for the computation of the averaged emissions for the major gases and particles over a year with the statistical data of French road traffic as an input. Then the emissions are scaled for one vehicle. Finally the traffic counts collected during the 2-day IOP are applied to the previous computation, in order to obtain an hourly emission database of  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $NO_x$ ,  $SO_2$ ,  $BC$  and  $OC_p$ . The VOC (Volatile Organic Compounds) emissions are deduced by applying a coefficient from Matsui et al. (2009) to  $NO_x$  emissions. Assuming that the main  $NH_3$  emissions around Toulouse are not mainly from traffic emissions but due to agricultural activities,  $NH_3$  is emitted according to the GEMS inventory (Visschedijk et al., 2007) with an horizontal resolution of  $\frac{1}{8}$  degree by  $\frac{1}{16}$  degree.

As an example, Figure 1 shows the emissions of black carbon from this inventory over the second and third domain at 10 UTC the 3rd July.

## 3 Description of the IOP and model results

### 3.1 Description of the situation

The situation observed and modeled during this two-day IOP has been analyzed both at a meso-scale and at sub-regional scale.

#### 3.1.1 Meso scale pollution

Figure 2 shows the aerosol mass concentrations over the first domain with a horizontal resolution of 10 km at three representative given moments: 3 July at 10 UTC, 4 July at 00 UTC and 4 July at 10 UTC. Figure 2a shows that on 3 July, the synoptic wind blows from northwest over Toulouse (T), Lyon (L) and Marseille (M). The wind over Bordeaux (B) blows from the west, and turns to southeast during the day. The pollution plume from Bordeaux has an aerosol mass concentration of  $4 \mu g.m^{-3}$ , with the same order of magnitude as the plume from Lyon or Toulouse where the plume has a maximum of 5 and  $4 \mu g.m^{-3}$  respectively. On the contrary, the plume from Marseille is mainly out of the boundaries of the domain because of the high wind regime blowing from land to sea ( $> 7 m.s^{-1}$ ). Figure 2b shows that during the night between 3 and 4 July, the wind velocities stagnate, and especially over the

Toulouse area. The plume emitted earlier from Bordeaux reaches the northwest of Toulouse during the night with concentrations of  $5 \mu g.m^{-3}$  as shown in Figure 2b. The plume originating from Lyon reaches the Mediterranean Sea, 100 km east of Marseille. Then, during the day of 4 July the air flow reverses and the wind blows from southeast over Toulouse. The gas-phase precursors accumulated over Toulouse during the night are mixed with the plume from Bordeaux. In the simulation, the pollution plume emitted on 3 July from Bordeaux reaches an area situated 50 km to the northeast of Toulouse at 00 UTC on 4 July when the wind reverses (Figure 2b). Figure 2c shows the fresh plume from Toulouse almost mixing with the plume emitted from Bordeaux the previous day. The advection of this resulting plume leads to a meeting with a local aerosol concentration maximum located over Bordeaux due to a very low wind regime ( $< 2 m.s^{-1}$ ) and the accumulation of particles. The evolution of aerosol mass concentrations as shown in Figure 2 highlights the regional interactions between different cities. Indeed, the pollution plume developed during 4 July along an axis Toulouse-Bordeaux appears to be a succession of three local maxima resulting from the fresh emissions from Toulouse, the mixing of aerosols emitted by Bordeaux the previous day with secondary aerosols resulting from gas-phase emissions by the Toulouse area, and the fresh emissions from Bordeaux respectively. It is also worth noting that in these simulations, the high concentrations observed on the southern-most part of Figure 2b and 2c come from outside the boundary of the domains, and can certainly be attributed to the pollution emitted from Barcelona (Spain).

#### 3.1.2 Sub-regional scale plumes

The situation observed during the IOP can be analysed by dividing the 2-day period into 3 different regimes over the Toulouse area. Figure 3 illustrates the different situations using model results from the second domain at the surface. During the first 18 hours, a moderate wind (more than  $6 m.s^{-1}$ ) blows from northwest over Toulouse. Figure 3a describes this situation at 10 UTC on 3 July. Primary aerosol concentrations (left) are concentrated over Toulouse (T) where they are emitted with a maximum of mass concentration of  $4 \mu g.m^{-3}$ . Regional cities such as Agen (A), Castres (C), Carcassonne (CC) and Saint-Gaudens (SG) also exhibit local maxima of primary aerosols. The secondary aerosol particles are concentrated along the plume where the gas-phase precursors needed for the photo-reactions are located. The maximum of the secondary aerosols concentration is located 30 km southeast of Toulouse with a value of  $7 \mu g.m^{-3}$ .

During the night a low-wind regime develops with mean wind velocities values about  $2 m.s^{-1}$  and a maximum of  $4 m.s^{-1}$ . Moreover, on the northwestern-most section of the domain (point A, on Figure 3b) one can observe a conflu-

ence of winds from south, east and northwest. This phenomena leads to an accumulation of primary aerosols with concentrations higher than  $6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  located over Toulouse as shown on Figure 3b (left). The secondary aerosol concentrations (right) are quite high ( $6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) on the northwest area of Toulouse (A) due to the resulting plume from Bordeaux created on 3 July, and stopped over A during the night because of the low wind regime. Moreover, subsidence, which appeared during the night, brings the aerosols located within the mixing layer to the ground, resulting a relatively high secondary aerosol concentration. The minimum value is  $3 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and is located on the southeast part of the 2nd domain in an area not influenced by the plume from Bordeaux. Finally, from 4 July, 06 UTC, (not shown here) to the end of the period, the wind reverses and blows from southeast with typical speed of  $6 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . As shown in Figure 3c, on 4 July at 10 UTC, the primary aerosols are again concentrated over Toulouse, where they are emitted, with a maximum of  $7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . The secondary aerosol concentrations are high ( $> 7 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) in the Toulouse plume due to the high concentrations of gas-phase precursors accumulated during the night. The other plume visible at point A and to the east results from the high concentration of gas-phase precursors transported from a plume emitted earlier from Bordeaux and accumulated during the night.

### 3.2 Urban scale simulations analysis

The model results at local scale have been evaluated in regard to observations. The dynamics and aerosol evolution are both compared to measurements.

#### 3.2.1 Evolution of the wind profile

Figure 4 represents the modeled (a) and observed (b) evolution of the wind direction, and the modeled (c) and observed (d) wind speed during the 48 hours of the simulation. Observations were carried out with an UHF radar located in Toulouse downtown (Masson et al., 2008). Figure 4 allows us to focus on the different wind regimes observed over Toulouse and compare them with the simulation results. Figure 4a and 4b show that the wind direction on 3 July (plotted in light blue colors) is from northwest as described at the larger model scale (Section 2). On 4 July, the observations show a southeast wind (plotted in orange colors) within the mixing layer. The observations also show a wind shear with opposite directions above the boundary layer at 1000 m on 4 July 00 UTC and increasing to 2000 m between 12 to 18 UTC. The wind regimes are correctly represented for the studied period including the shear above the boundary layer itself and the boundary layer height which can be deduced from the altitude of the shear as well. However, some differences also exist between the observations and simulation results. First, during the night, the observed and modeled wind directions above the height of 1000 m are almost oppo-

site. Second, the height of the shear during the night is not the same. From 00 to 06 UTC, the simulation represents a shear at 700 m height, while the observations show a shear at about 1000 m height.

Figure 4c and 4d show the modeled and observed evolution of wind velocity profiles. While the wind direction observations were consistent on, the wind velocities observed are more random. Nevertheless, the observations first show that the wind speed is around  $5 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  in the boundary layer on 3 July from 12 to 20 UTC, and around  $6 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  on 4 July. During the night, the observations show a lower wind regime ( $< 3 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) from 3 July, 22 UTC, to 4 July, 06 UTC. Model results show the same low wind regime during the night for layers smaller than 1000 m. However, the simulation results show that on 4 July, the wind blows back to northwest earlier than observed for lower layers. Moreover, on 3 and 4 July, while the model simulates a wind speed with lower maxima and higher minima, the average is similar to the observations. The average wind speed modeled for 3 July from 06 to 20 UTC at the ground level is  $4 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , compared to  $5 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  for the observations. Similarly, for 4 July from 06 to 20 UTC, the average modeled wind speed at the ground is  $5 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , compared to  $6 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  for the observations. While the main trend seems to be correctly simulated, the wind speed is slightly underestimated with respect to observations. In general, the model manages to reproduce the main trends for the wind evolution (speed and direction). Most of the differences between observations and model results are below  $1 \text{m}\cdot\text{s}^{-1}$  for the wind speed and 45 degrees for the direction. Temperature and relative humidity observations from 21 meteorological stations in Toulouse area also were also in relatively good agreement with model results (not shown here).

#### 3.2.2 Evolution of aerosol mass concentrations

An other criteria of model evaluation is to examine the modeled aerosol mass concentrations. Figure 5 shows the evolution of the measurements of (a) black carbon and (b) total aerosol mass concentrations (represented by black crosses) for the downtown site. The dashed red (blue) line shows the evolution of the modeled black carbon (total aerosol) mass concentration for the grid point of the downtown-site, and the red (blue) contour filled by orange (light blue) denotes the minimum and maximum of the modeled concentrations at grid points located in the downtown Toulouse stations which are all located over a 4 by 4 km square centered on the downtown-site. The average values corresponding to this area are drawn in dashed black line.

Both modeled black carbon and total aerosol mass concentrations have the same order of magnitude as the observations. It is noticeable that the temporal variability is high and even more pronounced for the black carbon mass concentrations. This can be explained by the direct link between black carbon concentrations and the traffic

emissions. During the night between Saturday 3 July and Sunday 4 July, the observed and modeled black carbon concentrations increase, and this can be explained by an increase of traffic on this week-end night. However, the black carbon concentrations seem to be overestimated by the simulation during the two days, when the observed concentrations are very low, below  $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Moreover the model results show high spatial variability as black carbon concentrations can reach  $9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  at 4 July 00 UTC at the downtown site, whereas some grid points in the 4 by 4 km area show concentrations below  $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Those temporal and spatial variabilities can also be noticed on the total mass concentrations with a maximum value of  $55 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and minimum value of  $6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ .

Figure 6 shows the evolution of (a) primary and (b) secondary aerosol mass concentration profiles over the downtown-site during the 2-day simulation. The boundary layer height observed by balloon measurements is overlaid with black crosses, and the height computed in the simulation is drawn with red crosses. Figure 6 confirms that the boundary layer height is acceptably well represented by the model. However, the height of the mixing boundary layer shows a consistent underestimation (with a difference between 50 and 200 meters), except on 4 July 08 UTC when simulations and observation show heights of 600 m and 300 m, respectively. Figure 6 highlights the difference of vertical distributions between primary and secondary aerosols. Primary aerosols are mainly concentrated at surface, whereas secondary aerosols vertical distribution is more chaotic. Figure 6 also shows the temporal and vertical variability between primary and secondary aerosols, and illustrate that primary aerosol are concentrated when the emissions are the highest, i.e. when during episodes of high traffic: like on 4 July 00 UTC, when the observations show an emission peak of black carbon with a resulting maximum concentration of  $4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (Figure 5). Secondary aerosols mainly result from photochemistry which occurs with the solar radiation during the day. The highest concentrations of secondary aerosols over Toulouse occur from 06 to 20 UTC. On 4 July 02 UTC, the observations show a similar peak of black carbon resulting in a maximum of mass concentration of  $4.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . While this peak is not represented by the simulation, we attribute this difference to observed and simulated meteorology; observations show a change in the wind field at 06 UTC (Figure 4), while the model simulate this change at 02 UTC. Another peak of black carbon emission is on 4 July 06 UTC with a resulting maximum of Black Carbon mass concentration of  $4.5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . This peak is correctly represented by the model, and probably results from morning traffic linked with a low mixing layer, as shown with black and red crosses on Figure 6. We can also notice a mass of primary aerosols reaching Toulouse from July 4 at 10 UTC between 1200 and 200 m. Finally, at the end of 4 July, a highly concentrated secondary

aerosol air mass reaches Toulouse first 2000 m above the surface and followed by mixing throughout the column. The simulation shows that this air mass comes from the Mediterranean coast and is advected over Toulouse with high concentrations of nitrates.

#### 4 Development of the two different pollutants dispersion regimes

While it is critical to know the dynamical situation for the understanding and forecasting of pollutant dispersion, it is natural to wonder if the model can reproduce complex situations as convective rolls.

##### 4.1 Evolution of the dynamical parameter $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$

Observations such as the wind direction or the potential temperature illustrate that the dynamical situation over Toulouse is very different between the two days of simulation, as the potential temperature differs by 10 K between 3 and 4 July. To focus on those two different situations, Figure 7 represents the evolution of the parameter  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$ , where  $H_{BL}$  is the boundary layer height and  $L_{MO}$  is the Monin-Obukhov length.

The Monin-Obukhov length is a characteristic length of the stability of the boundary layer, and is expressed as  $L_{MO} = \frac{u_*^3 \cdot \theta \cdot \rho \cdot c_p}{\kappa \cdot g \cdot H}$  with  $u_*$  the friction velocity,  $\theta$  the potential temperature,  $\rho$  the air density,  $c_p$  the air capacity,  $\kappa$  the Von Karman constant,  $g$  the gravity acceleration, and  $H$  the sensible heat flux.

The evolution of the parameter  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$  is deduced from observations at two sites (Figure 7 in blue over the downtown site of Toulouse and in green over the Saint-Sardos site located 30 km northwest of Toulouse) and during the two days of the IOP (in continuous line for 3 July and in dashed line for the 4 July) Many experimental and modelling studies have characterized the behaviour of the boundary layer as a function of the parameter  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$ . Grossman (1982) describes the function of the parameter value as follows:

- $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}} \leq 5.0$  : Only roll vortex motion
- $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}} \leq 7.3$  : Rolls coexist with convective cells and are necessary for their maintenance; rolls dominant
- $7.3 \leq -\frac{H_{BL}}{L_{MO}} \leq 21.4$  : Rolls coexist with convective cells but are not necessary for their maintenance; random cells dominant
- $21.4 \leq -\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$  : Random cells only but the shear is important to cell structure and morphology

Those values are deduced from the BOMEX campaign over the ocean. Other studies (Weckwerth, 1994; Moeng



and Sullivan, 1994; Hartmann et al., 1997) suggested other criteria, but the trend is always the same with higher values of  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$  representing conditions where convective cells dominate. Although most of these studies show the limits of  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$  between 10 and 30 for the separation between cells and rolls, Christian and Wakimoto (1989) observed rolls over Colorado with a value of 270 for  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$ .

Thus, Figure 7 shows that the dynamical structure over Toulouse area is different between the 2 days of simulation, and the parameter  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$  shows values on 4 July lower than those on 3 July at the two observation sites. Moreover observations from the Toulouse site on 4 July (drawn in continuous blue line) has values of  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$  most often lower than 20, which is a commonly observed value for the rolls. Therefore, we could expect the formation of rolls on 4 July.

As previously shown, the plume of particles is represented at the regional scale, by the formation of secondary aerosols in the plume of main cities such as Toulouse. However, with high resolution modelling, the distribution of aerosol particles shows a different shape. This differences are mainly due to effect of the resolution on the turbulent scheme used in the 2nd and 3rd domains. To understand the importance of turbulence regime for the particle dispersion, we focus on the dynamical conditions during the two days of the IOP.

#### 4.2 First day: Classic plume of pollution with convective cells

Figure 8 shows a set of 4 instantaneous fields at 12 UTC on 3 July. First, the horizontal cross section of the total aerosol mass concentration at 200m above ground level over the 2nd domain is shown in Figure 8a. The concentrations present a classic plume pattern, with a local maximum of  $6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  assumed to be primary aerosols as shown in Figure 3 over the urban area of Toulouse, and  $10 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  for aerosols, assumed to be secondary as shown in Figure 3, 25 km southeast of Toulouse. The horizontal wind vectors are overlaid with black arrows.

Figure 8b presents the same field over the 3rd domain. Unlike over the 2nd domain, the concentrations seem to be concentrated along rolls. Those concentrations show a factor three in and out of the roll (from 4 to  $12 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ).

Figure 8c shows the volume of primary aerosol mass concentration equals to  $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . While the horizontal cross section suggests that the aerosol concentrations are advected only along roll motion, the 3-D volume shows cell structures, which seem to concentrate a large amount of particles (eastern part of the Figure 8c).

Figure 8d shows the vertical cross section of the red line in Figures 8b and 8c for the primary aerosol mass concentration. The convective cells show a mixing height of 1800 m with primary aerosol concentrations of about  $6 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

and wind speeds along the vertical cross section higher than  $30\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . These wind speeds include a dilatation factor for the vertical wind component equals to 13. This suggest that for a vertical wind arrow along the cross section corresponding to a value of  $26\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , the corrected value is  $2\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ .

Figure 8 illustrates results expected by the observations of the parameter  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$ , i.e. coexisting cells and rolls. However, the model cannot reproduce those structures with a 2.5 km resolution. Only the 3rd domain with the 500 m resolution manages to reproduce this complex dynamical situation.

#### 4.3 Second day: Turbulent rolls as pollutants drivers

Figure 9 shows the same set of 4 instantaneous fields on 4 July at 12 UTC. Figure 9a also shows the horizontal cross section of the total aerosol mass concentration at 200m above ground level over the 2nd domain (as in Figure 8a). The concentrations still present a classic plume pattern with the concentration of aerosols, assumed to be secondary as shown in Figure 3, higher than  $12 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  located 25 km northwest of Toulouse. The horizontal wind vectors are overlaid with black arrows. Figure 9b presents the same field over the 3rd domain. The rolls are again modeled at 500-m resolution, and represent a more coherent structure. The difference between concentrations located in and out of the rolls is still higher than on 3 July, with values of  $15 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and  $4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  only separated by only 3 km.

Figure 9c shows the volume of primary aerosol mass concentration equals to  $2 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  and shows that aerosol particles are all concentrated within the rolls. The concentrations over the altitude of 1500 m are not shown in this 3-D volume. Unlike 3 July, there are no cells and the rolls show a coherent 3-dimensional structure.

Figure 9d shows the vertical cross section (presented as a red line in Figures 9b and 9c) of the primary aerosol mass concentration. In this cross section, only rolls are present. The main differences between 3 July and 4 July is the vertical wind velocities, which are much smaller in the rolls on 4 July ( $\leq 0.5\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ) than within the convective cells on 3 July ( $\geq 2\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ ). Consequently, the aerosol particles are less mixed within the boundary layer on 4 July even though the potential temperature is 10 K warmer than 3 July. The boundary layer height on 4 July from 10 to 18 UTC is 250 m less than on 3 July. We can also notice the presence of an highly aerosol concentrated layer above the boundary layer. Figure 9 illustrates results expected by the observations of the parameter  $-\frac{H_{BL}}{L_{MO}}$ , i.e., only convective rolls are present. However, even when only rolls are present, the model still cannot reproduce those structure with a resolution of 2.5 km. Only the 3rd domain with a resolution of 500 m manages to reproduce this complex dynamical situation.

## 5 Conclusions

To have a better understanding of the urban meteorological processes, necessary for air quality monitoring, measurements acquired during the CAPITOUL field experiment allowed us to evaluate the performance of high resolution numerical simulations. One of the main sources of uncertainties in air quality forecasting results from representation of the meteorological conditions. Yet the meteorological fields strongly depend on the resolution of the domains. In this study, the importance of the horizontal resolution has been highlighted for adequate representation of the meteorological fields, and the link between the domain resolution and the kind of pollution investigated. While the 10 km resolution domain allows us to focus on pollution events and interaction cities on a regional scale, the 500-m resolution domain permits to investigate the role of boundary layer structure in determining the distribution of pollutant. Both dynamical and aerosol concentration fields were correctly reproduced by the simulation during the two-day IOP. The results of the 500 meter resolution simulation showed that during these two days, the turbulent situation was different with convective rolls concentrating the major part of the aerosol particles. The impact of this roll structure is highlighted by a factor of 5 of the pollutant concentration that can be observed over distances shorter than 3 km. Consequently, this study illustrates the importance in reproducing such structures in case of local pollution event or chemical accident. The suggested high sensitivity of roll structures to dynamical situation should be further investigated; in particular, the feedbacks of aerosol particles on atmospheric dynamics through radiative forcing.

*Acknowledgements.* The authors are indebted to Valery Masson for the organization of the CAPITOUL experiment. They gratefully thank Meteo France for its support. Logistic help from local agencies (La Poste, ORAMIP) is gratefully acknowledged. The authors would also like to thank G. Roberts for its valuable comments on this paper.

## References

Aiken, A. C., de Foy, B., Wiedinmyer, C., DeCarlo, P., Ulbrich, I., Wehrli, M., Szidat, S., Prevot, A., Noda, J., Wacker, L., Volkamer, R., Fortner, E., Wang, J., Laskin, A., Shutthanandan, V., Zheng, J., Zhang, R., Paredes-Miranda, G., Arnott, W., Molina, L., Sosa, G., Querol, X., and Jimenez, J.: Mexico city aerosol analysis during MILAGRO using high resolution aerosol mass spectrometry at the urban supersite (T0) - Part 2: Analysis of the biomass burning contribution and the non-fossil carbon fraction, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5315–5341, doi:10.5194/acp-10-5315-2010, 2010.

Baklanov, A., Hnninen, O., Sirdal, L. H., Kukkonen, J., Bjergene, N., Fay, B., Finardi, S., Hoe, S. C., Jantunen, M., Karppinen, A., Rasmussen, A., Skouloudis, A., Sokhi, R. S., Srensen, J. H.,

, and degaard, V.: Integrated systems for forecasting urban meteorology, air pollution and population exposure, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 855–874, 2007.

Bessagnet, B., L. Menut, G. Curci, A. Hodzic, B. Guillaume, C. Lioussé, S. Moukhtar, B. Pun, C. Seigneur, and M. Schulz: Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe - Focus on Secondary Organic Aerosols, *J. Atmos. Chem.*, in press, 2009.

Bougeault, P. and Lacarrere, P.: Parametrization of orography-induced turbulence in a meso-beta model, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 1872–1890, 1989.

Brown, L.: *Eco-Economy: Building an Economy for the Earth*, 2001.

Cachier, H., Aulagnier, F., Sarda, R., Gautier, F., Masclet, P., Besombes, J., Marchand, N., Despiou, S., Croci, D., Mallet, M., Laj, P., Marinoni, A., Deveau, P., Roger, J., Putaud, J., van Dingenen, R., Dell'Acqua, A., Viidanoja, J., dos Santos, M. M., Lioussé, C., Cousin, F., Rosset, R., Gardrat, E., and Galy-Lacaux, C.: Aerosol studies during the ESCOMPTE Experiment : an overview, *Atmospheric Research*, 74, 547–563, 2005.

Christian, T. and Wakimoto, R.: The relationship between radar reflectivities and clouds associated with horizontal roll convection on 8 August 1982, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 1530–1544, 1989.

Cubison, M. J., Alfarra, M., Allan, J., Bower, K., Coe, H., McFiggans, G., Whitehead, J., Williams, P., Zhang, Q., Jimenez, J., Hopkins, J., and Lee, J.: The characterisation of pollution aerosol in a changing photochemical environment, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5573–5588, doi:10.5194/acp-6-5573-2006, 2006.

Fairall, C., J. E. Hare, Grachev, A. A., and Edson, J. B.: Bulk parameterization of air-sea fluxes: Updates and verification for the COARE algorithm., *Journal of Climate*, 16, 571–591, 2003.

Gomes, L., Mallet, M., Roger, J., and Dubuisson, P.: Effects of the physical and optical properties of urban aerosols measured during the CAPITOUL summer campaign on the local direct radiative forcing, *Meteorology and Atmospheric Physics*, 108, 289–306, 2008.

Griffin, R., Dabdub, D., and Seinfeld, J.: Secondary organic aerosol. 1. Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents, *J. Geophys. Res.*, 107(D17), 4332, doi:10.1029/2001JD000541, 2002.

Gross, A., A. B. B. A. L. T. and Sorensen, J. H.: CAC: An Air Pollution Model from Regional to Urban Scale Modelling, CAC: An Air Pollution Model from Regional to Urban Scale Modelling, edited by Baklanov, A., Mahura, A., and Sokhi, R., Copenhagen, 128–134, 2007.

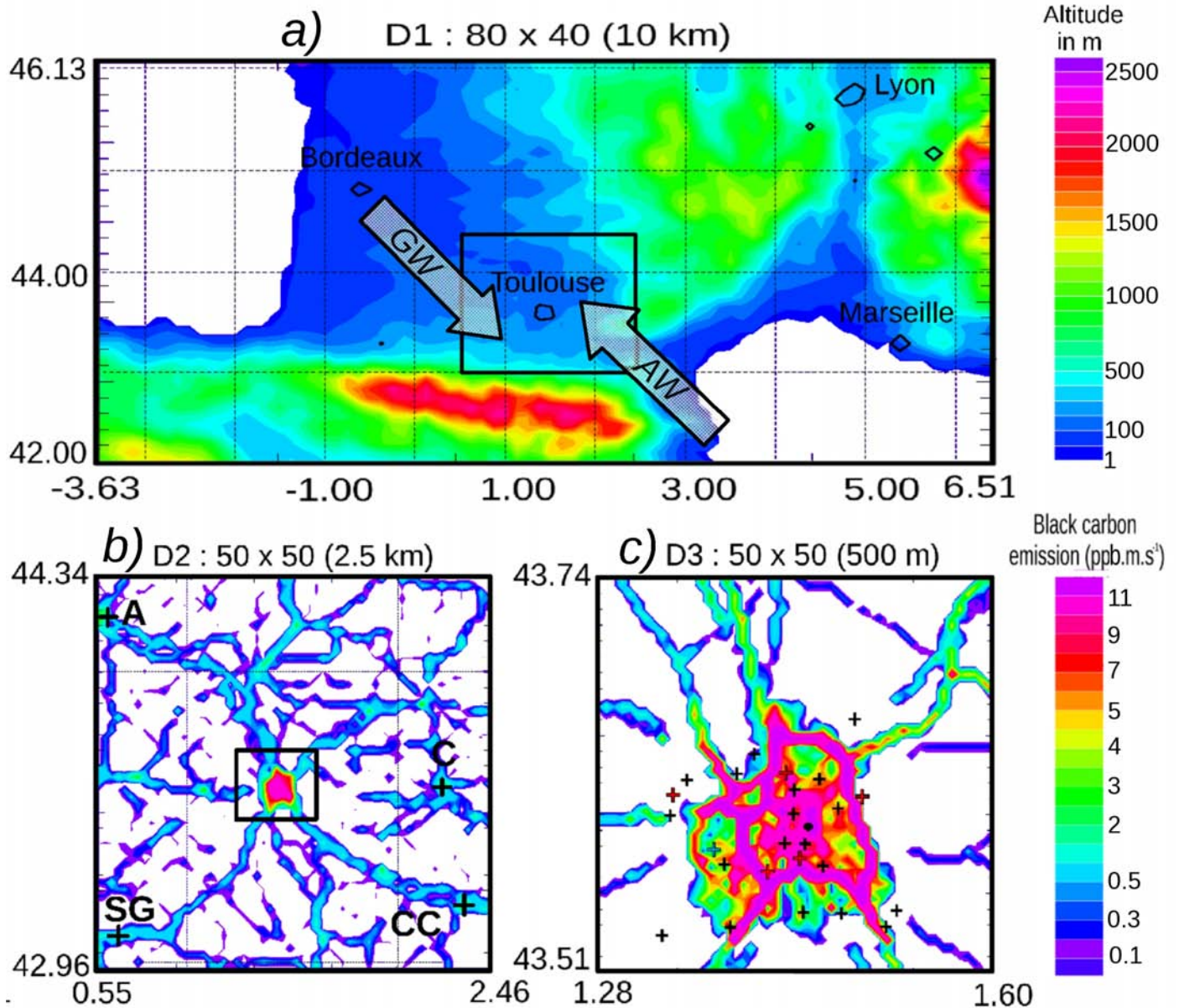
Grossman, R.: An analysis of vertical velocity spectra obtained in the BOMEX fair-weather, trade-wind boundary layer, *Boundary-Layer Meteorology*, 23, 323–357, 1982.

Hartmann, J., Kottmeier, C., and Raasch, S.: Roll vortices and boundary layer development during a cold air outbreak, *Boundary-Layer Meteorology*, 84, 45–65, 1997.

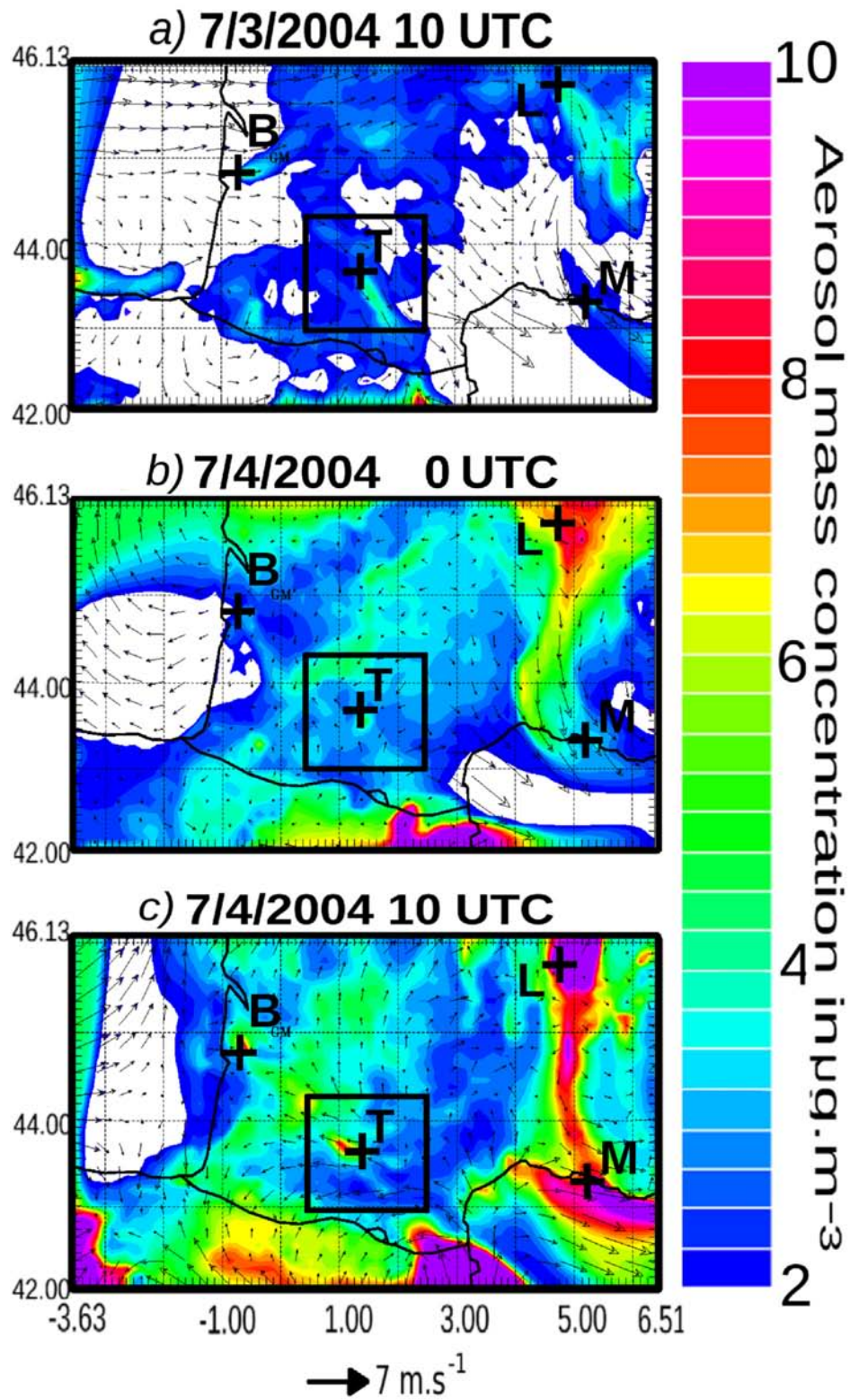
Lafore, J., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Hereil, P., Mascart, P., Pinty, V. M. J., Redelsperger, J., Richard, E., and de Arellano, J. V.-G.: The Mesoscale atmospheric simulation system. PART I: adiabatic formulation and control simulations, *Ann. Geophys.*, 16, 90–109, 1998.

Lefvre, F., Brasseur, G., Folkins, I., Smith, A., and Simon, P.: Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter: three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.*, 99(D4), 8183–8195, 1994.

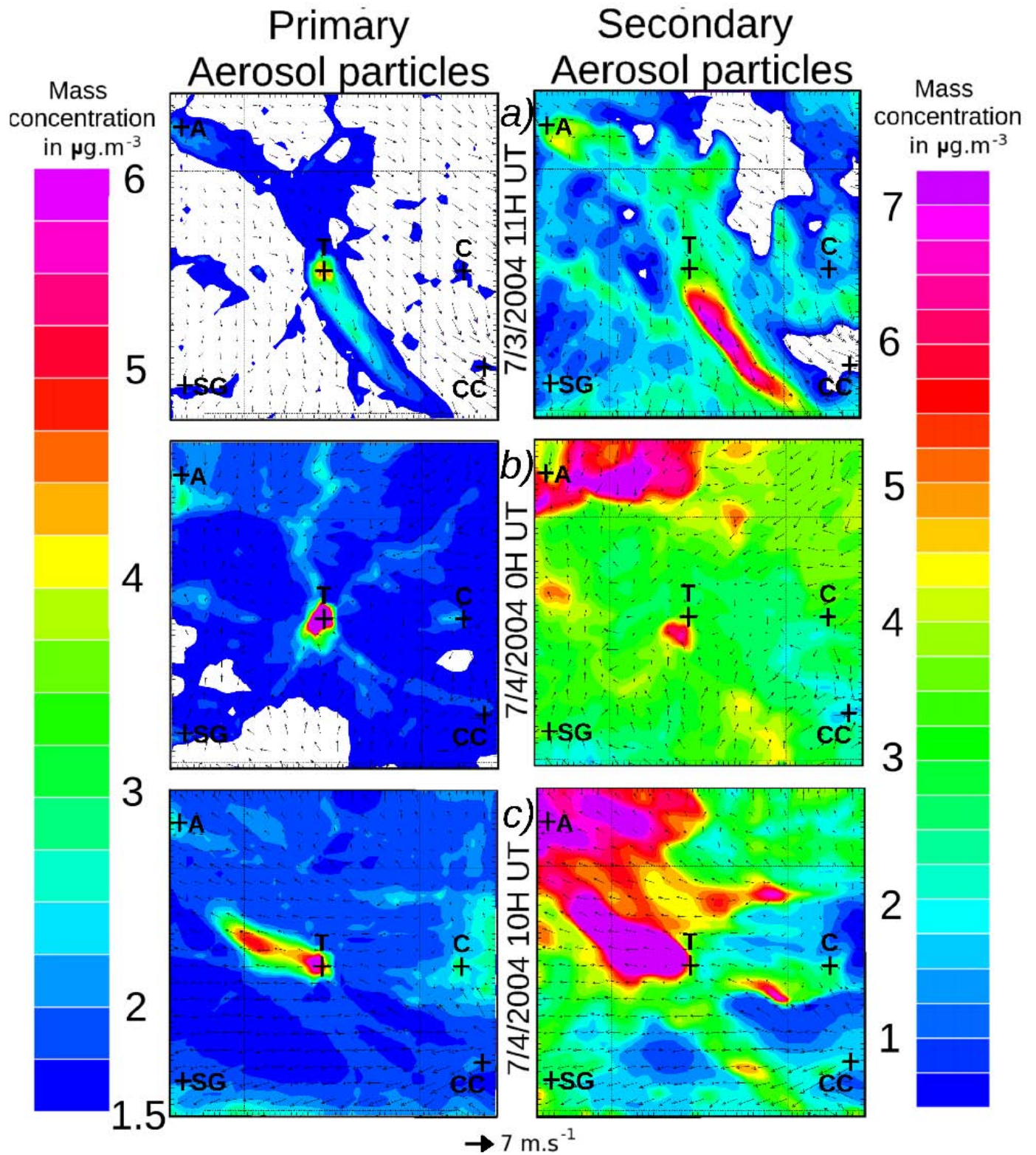
- Masson, V.: A physically-based scheme for the urban energy balance in atmospheric models, *Boundary-Layer Meteorology*, 94, 357–397, 2000.
- Masson, V., Gomes, L., Pigeon, G., Lioussé, K., Lagouarde, J.-P., Voogt, J., Salmond, J., Oke, T., Legain, D., Garrouste, O., and Tulet, P.: The Canopy and Aerosol Particles Interactions in TOulouse Urban Layer (CAPITOUL) experiment, *Meteorology and Atmospheric Physics*, in press, 2008.
- Matsui, H., Koike, M., Takegawa, N., Kondo, Y., Griffin, R. J., Miyazaki, Y., Yokouchi, Y., and Ohara, T.: Secondary organic aerosol formation in urban air: Temporal variations and possible contributions from unidentified hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, 114, doi:10.1029/2008JD010164, d04201, 2009.
- Metzger, S., Dentener, F., Pandis, S., and Lelieveld, J.: Gas/aerosol partitioning: 1. A computationally efficient model, *J. Geophys. Res.*, 107, ACH16.1–ACH16.24, 2002.
- Moeng, C. and Sullivan, P.: A comparison of shear and buoyancy driven planetary boundary layer flows, *J. Atmos. Sci.*, 51, 999–1022, 1994.
- Noilhan, J. and Planton, S.: A simple parameterization of land surface processes for meteorological models, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 536–549, 1989.
- Ntziachristos, L., Gkatzoflias, D., Kouridis, C., and Samaras, Z.: COPERT: A European Road Transport Emission Inventory Model, *Environmental Science and Engineering, Part 2*, 491–504, doi: 10.1007/978-3-540-88351-7\_37, 2009.
- Salgado, R. and Moigne, P. L.: Coupling of the FLake model to the Surfex externalized surface model, *Boreal Env. Res.*, 15, in press, 2010.
- Smith, S. and Mueller, S. F.: Modeling natural emissions in the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Model - I: building an emissions data base, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 4931–4952, 2010.
- Tulet, P., Crassier, V., Solmon, F., Guedalia, D., and Rosset, R.: Description of the MESOScale NonHydrostatic Chemistry model and application to a transboundary pollution episode between northern France and southern England, *J. Geophys. Res.*, 108, D1, 4021, 2003.
- Tulet, P., Crassier, V., Cousin, F., Shure, K., and Rosset, R.: ORILAM, A three moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model. On-line coupling into the MesoNH-C model and validation on the ESCOMPTE campaign, *J. Geophys. Res.*, 110, doi:10.1029/2004JD005716, 2005.
- Tulet, P., Grini, A., Griffin, R., and Petitcol, S.: ORILAM-SOA: A computationally efficient model for predicting secondary organic aerosols in 3D atmospheric models., *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2006JD007152, 2006.
- Visschedijk, A., Zandveld, P., and van der Gon, H.: A High Resolution Gridded European Emission Database for the EU Integrated Project GEMS, Technical Report TNO, aR0233/B, TNO, Apeldoorn, 2007.
- Weckwerth, T.: A study of horizontal convective rolls occurring within clear-air convective boundary layers, Thesis of University of California, Los Angeles, National Center for Atmospheric Research, 179 pp., 1994.



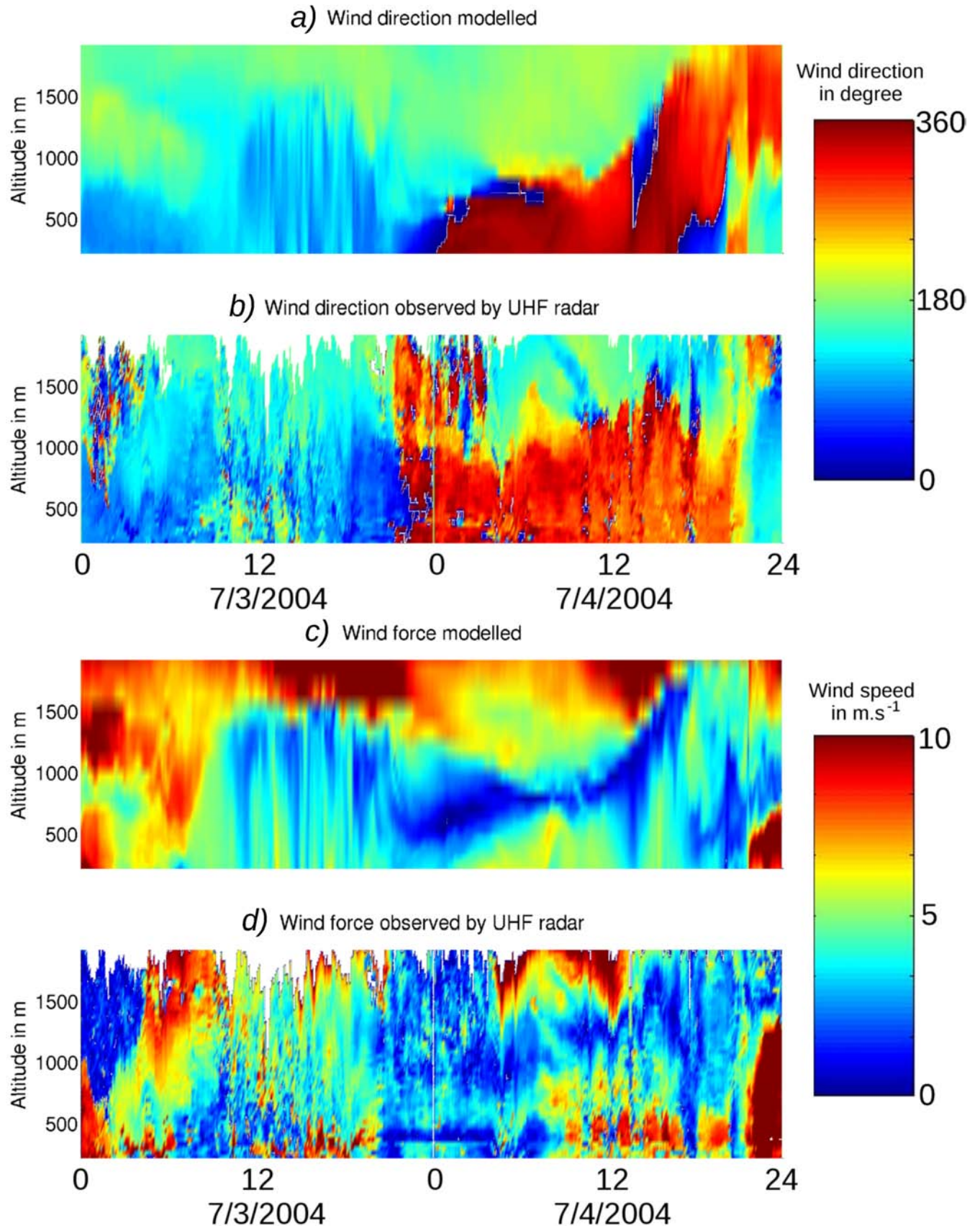
**Fig. 1.** The three nested domains color-coded for (a) elevation above sea level in meter, (b) and (c) and black carbon emissions in  $\text{ppb.m.s}^{-1}$  at 3 July 10 UTC. In (a) the arrows symbolize the two dominant wind regimes AW for the Autan wind and GW for the general wind. The black crosses over the 2nd domain (b) mark the main regional cities: A for Agen, SG for Saint-Gaudens, CC for Carcassonne, and C for Castres. The crosses over the 3rd (c) domain denote the observational network; black and red crosses show the light meteorological stations and the gaseous chemistry stations, respectively.



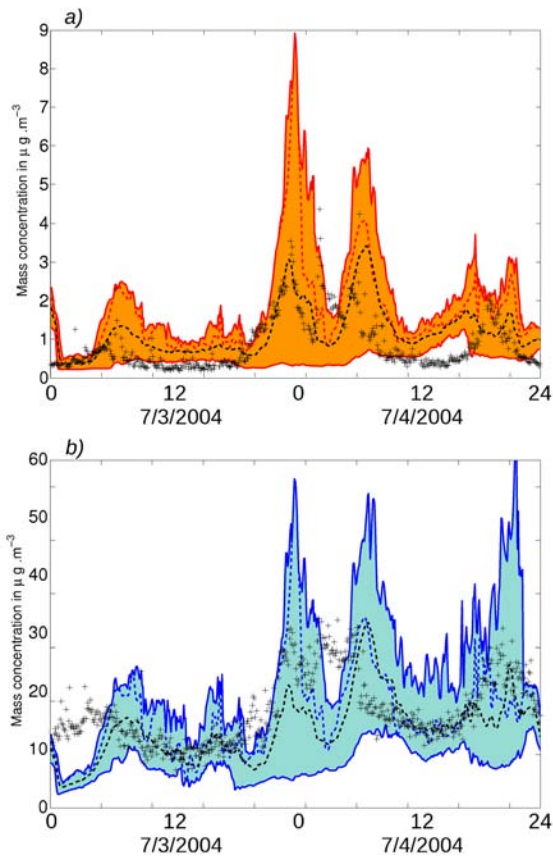
**Fig. 2.** Aerosol mass concentrations in  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (color scale) over the 1st domain a) on 3 July 10 UTC, b) on 4 July 00 UTC, c) on 4 July 10 UTC with the wind vectors at the ground level (black arrows). The main cities are drawn in black crosses: B for Bordeaux, T for Toulouse, L for Lyon and M for Marseille.



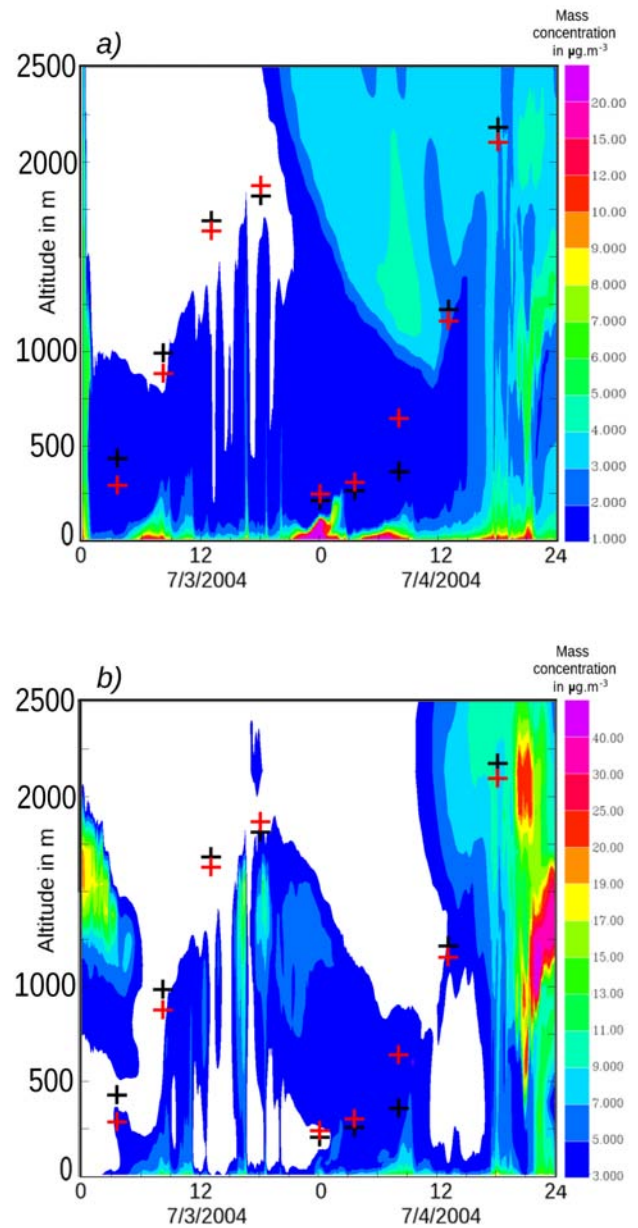
**Fig. 3.** Primary (left) and secondary (right) aerosol mass concentrations in  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  over the second domain *a*) on 3 July 10 UTC, *b*) on 4 July 00 UTC and *c*) on 4 July 10 UTC with the wind vectors at the ground level (black arrows). Black crosses mark the location of regional cities: T for Toulouse, A for Agen, C for Castres, SG for Saint-Gaudens, and CC for Carcassonne.



**Fig. 4.** Modeled and observed Wind direction (a and b, respectively) and wind force (c and d, respectively). Observations carried out by an UHF radar.

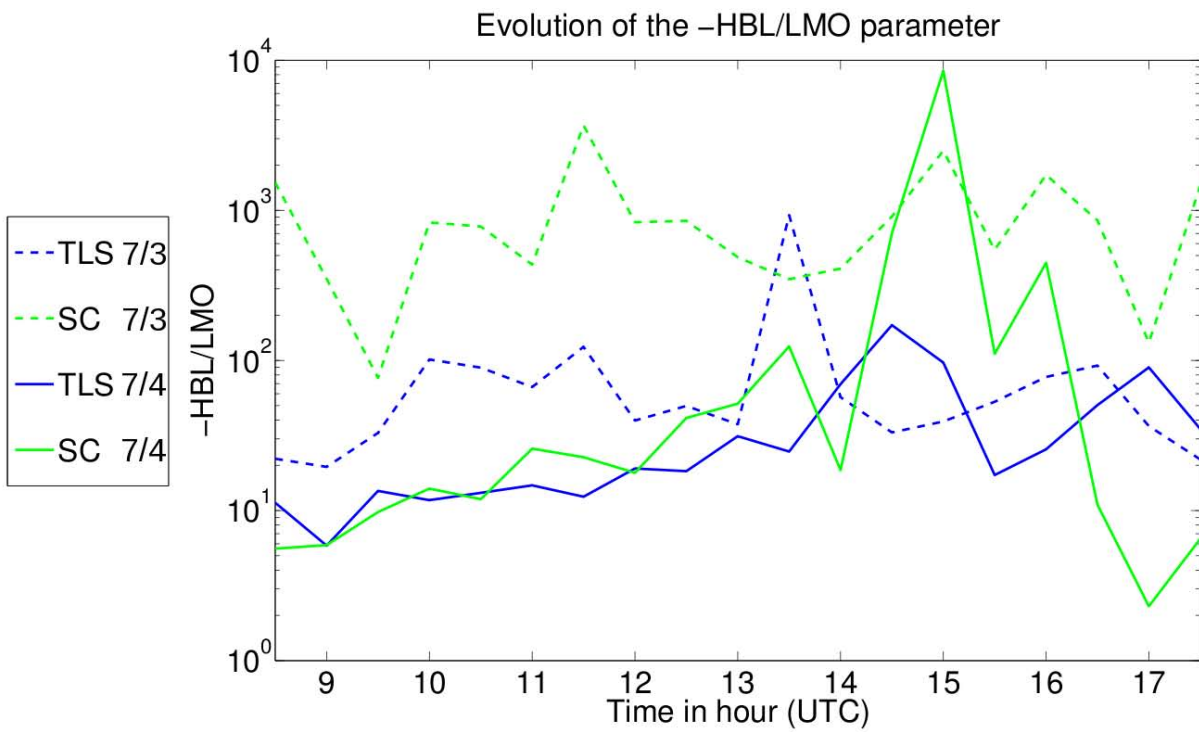


**Fig. 5.** (a) Black carbon and (b) total aerosol mass concentration in  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  measured (black crosses) and modeled at the downtown-site in dashed (a) red line and (b) blue lines. The envelope which encompass all the downtown station measurements are in (a) orange and (b) blue area. The average value corresponding to this area is drawn in dashed black line.

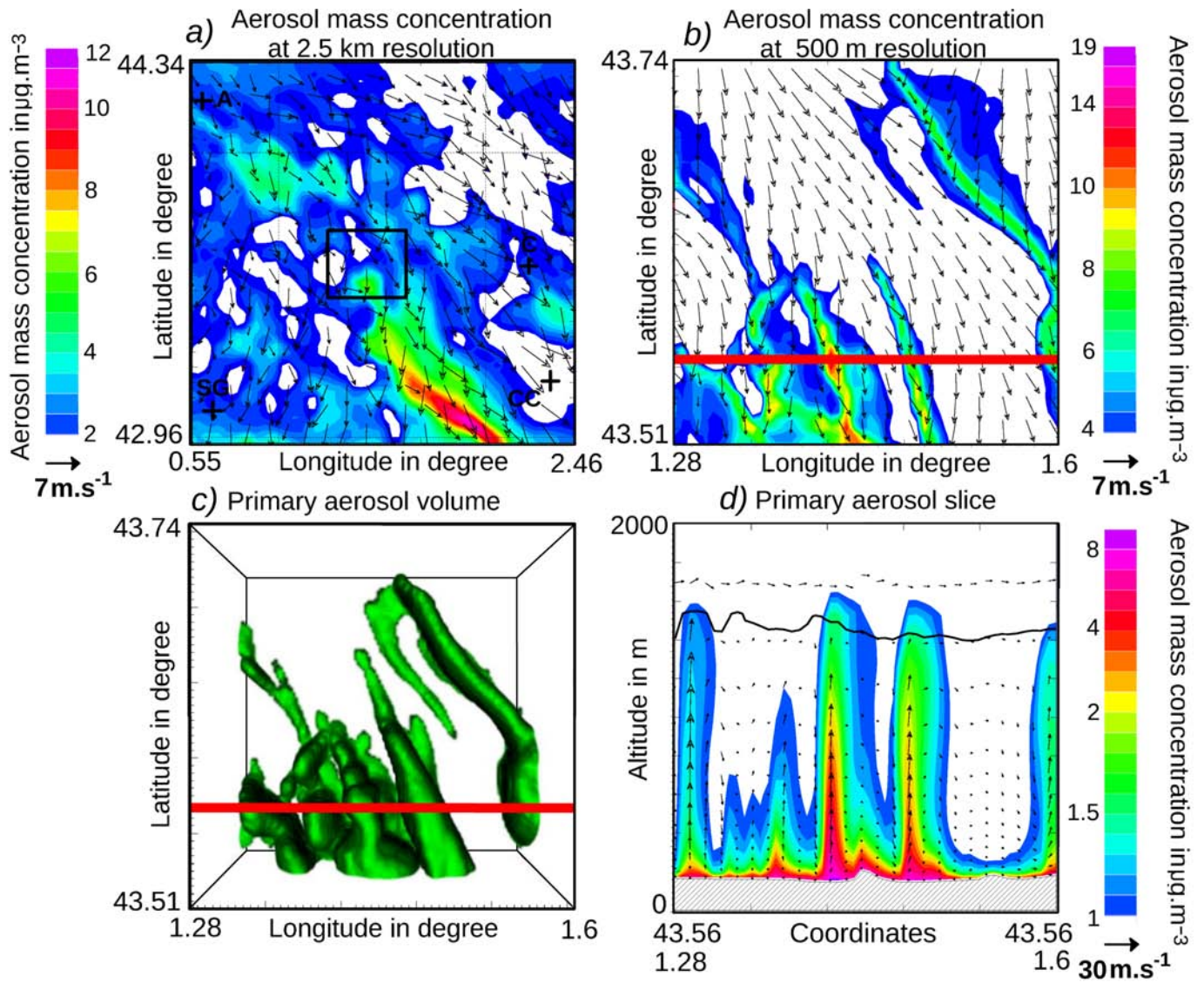


**Fig. 6.** Primary (a) and secondary (b) aerosol mass concentration profiles modeled during the 48 hours of simulation. Boundary layer height observed (black crosses), and modeled (red crosses), are also shown

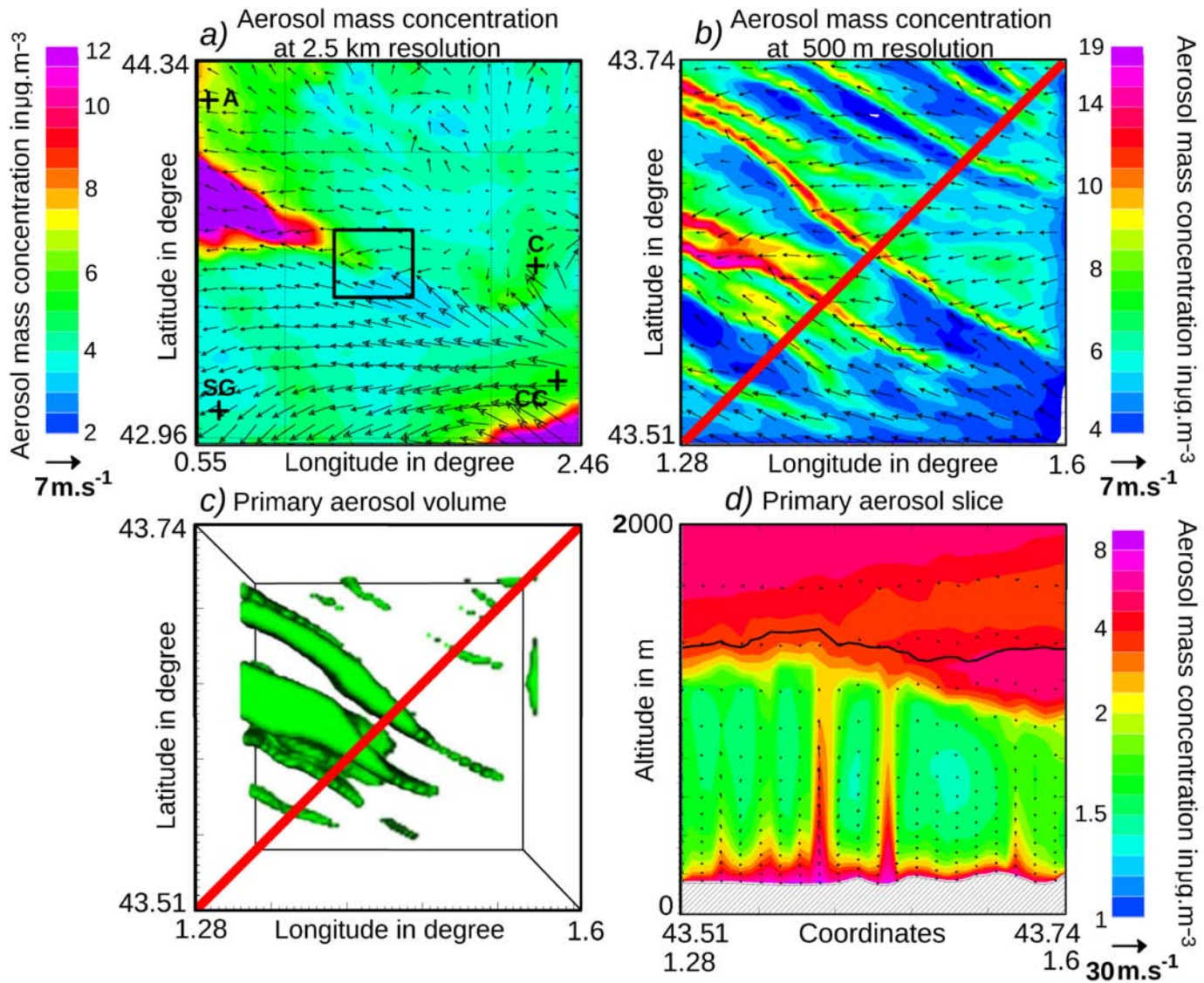




**Fig. 7.** Evolution of -HBL/LMO parameter observed over two sites: Toulouse downtown (TLS) and Saint-Sardos (SC) during the two days of the IOP



**Fig. 8.** *a)* aerosol mass concentration over the 2nd domain. *b)* aerosol mass concentration over the 3rd domain. *c)* volume of primary aerosol mass concentration equals to  $1\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . *d)* primary aerosol concentration on a vertical cross section over the 3rd domain with the boundary layer height overlaid on a black line. All results for 3 July at 12 UTC



**Fig. 9.** a) aerosol mass concentration over the 2nd domain. b) aerosol mass concentration over the 3rd domain. c) Volume of primary aerosol mass concentration equals to  $1\text{ }\mu\text{g.m}^{-3}$ . d) primary aerosol concentration on a vertical cross section over the 3rd domain with the boundary layer height overlaid on a black line. All results for 4 July at 12 UTC

## 5.4 Conclusion

Cette partie a tout d'abord introduit les objectifs majeurs de la campagne CAPITOUL ainsi que le protocole expérimental mis en place. La construction du cadastre d'émissions des différentes espèces gazeuses et particulaires a ensuite été décrite. Cette étape nécessaire à la représentation des émissions a été effectuée en considérant une résolution horizontale de 500 mètres pour l'agglomération toulousaine. Présentés sous la forme d'un article scientifique, les résultats de la modélisation durant les deux jours de la POI ont montré l'importance du couplage entre une représentation précise de la ville et des espèces gazeuses et particulaires, pour les aspects de qualité de l'air notamment. De plus, il a été également montré que le choix de la représentation horizontale dans le modèle est primordial, et peut entraîner des changements de représentations des structures dynamiques. En effet, les résultats de la simulation avec une résolution de 500 mètres montrent l'apparition locale de rouleaux convectifs qui concentrent la grande majorité des polluants. Avec une résolution de 2.5 km en revanche, les résultats de la modélisation montrent un panache de vieillissement d'aérosols classique. Cependant, bien que les observations montrent clairement un changement de situation dynamique entre les deux journées d'étude, il est très difficile concrètement d'observer et de situer de façon précise ces phénomènes de rouleaux.

Cette partie a ainsi mis en évidence le rôle des phénomènes météorologiques de fines échelles sur la distribution des particules. Il serait dès lors intéressant d'étudier les effets de rétroaction de ces particules sur la dynamique, notamment à travers l'impact radiatif des aérosols. Le dernier chapitre de cette thèse est donc consacré à cette étude en essayant, dans le même cadre d'étude de la campagne CAPITOUL, de quantifier l'impact des aérosols sur la dynamique atmosphérique urbaine en prenant en compte leur rôle dans le bilan radiatif de l'atmosphère.

# Chapitre 6

## Impact de l'aérosol sur la dynamique urbaine et rétroactions sur le transfert radiatif

### Sommaire

---

<b>6.1</b>	<b>Introduction et objectifs</b>	<b>117</b>
<b>6.2</b>	<b>Impacts de la représentation de la ville sur la dynamique</b>	<b>117</b>
6.2.1	Méthodologie	118
6.2.2	Résultats	118
<b>6.3</b>	<b>Impacts radiatifs des aérosols sur la dynamique urbaine</b>	<b>123</b>
6.3.1	Propriétés optiques des aérosols durant CAPITOUL	123
6.3.2	Impact des aérosols sur la dynamique urbaine	130
<b>6.4</b>	<b>Bilan quantitatif des différents impacts et conclusions</b>	<b>136</b>
6.4.1	Bilan quantitatif et comparaison des impacts	136
6.4.2	Conclusions	137

---

### 6.1 Introduction et objectifs

### 6.2 Impacts de la représentation de la ville sur la dynamique

Comme décrit dans le premier chapitre de cette thèse, les effets urbains se traduisent notamment sur la dynamique représentant la couche limite urbaine par la présence d'un îlot de chaleur urbain dont l'amplitude est maximale à la fin de la nuit. La modélisation durant la POI des 3 et 4 Juillet 2004 de la campagne CAPITOUL va nous permettre d'évaluer cet impact de

la représentation de la ville sur la dynamique, afin d'estimer et de quantifier les changements de température uniquement dus à la surface urbaine.

### 6.2.1 Méthodologie

Afin d'estimer les impacts de la surface urbaine sur la dynamique de la couche limite, nous avons comparé deux résultats de simulations de la campagne CAPITOU. Les premiers résultats correspondent à la simulation de référence ( $SIM_{ref}$ ). Les seconds correspondent à une simulation pour laquelle nous avons remplacé les propriétés de la surface urbaine par les propriétés d'une prairie ( $SIM_{prairie}$ ). Les différents paramètres sont présentés en table 6.1.

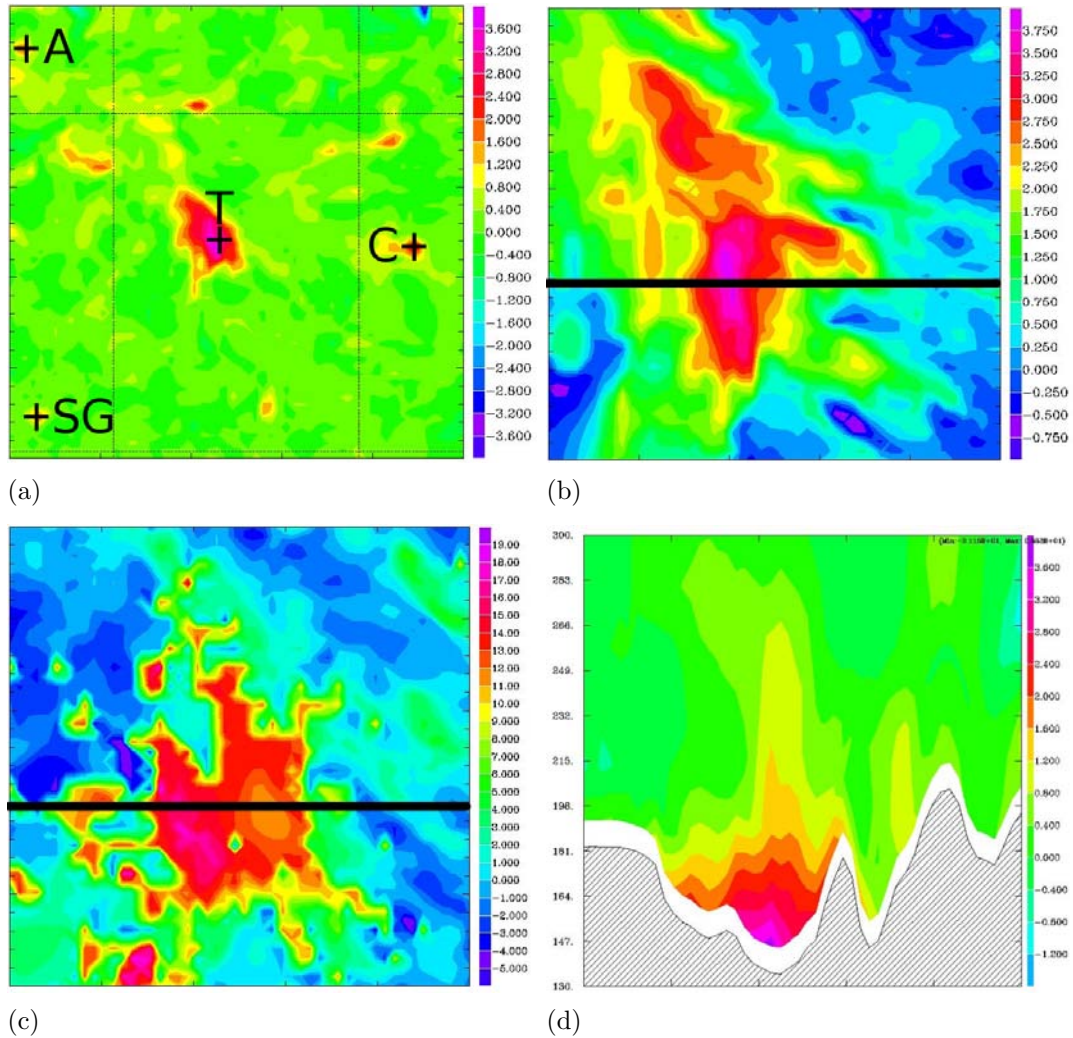
Paramètre	Valeur ville	Valeur prairie
Fraction urbaine	0.9	0.0
Fraction nature	0.1	1.0
Emissivité	0.85-0.94	0.97
Albédo	0.08-0.25	0.27

**Fig. 6.1:** Valeurs des paramètres de surface dans les deux simulations.

### 6.2.2 Résultats

Afin d'estimer les impacts propres à la surface urbaine sur la dynamique, nous avons comparé les résultats issus des deux simulations ( $SIM_{ref}$  et  $SIM_{prairie}$ ). Nous avons tout d'abord comparé les deux simulations à deux instants de la POI, à la fin de la nuit du 3 au 4 juillet à 3 heures UTC, et au milieu de la journée du 4, à 13 heures UTC. La figure 6.2 présente quatre champs instantanés à 3 heures UTC (5 heures locales). Ces champs représentent des différences entre les deux simulations ( $SIM_{ref} - SIM_{prairie}$ ). La figure 6.2(a) présente la différence de température à 2 mètres sur le second domaine. La figure 6.2(b) présente la différence de température à 2 mètres sur le troisième domaine. La figure 6.2(c) présente la différence de flux tellurique (« long-wave » avec  $> 3.33\mu m$ ) montant à 2 mètres sur le troisième domaine. Enfin, la figure 6.2(d) présente la différence de température potentielle sur une coupe verticale sur le troisième domaine (présenté en trait noir sur la figure 6.2(b) et 6.2(c)).

Les sous-figures de la figure 6.2 nous montrent l'influence de la surface urbaine sur la température nocturne. En effet, les différences de température au sol sur les second et troisième domaines (a et b) vont jusqu'à 3.5 °C au centre-ville de Toulouse. On peut également remarquer sur la figure 6.2(a) que l'impact de la surface urbaine pour les autres villes régionales est



**Fig. 6.2:** (a) Différences de température à 2 mètres sur le deuxième domaine entre les deux simulations ; Les principales villes régionales sont notées : T (Toulouse, C (Castres), SG (Saint-Gaudens) et A (Agen). (b) Différences de température à 2 mètres sur le troisième domaine entre les deux simulations. (c) Différences de flux tellurique montant à la surface sur le troisième domaine entre les deux simulations. (d) Coupe verticale entre les altitudes de 130 et 300 m des différences de températures représentée par le trait noir sur les sous-figures (b) et (c). Les champs sont représentés à 3 heures UTC le 4 juillet.

également important, avec une différence de température de  $2.5\text{ }^{\circ}\text{C}$  à Castres par exemple. Ceci correspond à l'îlot de chaleur urbain qui n'est pas modélisé dans la simulation  $SIM_{prairie}$ , alors que lorsque les paramètres de surface urbaine sont pris en compte ( $SIM_{ref}$ ), le modèle simule la présence de l'îlot de chaleur urbain.

La figure 6.2(c) nous montre que cette différence de température est principalement due au fait qu'avec des propriétés de surface urbaine, le flux radiatif tellurique (« longwave ») émis par la surface urbaine est supérieur à celui émis par la surface « verte » d'une valeur pouvant approcher  $20 \text{ W.m}^{-2}$ . En effet, les éléments qui composent la surface urbaine tels que les routes, toits et murs, emmagasinent plus de chaleur durant la journée qu'une surface rurale de type prairie, et réémettent cette chaleur sous forme de flux radiatif dans le « longwave » durant la nuit. Enfin, la figure 6.2(d) nous montre la représentation verticale des différences de température. Les différences supérieures à  $2 \text{ °C}$  sont présentes jusqu'à une hauteur d'environ 30 mètres au-dessus des toits de la ville. L'amplitude des différences diminue ensuite jusqu'à une altitude d'environ 150 mètres au-dessus du sol, où elle s'annule. Cette altitude correspond à la hauteur de la couche limite urbaine nocturne.

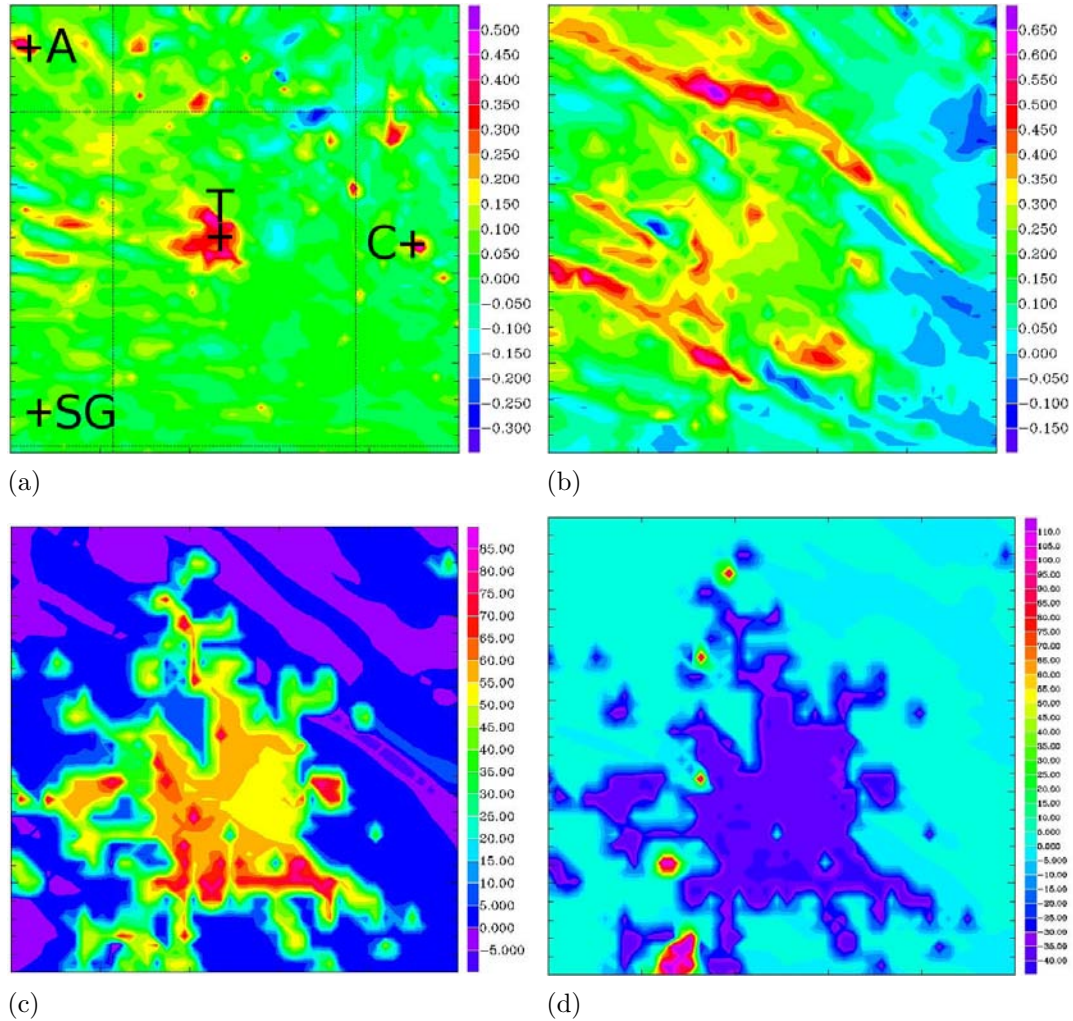
La figure 6.3 présente quatre champs instantanés à 13 heures UTC (15 heures locales). Ces champs représentent des différences entre les deux simulations ( $SIM_{ref} - SIM_{prairie}$ ).

La figure 6.3(a) présente la différence de température potentielle au niveau du sol sur le second domaine. La figure 6.3(b) présente la différence de température potentielle au niveau du sol sur le troisième domaine. La figure 6.3(c) présente la différence de flux « longwave » montant au niveau du sol sur le troisième domaine. La figure 6.3(d) présente la différence de flux « shortwave » montant au niveau du sol sur le troisième domaine.

Les sous-figures de la figure 6.3 mettent en évidence que l'impact de la surface urbaine sur la température durant la journée est nettement moins important que durant la nuit. En effet, les figures 6.3(a) et 6.3(b) indiquent que la différence de température à 2 mètres n'excède pas  $0.5 \text{ °C}$  au centre-ville de Toulouse, contre  $3.5 \text{ °C}$  la nuit. On remarque également sur la figure 6.3(a) que l'impact de la surface sur les autres villes régionales conduit aux mêmes valeurs de différence de température de  $0.5 \text{ °C}$  sur Agen et Castres que sur Toulouse, mais avec un effet moins étendu spatialement. Cette différence de température est également due au fait que la surface urbaine absorbe plus de chaleur que la surface rurale. Cependant les figures 6.3(d) et 6.3(c) nous montrent tout d'abord que le flux radiatif émis par la surface urbaine en « longwave » est plus important que le même flux émis par la surface « verte », de l'ordre de  $50 \text{ W.m}^{-2}$  en plus, contribuant ainsi au réchauffement de la couche limite urbaine. En revanche, la surface urbaine réfléchit moins de flux « shortwave » que la surface « verte », jusqu'à une différence de  $-40 \text{ W.m}^{-2}$ , ce qui contribue au refroidissement de la couche limite urbaine. En effet, les propriétés de la surface rurale sont telles qu'elle réfléchit davantage le rayonnement solaire (shortwave) incident que la surface urbaine. Ainsi, l'opposition de ces deux contributions positives et négatives de la surface sur les flux, respectivement « shortwave » et « longwave », entraîne un réchauffement moindre que la nuit où seule la contribution du flux tellurique intervient.

Finalement, la figure 6.4 nous montre l'évolution temporelle des différentes températures à

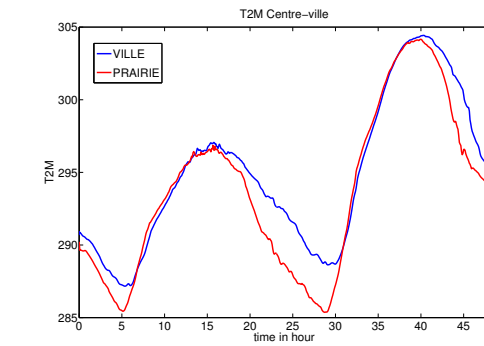




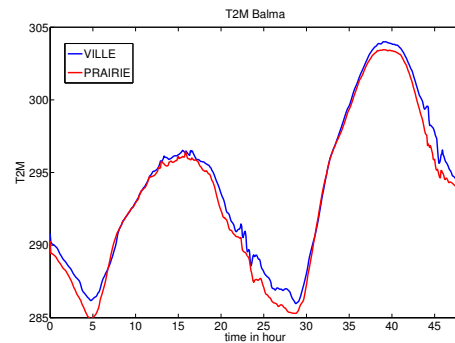
**Fig. 6.3:** (a) Différences de température à 2 mètres sur le deuxième domaine entre les deux simulations ; Les principales villes régionales sont notées : T (Toulouse), C (Castres), SG (Saint-Gaudens) et A (Agen). (b) Différences de température à 2 mètres sur le troisième domaine entre les deux simulations. (d) Différences de flux tellurique montant à la surface sur le troisième domaine entre les deux simulations. (c) Différences de flux solaire montant à la surface sur le troisième domaine entre les deux simulations. Les champs sont représentés à 13 heures UTC le 4 juillet.

2 mètres sur deux sites, au centre-ville et en proche banlieue à Balma, entre les deux simulations.

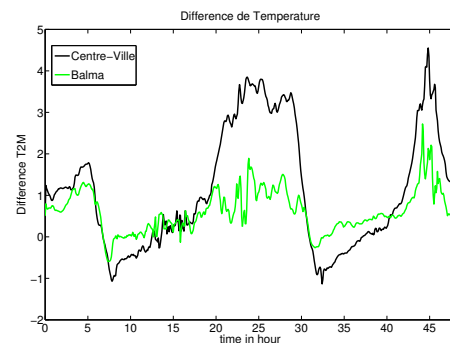
La figure 6.4(a) nous présente l'évolution de la température à 2 mètres correspondant au site d'observation du centre-ville pour les deux simulations, en bleu pour  $SIM_{ref}$  et en rouge pour  $SIM_{prairie}$ , durant les deux journées de la POI. On remarque que durant les journées du 3 et du



(a)



(b)



(c)

**Fig. 6.4:** Température à 2 mètres des deux simulations au centre-ville (a) et à Balma (b). (c) Différences temporelles de température entre les deux simulations sur les deux sites.

4 juillet, les différences entre les simulations sont minimales (moyenne de  $0.3\text{ }^{\circ}\text{C}$ ). On peut noter cependant que les différences de température entre les deux simulations s'accroissent à partir de 18 heures UTC (20 heures locales) jusqu'à un maximum de  $4\text{ }^{\circ}\text{C}$  à 5 heures UTC (7 heures locales) le 4 juillet.

La figure 6.4(b) nous présente l'évolution de la température à 2 mètres correspondant à un site en proche banlieue (Balma) pour les deux simulations, en bleu pour  $SIM_{ref}$  et en rouge pour  $SIM_{prairie}$ , durant les deux journées de la POI.

De nouveau, on remarque que durant les journées du 3 et du 4 juillet, les différences entre les simulations sont minimales (moyenne de 0.3 °C). Cependant, dans ce cas, pour un site de proche campagne, on voit que l'îlot de chaleur urbain est beaucoup moins prononcé, et malgré une tendance à l'augmentation des différences durant la nuit similaire au site de centre-ville, les différences n'excèdent pas 1 degré.

La figure 6.4(c) résume l'ensemble des différences relevées entre les deux simulations pour les deux sites, en vert pour Balma et en noir pour le centre-ville. On retrouve notamment les évolutions temporelles des différences de température à 2 mètres, avec une augmentation prononcée à partir de 20 heures UTC pour atteindre un maximum à 5 heures UTC.

## 6.3 Impacts radiatifs des aérosols sur la dynamique urbaine

Afin d'estimer les impacts radiatifs des aérosols sur une ville moyennement polluée comme Toulouse, nous avons appliqué le module de calcul en ligne des propriétés optiques des aérosols décrit au chapitre 3 de cette thèse sur le cas d'étude de la POI des 3 et 4 juillet 2004 de la campagne CAPITOUL. Mais avant de s'intéresser aux impacts radiatifs des aérosols, il convient dans un premier temps d'étudier les évolutions des propriétés optiques des aérosols et de valider l'utilisation du module précédemment décrit dans un cas en trois dimensions.

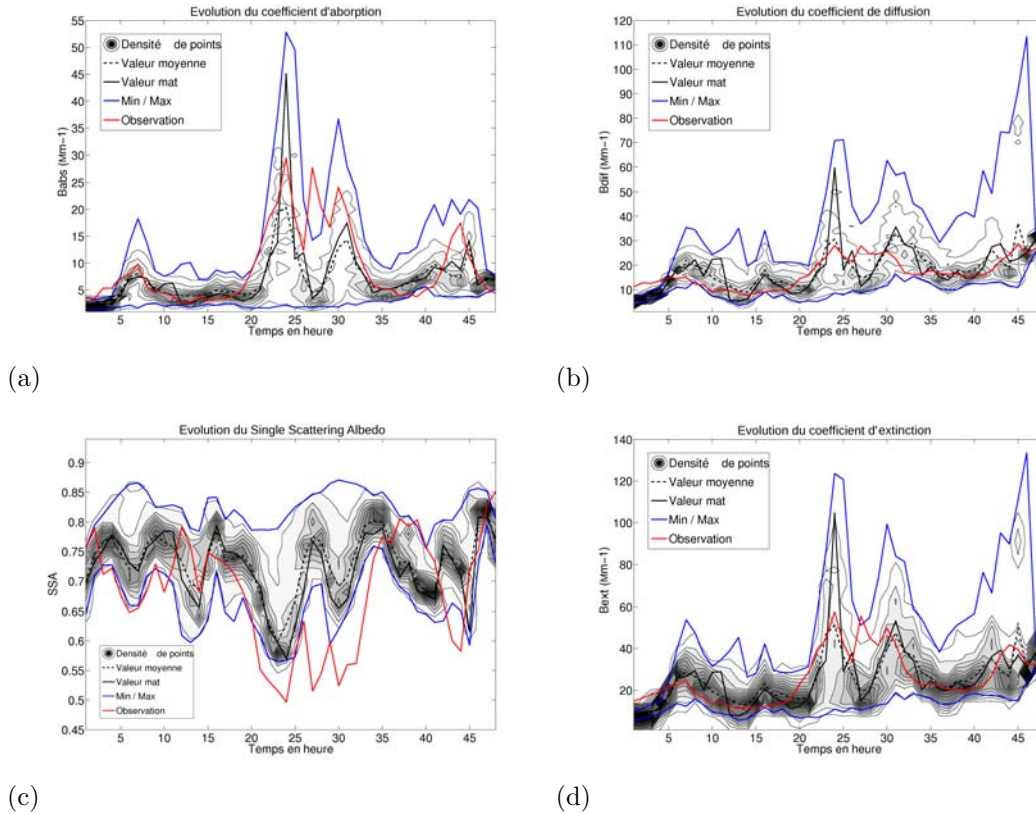
### 6.3.1 Propriétés optiques des aérosols durant CAPITOUL

#### Evaluation de la restitution des propriétés optiques dans une simulation 3D

Le premier jeu de données de mesures optiques disponible pour effectuer cette comparaison correspond aux mesures obtenues sur le site instrumenté du centre-ville (sur le toit de la Poste). Ces mesures ont été effectuées par un aethalomètre mesurant le coefficient d'absorption du rayonnement par les particules, et par un néphélomètre mesurant le coefficient de diffusion du rayonnement. Les résultats de ces données sont décrits par *Gomes et al.* (2008). De ces coefficients de diffusion et d'absorption peuvent être déduits les paramètres optiques généralement utilisés par les modèles de rayonnement : l'albédo de diffusion simple ou SSA et le coefficient d'extinction ou  $b_{ext}$ .

Les figures 6.5(a), 6.5(b), 6.5(c) et 6.5(d) présentent respectivement les évolutions des coefficients d'absorption, de diffusion, de l'albédo de diffusion simple et du coefficient d'extinction, mesurés et modélisés durant les deux jours simulés. Les observations sont reportées en ligne rouge. Les résultats de la simulation correspondant au point de mesure sont représentés en trait

plein noir. Afin d'évaluer la variabilité spatiale de ces coefficients, il a également été reporté en contours grisés la fonction de densité des valeurs simulées correspondant à un ensemble de points compris dans une zone de 8 km sur 8 km et centrée sur le point de mesure. La résolution du domaine le plus fin étant de 500 m, la zone contient un ensemble de 256 points. Cette zone correspond à l'ensemble de la ville de Toulouse. Notons que le premier contour extérieur reporté correspond à 95 % des points contenus dans la zone. Chaque contour suivant correspondant à 5% de points en moins. La moyenne de l'ensemble des points contenus dans cette zone est reportée en ligne pointillée noire, et les minima et maxima en ligne continue bleue.



**Fig. 6.5:** Evolution temporelle du coefficient d'absorption (a), du coefficient de diffusion (b), de l'albédo de diffusion simple (c), du coefficient d'extinction (d), sur Toulouse. La ligne rouge correspond aux observations. La ligne pleine noire correspond aux résultats de la simulation effectuée au point de mesure. Les contours grisés correspondent à la densité des valeurs simulées pour un ensemble de points contenus dans une zone de 8 km sur 8 km centrée sur le point de mesure. La ligne pointillée noire correspond à la valeur moyenne simulée de cet ensemble de points. Les lignes bleues correspondent aux valeurs minimum et maximum simulées de cet ensemble.

Sur la figure 6.5(a) les valeurs observées en rouge et modélisées en trait plein noir sont en bonne adéquation durant les 48 heures. On remarque notamment que les principales tendances

sont correctement modélisées, à savoir des valeurs relativement faibles durant la première journée jusqu'à 18 heures (à l'exception d'un pic vers 6 heures), des valeurs beaucoup plus élevées durant la nuit du 3 au 4 juillet, puis des valeurs plus faibles durant la journée du 4 juillet. Les ordres de grandeur sont également les mêmes entre la simulation et les observations, avec une valeur autour de  $5Mm^{-1}$  durant la journée du 3 juillet, puis des valeurs observées allant jusqu'à  $30Mm^{-1}$  durant la nuit, et enfin une valeur moyenne autour de  $10Mm^{-1}$  durant la journée du 4 juillet. Les principales différences se situent durant la nuit du 3 au 4 juillet. Tout d'abord les observations montrent trois pics à 22 heures, 2 heures et 6 heures. Les résultats de la simulation ne reproduisent pas le pic intermédiaire. Ceci peut s'expliquer de la même façon que pour le pic de carbone suie observé et non simulé décrit dans le chapitre 4. En effet, les valeurs de la mesure de la concentration de carbone suie découlent directement des mesures de l'absorption par l'aethalomètre. De plus, la valeur du premier pic observé est de  $30Mm^{-1}$  contre  $45Mm^{-1}$  pour la simulation. Cependant, la variabilité spatiale du coefficient d'absorption est très importante à ce moment de la nuit. En effet les contours grisés correspondant à la zone de 8 km sur 8 km centrée sur le point de mesure nous montrent que les valeurs du coefficient d'absorption vont de  $2Mm^{-1}$  à  $53Mm^{-1}$  avec une moyenne de  $20Mm^{-1}$ . Cette forte variabilité spatiale peut s'expliquer par la forte dépendance du coefficient d'absorption aux émissions, lesquelles sont particulièrement localisées, et ce d'autant plus que le vent est très faible durant la nuit. Ainsi, on voit que pour deux points situés à quelques kilomètres de distance et se trouvant dans la ville de Toulouse, les valeurs maximum de coefficient d'absorption peuvent être plus de 10 fois supérieures aux valeurs minimum. Finalement, le caractère absorbant des particules est relativement bien représenté par la simulation Méso-NH couplée au module de calcul radiatif.

Sur la figure 6.5(b) les valeurs du coefficient de diffusion observées en rouge et modélisées en trait plein noir sont également en bonne adéquation durant les 48 heures. On peut remarquer que les valeurs observées présentent moins de variabilité temporelle que les valeurs de coefficient d'absorption mesuré. Le caractère diffusant des particules étant dominé par les espèces secondaires qui se forment principalement dans le panache, à distance des émissions, l'évolution de celui-ci est moins directement liée à l'intensité des émissions. Les valeurs observées et modélisées oscillent autour d'une valeur moyenne de  $20Mm^{-1}$ . Globalement, les tendances et ordres de grandeurs sont correctement modélisés, à la fois au point d'émission et sur l'ensemble de la zone dont la moyenne est représentée en pointillés noirs. On remarque également que la variabilité spatiale des valeurs modélisées sur la zone de 8 km sur 8 km est très importante, notamment en fin de seconde journée durant laquelle quelques points compris dans la zone atteignent la valeur de  $110Mm^{-1}$ . Ceci correspond à quelques points isolés car la moyenne n'excède pas  $40Mm^{-1}$ .

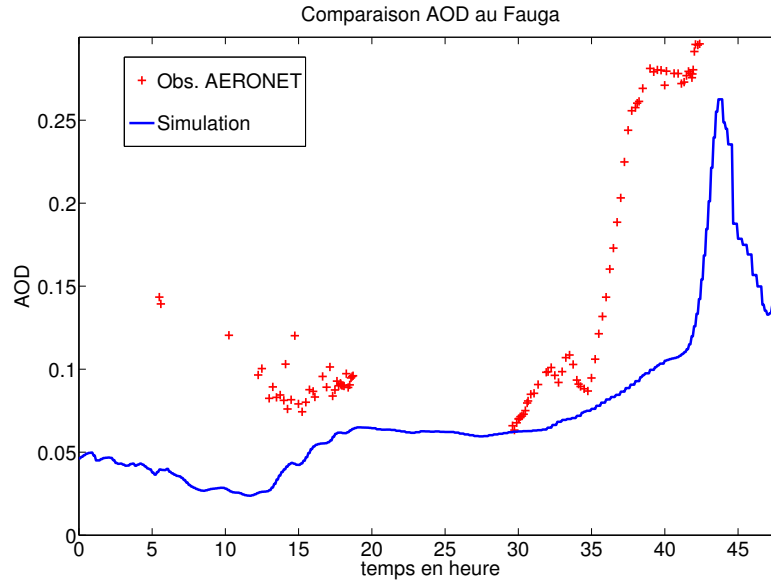
Les caractères absorbant et diffusant des particules d'aérosol étant relativement correctement représentés par la simulation. Les paramètres optiques que sont l'albédo de diffusion simple et le coefficient d'extinction découlant des coefficients d'absorption et de diffusion peuvent ensuite être comparés. La figure 6.5(c) montre l'évolution du SSA observé en rouge et modélisé en noir. On

remarque que sur les 48 heures de simulation, la modélisation représente relativement correctement l'évolution de ce paramètre. Cependant on peut noter une quasi-constante sur-estimation du SSA par la modélisation durant les heures de nuit. En particulier, alors que les observations montrent une valeur minimum de SSA de 0.5 durant la nuit du 3 au 4 juillet, les résultats issus de la simulation n'atteignent pas de si faibles valeurs. On peut penser que cette différence est à la fois due à la surestimation locale du caractère diffusant des particules par la simulation durant la nuit, et également à la sous-estimation locale du caractère absorbant par la simulation durant la nuit. La combinaison de ces deux erreurs semble conduire à une erreur résultante sur le SSA plus importante. Cependant pour l'étude des impacts radiatifs, ces erreurs durant la nuit ont moins d'impact que de mêmes erreurs durant le jour (comme c'est le cas dans cette simulation), car la paramétrisation des interactions entre les aérosols et le calcul des flux radiatifs n'est valide qu'avec le rayonnement solaire (« shortwave »). Finalement, la tendance générale semble être relativement bien représentée.

La figure 6.5(d) nous montre l'évolution du coefficient d'extinction observé en rouge et modélisé en noir. On remarque que sur les 48 heures de simulation, la modélisation représente correctement l'évolution de ce paramètre. Par définition, le coefficient d'extinction résultant de la somme des coefficients d'absorption et de diffusion, les erreurs notables que l'on peut voir entre les observations et les résultats de simulation sont la résultante des erreurs cumulées sur les coefficients d'absorption et de diffusion. Ainsi, on retrouve un pic non simulé à 2 heures du matin le 4 juillet. De plus, on peut également observer la forte variabilité spatiale non seulement pendant la nuit du 3 au 4 juillet résultant de la variabilité modélisée sur le coefficient d'absorption, mais également pendant l'après-midi du 4 juillet résultant de la forte variabilité modélisée sur le coefficient de diffusion.

En conclusion de cette comparaison des propriétés optiques recueillies sur le site du centre-ville de Toulouse avec les résultats de la simulation, tant les propriétés optiques que la représentation des aérosols apparaissent correctement modélisés. En effet, la simulation des propriétés optiques résultant de l'application du module permettant de modéliser l'évolution des particules d'aérosols est en adéquation avec les observations à la fois temporellement et en amplitude. De plus, on peut remarquer que la forte variabilité spatiale de ces paramètres, principalement due à la forte variabilité spatiale des concentrations de chaque type d'aérosol, est correctement reproduite par la simulation.

Un autre test d'évaluation du module a pu être réalisé en comparant l'évolution de l'épaisseur optique des aérosols observée par un photomètre sur le site du Fauga (à 30 km au sud-est de Toulouse) appartenant au réseau d'observations AERONET, avec les résultats de la simulation. La figure 6.6 présente ces résultats. Les croix rouges correspondent aux observations et le trait plein bleu aux valeurs simulées.



**Fig. 6.6:** Evolution temporelle de l'épaisseur optique des aérosols mesurée par un photomètre sur le site du Fauga, et modélisée pour ce même point.

Sur les deux jours de simulation, la comparaison entre les observations et la simulation nous montre une sous-estimation constante du modèle. Bien que les ordres de grandeurs semblent être à peu près bien représentés, on remarque que les valeurs simulées sont constamment inférieures aux valeurs observées. Cependant, la tendance principale de l'AOD pour les deux journées est relativement correctement représentée, c'est-à-dire que les valeurs fluctuent autour de 0.1 durant la première journée et la nuit pour les observations (0.07 pour la simulation), alors que pour le 4 juillet les valeurs atteignent 0.3 pour les observations (0.25 pour la simulation). On remarque notamment une augmentation de l'épaisseur optique observée le 4 juillet vers 12 heures alors que cette augmentation n'a lieu que 6 heures plus tard dans la simulation. Il est probable que ce décalage temporel résulte de la même erreur sur la dynamique mise en évidence dans la comparaison des profils de vent dans le chapitre précédent.

Les raisons de ces erreurs plus importantes que sur le site du centre-ville peuvent être multiples. Tout d'abord, le point de grille correspondant au site du Fauga se trouve dans le second domaine qui a une résolution horizontale de 2.5 km. Or la variabilité spatiale qui a été mise en avant dans la comparaison des paramètres optiques sur le site du centre-ville de Toulouse (avec une résolution de 500 m) pourrait ici jouer un rôle important. Ainsi, un panache localement fort observé par le photomètre pourrait se trouver moyenné sur le point de grille de 2.5 sur 2.5 km. De plus, l'épaisseur optique résulte de l'intégration du coefficient d'extinction sur toute la colonne verticale de l'atmosphère. Il est donc possible que l'on sous-estime les concentrations de particules sur la verticale à cause d'une sous-estimation des émissions dans cette zone. Enfin, il est également probable que le transport à l'échelle de la région toulousaine ne soit pas précisément

bien représenté. On peut notamment penser que le décalage temporel entre les pics d'épaisseur optique observés et modélisés résulte du décalage de l'arrivée d'un panache de particules sur le site du Fauga entre observations et modélisation, qui serait dû à une mauvaise représentation du transport régional.

### Illustration de la variabilité spatiale des propriétés optiques

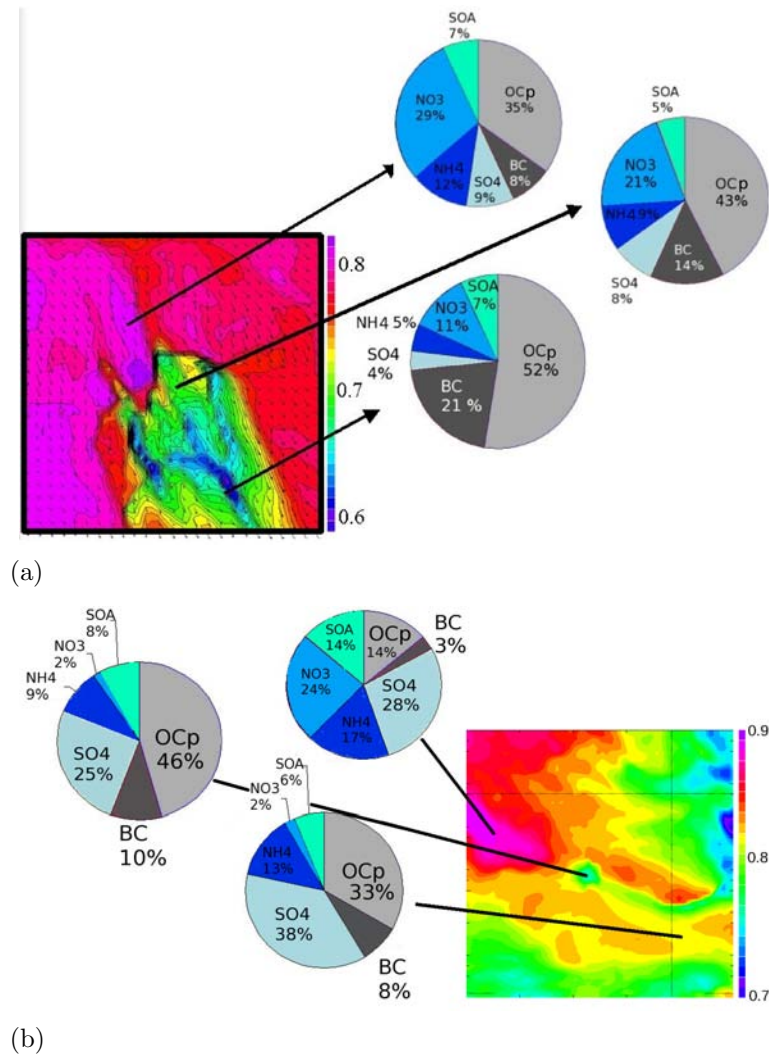
Afin d'illustrer la variabilité spatiale des propriétés optiques observées dans le paragraphe précédent, la figure 6.7(a) nous montre les valeurs de SSA modélisées le 4 juillet au matin (à 5 heures), sur le troisième domaine qui englobe l'agglomération toulousaine, et la figure 6.7(b) nous présente le même champ mais à 12 heures le 4 juillet sur le second domaine.

Sur la figure 6.7(a), on remarque tout d'abord que les valeurs les plus basses de SSA descendent jusqu'à 0.6 et se situent à quelques kilomètres des sources d'émissions dans le panache. Le reste des valeurs pour le centre-ville se situe aux alentours de 0.7, alors qu'en dehors du centre-ville les valeurs se situent aux alentours de 0.8. La forte variabilité peut être notamment mise en évidence en pointant des cas extrêmes tels qu'au nord du centre-ville de Toulouse, où les valeurs de SSA passent de 0.7 à 0.8 à seulement quelques kilomètres de distance (au nord et à l'ouest de l'extrême nord du centre-ville).

De plus, afin de vérifier la forte dépendance entre composition d'aérosol et valeur de SSA, les compositions chimiques des particules pour trois points représentatifs présentant des valeurs de SSA respectivement de 0.6, 0.7 et 0.8 sont montrées sous forme de camemberts sur la figure 6.7. On remarque que pour le point présentant une valeur de SSA de 0.6, traduisant ainsi un fort caractère absorbant, l'aérosol est composé à 73 % de particules primaires, dont notamment 21 % de carbone suie (BC), dont le caractère absorbant est bien connu. Pour le point présentant une valeur de SSA de 0.7, les particules primaires ne représentent plus que 57 % du total de la composition chimique. Finalement, pour le point en amont du panache présentant une valeur de SSA de 0.8, les particules sont majoritairement composées d'aérosols secondaires, dont le caractère diffusant est plus important que le caractère absorbant.

La figure présente un cas de panache d'aérosols sur le second domaine, avec des aérosols plus vieux et majoritairement composés d'espèces secondaires. Les valeurs de SSA varient de 0.7 à 0.9. Les valeurs les plus faibles (excepté aux limites du domaine) de SSA se trouvent au centre-ville de Toulouse. Les aérosols présents dans cette zone, proches des sources d'émissions, présentent une composition chimique majoritairement composée d'espèces primaires, avec 46 % de carbone organique primaire et 10 % de carbone suie.





**Fig. 6.7:** Valeur du SSA à la surface (a) à 5 heures du matin le 4 juillet sur le troisième domaine, (b) à 12h le 4 juillet sur le second domaine, et représentation de la composition chimique des aérosols en trois points représentatifs.

Les valeurs de SSA dans le panache de Toulouse atteignent 0.9. Les aérosols dans ce panache sont majoritairement composés d'espèces secondaires, avec 28 % de  $SO_4$ , 17 % de  $NH_4$ , 24 % de  $NO_3$  et 14 % de SOA.

Enfin, en aval de Toulouse, les valeurs de SSA fluctuent autour de 0.8. Les aérosols dans cette zone présentent une composition chimique majoritairement secondaire, mais dans une moindre mesure que dans le panache de Toulouse. En effet, on peut noter que 41 % de la masse totale des aérosols est composée d'espèces primaires (contre 17 % dans le panache), et 59 % d'espèces secondaires (contre 83 % dans le panache).

Cette figure 6.7 a permis de mettre en évidence le lien direct entre la composition chimique de la population d'aérosols et les propriétés optiques, et ce dans deux cas différents : dans un cas nocturne sur le centre-ville de Toulouse, où les espèces primaires dominent, puis un cas de vieillissement d'aérosols dans un panache sur le second domaine, où les espèces secondaires sont très largement majoritaires.

### 6.3.2 Impact des aérosols sur la dynamique urbaine

Afin d'étudier les impacts radiatifs des aérosols, la méthodologie utilisée consiste à comparer deux simulations. La première simulation, appelée  $SIM_{ref}$ , est la simulation de référence, et ne prend pas en compte les aérosols dans le calcul du rayonnement. La seconde simulation appelée  $SIM_{rad}$  calcule les propriétés optiques des aérosols en chaque point de maille et à chaque pas de temps afin de les prendre en compte dans les calculs du transfert radiatif.

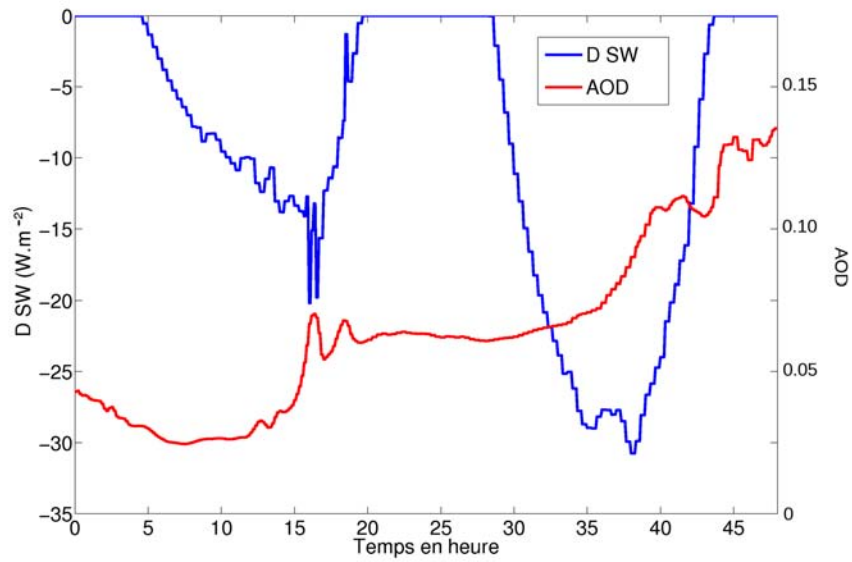
Un des premiers éléments de comparaison entre les deux simulations est la différence de flux radiatifs à la surface. Ainsi, nous avons représenté sur la figure 6.8 la différence de flux solaire (« shortwave ») arrivant à la surface au centre-ville de Toulouse durant les deux journées de simulation, soit  $SW_{rad} - SW_{ref}$ , ainsi que l'épaisseur optique des aérosols (AOD) correspondante. Ces deux paramètres sont des conséquences directes de l'interaction des particules avec le rayonnement.

La figure 6.8 nous montre que les aérosols dans l'atmosphère réduisent le rayonnement solaire atteignant la surface en l'absorbant et en le rétrodiffusant. Ainsi, on note qu'un maximum de  $30 W.m^{-2}$  du rayonnement solaire est réduit par les aérosols. Ces  $30 W.m^{-2}$  représentent moins de 5 % du flux solaire total qui s'élève au maximum à  $800 W.m^{-2}$  durant ces 3 et 4 juillet à Toulouse.

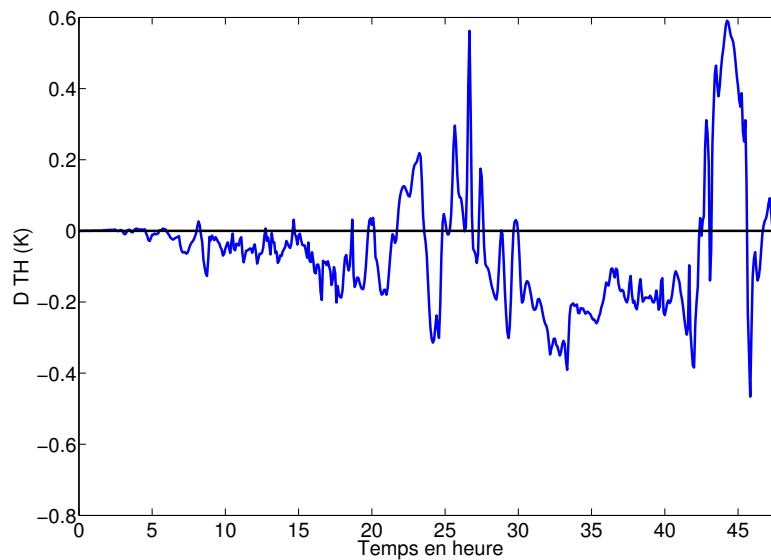
L'évolution de ces paramètres découle directement de l'interaction des aérosols avec le rayonnement. Plus indirectement, ces interactions entraînent des variations sur la dynamique, et notamment sur la température. On peut ainsi se demander quel est l'impact de l'interaction des aérosols avec le rayonnement solaire sur la température.

La figure 6.9 nous présente la différence de température à 2 mètres entre les deux simulations, soit  $T2m_{rad} - T2m_{ref}$ .

Cette figure nous montre tout d'abord que la tendance générale semble indiquer une température à 2 mètres plus basse lorsque les propriétés optiques des aérosols sont prises en compte dans le calcul des flux radiatifs. On remarque notamment que durant les deux journées, correspondant aux deux périodes entre 5 et 20 heures et entre 30 et 42 heures, la différence de température est nettement négative ( $T2m_{rad} < T2m_{ref}$ ). Alors que durant la première journée, la différence

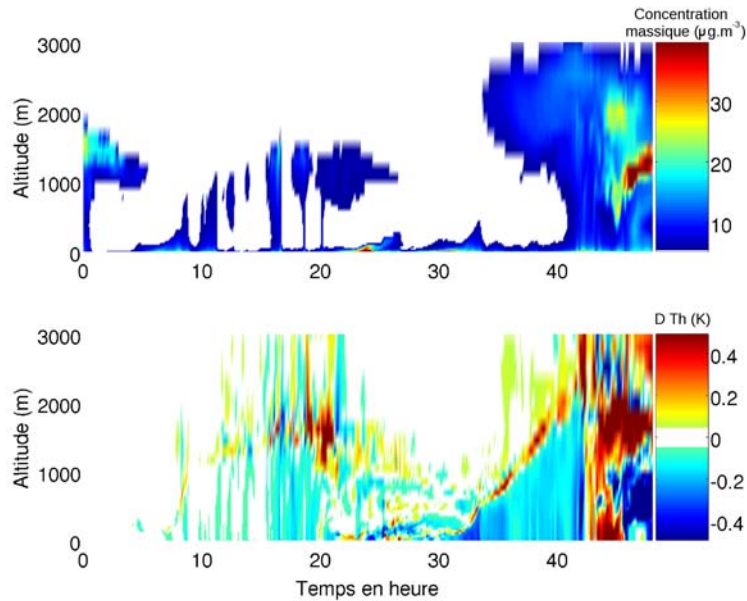


**Fig. 6.8:** Evolution de la différence de flux solaire arrivant à la surface entre les deux simulations (en bleu), et l'épaisseur optique des aérosols (AOD) (en rouge).



**Fig. 6.9:** Evolution de la différence de la température à 2 mètres entre les deux simulations.

de température n'excède pas  $-0.2$  °C avec une moyenne de  $-0.1$  °C, lors de la seconde journée la différence de température atteint cette fois  $-0.3$  °C avec une moyenne de  $-0.2$  °C. La nuit cependant, ainsi qu'à la fin de la deuxième journée, les valeurs semblent davantage bruitées, et le signal montre des différences de températures positives allant jusqu'à  $+0.6$  °C. Afin d'étudier verticalement ces différences, la figure 6.10 nous montre les profils verticaux de concentrations d'aérosols supérieure à  $5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  (en haut) et de différences de température dont la valeur absolue est supérieure à  $0.05$  °C (en bas).



**Fig. 6.10:** Evolution temporelle des profils verticaux de concentrations d'aérosols (haut) et de différences de température (bas).

La figure 6.10 nous permet tout d'abord de retrouver l'évolution temporelle et verticale des concentrations d'aérosols au centre-ville de Toulouse. De plus, on peut observer les fortes concentrations à la surface durant la nuit du 3 au 4 juillet correspondant à une situation dynamique de vent faible et donc d'accumulation d'aérosols. Enfin on peut noter la forte concentration en altitude en fin de deuxième journée correspondant à l'arrivée d'un panache régional d'origine méditerranéenne.

Lorsqu'on s'intéresse aux différences de températures sur la colonne au-dessus du centre-ville, on remarque que l'ensemble de la couche limite est plus froide lorsque les aérosols sont pris en compte dans le transfert radiatif. Cette différence de température est de l'ordre de  $0.1$  °C la première journée et de  $0.2$  la seconde journée. On remarque également qu'au sommet de la couche limite, la température est plus importante dans la simulation  $SIM_{rad}$  que dans  $SIM_{ref}$ . Cette différence positive est due à une différence d'altitude du sommet de l'inversion, et ainsi de

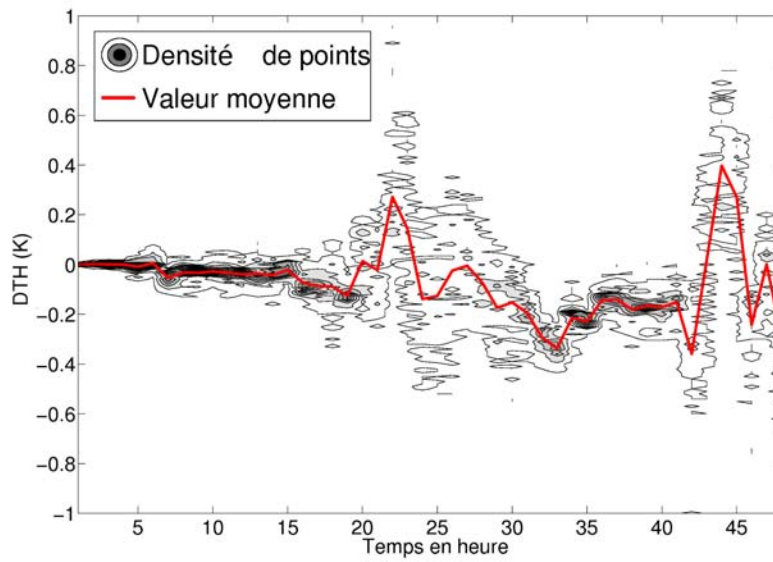
la couche limite. En effet, comme montré par la figure 6.8, une partie du rayonnement incident est diffusée et absorbée. Cette différence de flux entraîne un développement moins important de la convection, et ainsi une épaisseur de couche limite moins importante, jusqu'à 100 mètres la seconde journée.

Enfin, on remarque qu'à la fin de la seconde journée, le signe de la différence de température s'inverse pendant quelques heures. Ce phénomène local est dû à la perturbation de la dynamique résultant de la prise en compte des aérosols dans le calcul des flux radiatifs. Ainsi, les structures dynamiques entre les deux simulations sont spatialement décalées, entraînant des différences plus importantes et opposées à seulement quelques heures d'intervalle (entre 42 et 45 heures, et entre 45 et 48 heures). On retrouve les mêmes tendances sur l'ensemble de la couche limite que sur la température à 2 mètres présentée en figure 6.9.

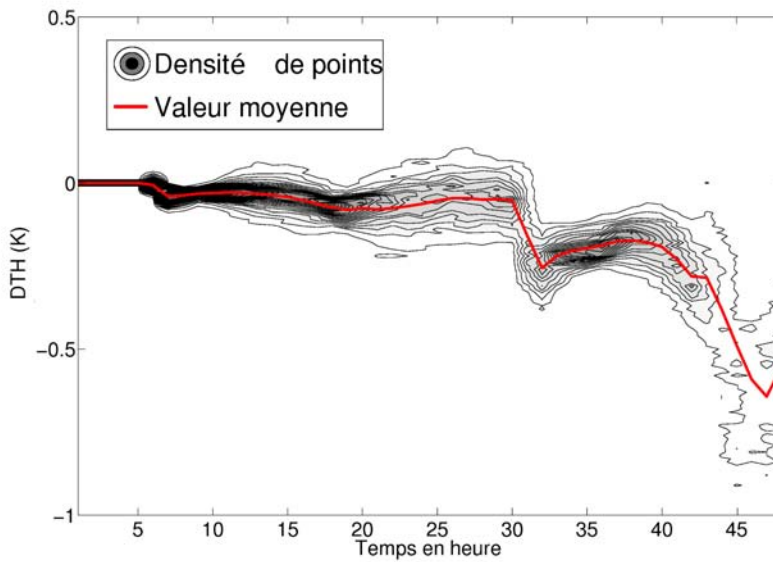
Afin de s'affranchir de ces variabilités spatiales, il est intéressant de comparer les différences de températures moyennées sur plusieurs points de mailles. Dans un premier temps, les figures 6.11(a) et 6.11(b) présentent la différence de température moyennée en rouge, ainsi que la densité de température sur (a) l'ensemble des points de l'agglomération toulousaine, soient 256 points et (b) sur l'ensemble des points du second domaine, c'est-à-dire sur une zone de 125 km par 125 km répartie en 3600 points. Il est à noter que le premier contour englobe, à chaque pas de temps, 99 % des valeurs et que chaque contour suivant inclut 2 % de points en moins.

On remarque tout d'abord sur la figure 6.11(a) que la moyenne en rouge présente la même tendance que la différence au point de mesure du centre-ville présentée sur les figures 6.9 et 6.10. Ainsi, la tendance générale est un refroidissement de la température au sol, mais avec des températures localement plus chaudes aux alentours de 20 heures les deux journées. On peut également noter que la variabilité spatiale est beaucoup plus importante durant les nuits que durant les journées. On remarque sur la figure 6.11(b) que la tendance générale est également au refroidissement, et est plus fortement marquée que sur la zone urbaine. En effet, on voit que la différence de température moyenne au sol atteint 0.6 °C. Contrairement à la zone urbaine, le signal est très peu bruité. Ceci nous permet de déduire la tendance générale de façon plus précise. La figure 6.12 résume les évolutions comparées des températures moyennées au sol sur la ville de Toulouse à une résolution de 500 mètres, et sur l'ensemble de la région toulousaine à une résolution de 2.5 km.

Cette figure nous montre dans un premier temps que durant les 42 premières heures de la simulation, les tendances sont les mêmes pour les différences de température sur les deux zones. On peut cependant observer que la moyenne obtenue sur la zone urbaine est nettement plus bruitée que la moyenne sur l'ensemble des points du second domaine. La différence du nombre de points échantillonnés ainsi que la surface de la zone est certainement la cause de ce bruit. La principale différence entre les deux zones a lieu durant les 6 dernières heures de simulation. Alors que la différence de température est nettement négative sur la zone couvrant le second domaine, elle est davantage bruitée sur la zone urbaine et présente un maximum local nettement

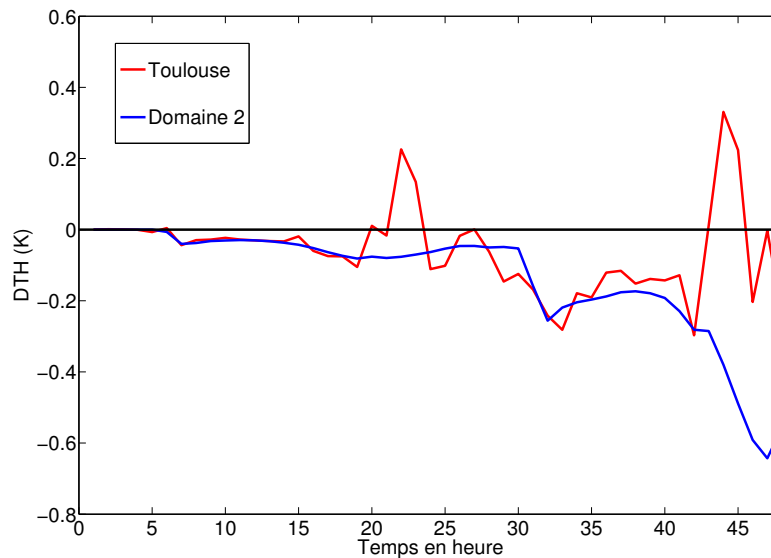


(a)



(b)

**Fig. 6.11:** Evolution des différences de température à 2 mètres sur la zone urbaine de Toulouse et sur la région toulousaine. Les contours représentent la densité de points pour chacune des zones.

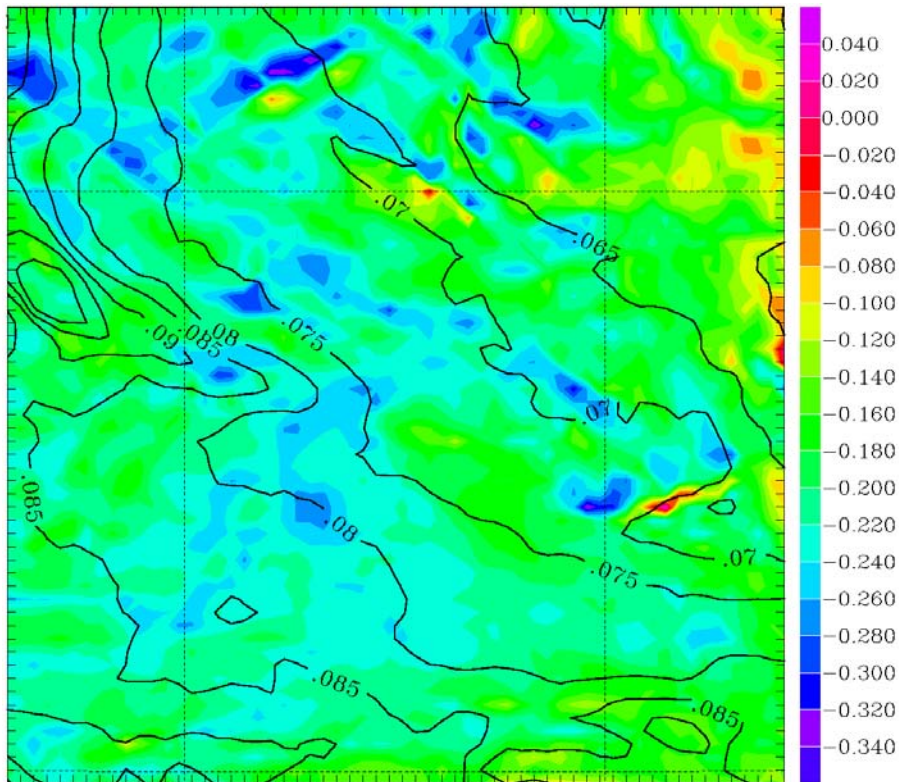


**Fig. 6.12:** Evolution temporelle des moyennes de différence de température sur le domaine urbain et sur la région toulousaine.

positif à 20 heures et atteignant  $0.4\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Ce maximum local équivaut à une différence spatiale de structures dynamiques, certainement due à une divergence de la spatialisation des structures dynamiques entre les deux simulations.

Enfin, la figure 6.13 nous présente les différences de températures à la surface entre les deux simulations sur le second domaine le 4 juillet à 12 heures. Sur cette figure sont superposées les valeurs d'épaisseurs optiques des aérosols en isolignes noires.

On peut remarquer dans un premier temps que comme attendu, la tendance générale est au refroidissement de la couche limite par l'interaction des aérosols avec le rayonnement solaire. La valeur moyenne de différence de température sur ce second domaine est de  $-0.2\text{ }^{\circ}\text{C}$ . On peut également remarquer la présence de maxima positifs atteignant la valeur de  $+0.05\text{ }^{\circ}\text{C}$ , principalement dus à une différence spatiale de structures dynamiques. Enfin, les AOD reportées nous montrent que bien que les valeurs maximales (0.1) se situent dans le panache de Toulouse, à l'ouest du domaine, ce n'est pas dans cette zone que le refroidissement radiatif dû aux aérosols est maximal. Pour aller plus loin, il n'apparaît pas sur cette figure de signal d'un refroidissement localisé, mais plus un refroidissement sur l'ensemble de la couche limite. Il apparaît donc que le refroidissement radiatif dû aux aérosols selon la situation météorologique de la POI intervient sur l'ensemble de la région de simulation, et ne semble pas être plus favorablement présent dans les zones à fortes concentrations d'aérosols. De ce fait, il apparaît difficile d'établir un lien entre la localisation des aérosols et la situation spatiale des impacts radiatifs qui en découlent.



**Fig. 6.13:** Différences de température entre les deux simulations (couleur) et l'épaisseur optique des aérosols (isolignes noires) sur le second domaine le 4 juillet à 12 heures.

## 6.4 Bilan quantitatif des différents impacts et conclusions

### 6.4.1 Bilan quantitatif et comparaison des impacts

Ce chapitre a mis en évidence les impacts radiatifs des aérosols et les a comparé au rôle de la surface urbaine sur la dynamique. Alors que la prise en compte des propriétés optiques des aérosols induit une différence de température sur l'ensemble de la couche limite sur l'ensemble de la zone géographique de l'ordre de  $-0.5$  °C, l'impact de la surface urbaine est nettement plus localisé sur la ville, et présente des différences de températures de l'ordre de  $4$  °C. L'effet de la surface urbaine est localisé spatialement au centre-ville, et conduit à une différence de température maximum de  $1$  °C à seulement  $10$  km du centre-ville. La figure 6.14 met en évidence ces impacts à la fois au centre-ville de Toulouse et à la campagne. Au centre-ville de Toulouse, la figure 6.14(a) montre que l'impact des aérosols sur la température est très inférieur en am-



plitude à celui induit par la surface urbaine. En effet, alors que l'impact de la surface urbaine sur la température induit un réchauffement de température la nuit allant jusqu'à 4 °C, l'impact des aérosols induit un refroidissement maximum de 0.4 °C, c'est-à-dire environ 10 % du réchauffement induit par la surface urbaine. On peut cependant observer sur cette même figure 6.14(a) que durant quelques heures, entre 7 et 12 heures UTC le 3 et le 4 juillet, les effets de la surface urbaine et des aérosols sur la température vont dans le même sens, et s'additionnent. La figure 6.14(b) nous montre l'impact des aérosols et de la surface urbaine sur un site proche de la campagne. Dans ce cas on peut remarquer que l'impact de la surface urbaine est nettement moins prononcé, induisant un réchauffement maximum de l'ordre de 0.5 °C (en négligeant les pics). L'impact des aérosols se traduit de la même façon qu'en centre-ville après un refroidissement de la couche limite de l'ordre de 0.5 °C. Ainsi, les deux effets semblent s'annuler, présentant sensiblement la même amplitude mais des signes opposés.

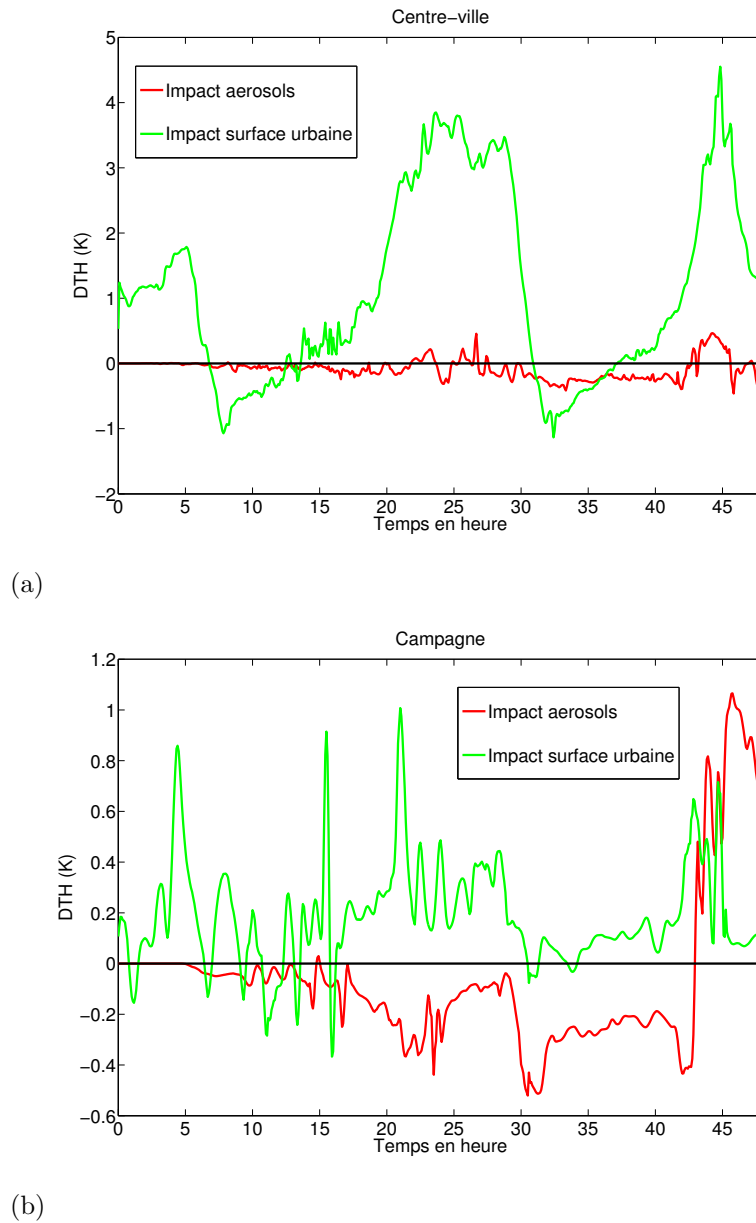
### 6.4.2 Conclusions

Ce chapitre a présenté les résultats de simulations visant à étudier les impacts des aérosols urbains sur la dynamique de la couche limite, ainsi que la comparaison de ces impacts avec les rétroactions issues de la représentation de la ville.

Afin d'étudier les impacts radiatifs des aérosols, il a fallu dans un premier temps évaluer la restitution des paramètres optiques des aérosols par le module développé et décrit en chapitre 4. Ainsi, cette section a permis d'évaluer le module de calcul des propriétés optiques des aérosols dans une simulation en trois dimensions, sur un cas réel durant la campagne CAPITOUL. Les comparaisons des propriétés optiques avec les observations acquises durant la campagne montrent une bonne restitution des paramètres optiques. Il semble que les principales différences avec les observations découlent d'erreurs sur la représentation de la concentration de certains aérosols, notamment de black carbon durant la nuit du 3 au 4 juillet.

L'application de ce module radiatif a ainsi permis de quantifier les impacts radiatifs des aérosols sur la dynamique urbaine. Les résultats des simulations montrent que dans le cas d'une ville moyennement polluée comme Toulouse, et sous un régime de vent moyen, la conséquence directe de la présence des aérosols et de leur interaction avec le rayonnement solaire est une diminution du flux solaire arrivant à la surface de l'ordre de 30  $W.m^{-2}$  au maximum, par diffusion et absorption du rayonnement.

Cette différence de flux solaire atteignant la surface induit des rétroactions sur la dynamique, et notamment sur la température de la couche limite. Ces conséquences indirectes de l'interaction des particules d'aérosol avec le rayonnement solaire montrent un refroidissement de la couche limite de l'ordre de -0.4 °C. En comparaison, il a été également montré dans ce chapitre que dans le même cadre d'étude de la campagne CAPITOUL, l'impact de la surface urbaine sur la dynamique induisait un réchauffement de la couche limite de l'ordre de +4 °C au maximum.



**Fig. 6.14:** Impacts sur la température à 2 mètres de la surface urbaine et des aérosols au centre-ville de Toulouse et en campagne.

durant la nuit.

Ainsi, l'impact des aérosols pourrait sembler quasi-négligeable devant celui de la surface urbaine. Cependant, ce chapitre a montré que l'impact de la surface urbaine sur la température était spatialement localisé sur la ville. L'impact des aérosols est au contraire indifférencié sur

l'ensemble de la région. Ainsi, à quelques dizaines de kilomètres de Toulouse, les effets de la ville et des aérosols sur la température sont du même ordre de grandeur, mais opposés en signes (avec chacun une amplitude de 0.4 °C), et semblent alors s'annuler.



# Chapitre 7

## Conclusions et perspectives

### Sommaire

---

7.1 Conclusions générales . . . . .	141
7.2 Perspectives . . . . .	143

---

### 7.1 Conclusions générales

Les particules d'aérosols sont une composante majeure du système atmosphérique. Leur rôle dans la formation des nuages, leur impact néfaste sur la qualité de l'air et donc de la santé, ou encore les interactions avec le rayonnement font que leurs études conduites à différentes échelles est d'un intérêt grandissant. Les études sur la compréhension des processus physiques régissant l'évolution des particules ainsi que les interactions avec d'autres processus météorologiques sont généralement conduites à fine échelle. Les études concernant la qualité de l'air comme la prévision d'épisodes de pollution intense s'intéressent à l'évolution des aérosols à l'échelle régionale. Enfin, le rôle des aérosols dans le système atmosphérique fait que les exercices de projections climatiques doivent prendre en compte ces particules dans les scénarii d'évolutions du climat. D'origines naturelle et anthropique, la variété des sources de particules dans l'atmosphère explique que ces dernières présentent un large éventail de composition chimique et de tailles.

Or, ces paramètres physico-chimiques sont déterminants en terme d'impacts des aérosols. Aussi, il apparaît capital de pouvoir évaluer correctement leurs propriétés physico-chimiques.

Dans ce cadre, nous proposons d'étudier les interactions des particules atmosphériques d'ori-

gine urbaine avec le rayonnement solaire. Or les études portant sur ce sujet présentent de nombreuses incertitudes quant aux impacts radiatifs des aérosols. C'est pourquoi nous avons tout d'abord cherché à développer un module de calcul des propriétés optiques des aérosols en fonction de la composition chimique détaillée et des propriétés granulométriques des particules. Ce module est basé sur la construction de look-up tables à partir d'une double interpolation polynomiale en fonction du rayon médian de la population de particules. Il accepte en données d'entrée les paramètres descriptifs de la loi lognormale décrivant le spectre granulométrique de la population d'aérosols, ainsi que la composition chimique des particules. Ce module a été évalué dans un premier temps en le comparant aux calculs directs de la théorie de Mie sur laquelle est basée la construction des tables. Dans un second temps, il a été évalué dans un cas réel par comparaison avec des observations des propriétés optiques des aérosols acquises durant la campagne EUCAARI effectuée aux Pays-Bas. Les résultats de ces comparaisons montrent que le module parvient à représenter de façon satisfaisante les propriétés optiques des particules. De plus, le coût numérique de l'utilisation de ce module qui a été estimé est tout à fait abordable par rapport au coût numérique des autres processus simulés. De ce fait, ce module complètement externalisé peut être utilisé dans tous les modèles atmosphériques, aussi bien les modèles climatiques pour estimer l'impact climatique des aérosols, que les modèles de moyenne et fine échelle.

La campagne CAPITOUl a eu lieu entre février 2004 et février 2005 à Toulouse, et visait notamment à étudier les interactions entre la dynamique urbaine et les particules et gaz atmosphériques. Nous avons reproduit la situation météorologique présente durant la POI des 3 et 4 juillet 2004 à l'aide du modèle atmosphérique Méso-NH. La configuration du modèle permet de simuler les évolutions des aérosols durant ces deux journées à différentes échelles, de la résolution horizontale de 10 km couvrant le sud de la France, jusqu'à la résolution de 500 m sur la ville de Toulouse. Pour cela nous avons préalablement construit un cadastre d'émissions de gaz et d'aérosols primaires afin d'initialiser les émissions à la fois de la ville de Toulouse, mais également de l'ensemble des villes et routes de France afin de considérer les interactions de la pollution entre différentes villes. Les comparaisons avec les observations montrent que la simulation parvient à reproduire à la fois la situation dynamique durant ces deux jours, mais également l'évolution des particules d'aérosol. L'analyse des simulations montre également que selon l'échelle utilisée, la représentation de la pollution particulaire diffère grandement. Ainsi, les résultats analysés sur le domaine couvrant le sud de la France montrent que pendant ces deux jours il y a une forte interaction entre les émissions de Toulouse et celles de Bordeaux. La situation météorologique conduit à ce que les émissions fraîches de Toulouse se mélangent au panache constitué d'aérosols plus vieux provenant de Bordeaux. Un panache résultant est donc présent, comprenant à la fois des particules fraîches et des particules plus âgées. L'analyse des résultats sur le domaine le plus fin dont la résolution est de 500 m et couvrant la ville de Toulouse montre que la situation dynamique a conduit à la formation de rouleaux convectifs. La nature dynamique de ces rouleaux les conduit à concentrer quasiment tous les polluants. Larges de quelques kilomètres, ils concentrent ainsi les particules en laissant des zones avec des faibles concentrations entre eux. Ce phénomène n'est reproduit par la simulation qu'avec une résolution de 500 m. On peut penser que dans des événements de pollution extrême ou d'accidents chimiques, il peut s'avérer très utile de représenter ces structures cohérentes qui

concentrent quasiment tous les gaz et particules, et peuvent se révéler localement dangereuses.

La campagne CAPITOUL nous a également servi de cadre d'étude afin d'étudier les impacts radiatifs des aérosols. Nous avons donc appliqué le module de calcul des propriétés optiques des aérosols à la simulation Mésos-NH afin d'estimer et de quantifier les forçages radiatifs des aérosols, puis les rétroactions sur la dynamique. Les observations acquises durant la campagne CAPITOUL nous ont également permis de valider les calculs des propriétés optiques des aérosols effectués dans la simulation. Les résultats des simulations montrent que les propriétés optiques des aérosols urbains sont extrêmement variables dans l'espace. Ceci est directement lié au fait que l'environnement urbain présente des aérosols très différents, avec des caractéristiques variées. Les forçages radiatifs induits par les aérosols urbains sur une ville moyennement polluée comme Toulouse montrent une différence de flux solaire de  $30 \text{ W.m}^{-2}$  en moins atteignant la surface. La conséquence de la diminution du rayonnement incident est une perturbation de la dynamique, et notamment sur la température. Ainsi, les forçages radiatifs des aérosols conduisent à une diminution de la température dans la couche limite de l'ordre de  $-0.4$  degrés. Ce refroidissement de la couche limite semble également impliquer une légère diminution de l'épaisseur de la couche limite, de l'ordre de 60 mètres au maximum. En comparaison, nous avons montré que l'influence de la surface urbaine sur la température provoquait un réchauffement de 4 degrés au maximum durant la nuit. Cependant ce réchauffement est très fortement localisé, et ne vaut plus que pour 10 %, soit 0.4 degrés à une dizaine de kilomètres du centre-ville de Toulouse. L'impact radiatif des aérosols est au contraire largement généralisé sur l'ensemble de la région d'étude. Ainsi, mis à part au-dessus de la ville de Toulouse où l'impact de la surface urbaine sur la dynamique est largement prépondérant, sur l'ensemble de la région les effets des aérosols et de la surface urbaine sur la température sont du même ordre de grandeur et de signes opposés, et semblent ainsi s'annuler.

## 7.2 Perspectives

Cette étude a permis de mettre en exergue la complexité de la représentation des aérosols et de leurs impacts. Le module de calcul des propriétés optiques des aérosols étant complètement externalisé, il serait intéressant de l'appliquer à d'autres modèles, atmosphériques ou climatiques. De plus, il pourrait être intéressant d'approfondir l'étude de l'impact radiatif des aérosols sur un cas d'étude différent, avec par exemple de plus fortes concentrations de particules. En effet, on peut se demander si l'impact radiatif des particules ne serait pas plus important sur une ville plus grande, et dans un épisode de pollution davantage prononcé. Dans ce cadre, des campagnes urbaines comme celles réalisées dans le cadre du projet MEGAPOLI peuvent prolonger cette étude, et de futures campagnes de mesures comme celles prévues dans le cadre du chantier Méditerranée (CHARMEX), ou la prochaine campagne sur l'étude des poussières désertiques FENNEC pourraient également permettre d'étudier les forçages radiatifs des aérosols dans d'autres conditions d'émissions et de vieillissement.

Il serait dans ce cadre intéressant de confronter le module développé à d'autres situations en terme de type d'aérosol. De plus, nous pourrions étudier l'influence du type de mélange considéré dans le cas de présence d'aérosols continentaux et de poussières désertiques, comme cela a été observé durant les derniers jours de la campagne EUCAARI. Ainsi, nous pourrions calculer les propriétés optiques des aérosols en considérant les deux populations d'aérosols en mélange externe, calculer des propriétés optiques équivalentes, et les comparer aux propriétés optiques correspondant à un mélange interne des deux populations en considérant les poussières désertiques comme incluses dans la partie « core » de l'aérosol.

Une application supplémentaire de l'utilisation du module radiatif serait de l'utiliser comme outil de validation de modèles météorologiques. En effet, de nombreux tests de validation de ces modèles sont aujourd'hui constitués de comparaisons avec des observations optiques, telles que les observations satellitales, ou encore les lidars par exemple. Il pourrait être intéressant d'utiliser le module de calcul des propriétés optiques afin d'obtenir les valeurs caractéristiques de l'atmosphère dans les simulations, dans le but de les comparer directement aux mêmes valeurs caractéristiques des observations. Dans le même esprit que les simulateurs lidar reproduisant des valeurs caractéristiques dans la simulation des profils d'aérosols comparables avec les valeurs observées, il serait intéressant de construire des simulateurs satellite basés par exemple sur les calculs issus du module radiatif.

Enfin, concernant les aspects sur la qualité de l'air et la dispersion des polluants, il pourrait être intéressant d'étudier la formation des rouleaux convectifs de façon plus précise. Notamment il faudrait estimer s'il est nécessaire de les représenter précisément dans le cas d'événements de pollution intense ou d'accidents chimiques, ou bien s'ils présentent une variabilité temporelle telle qu'elle compenserait leur forte variabilité spatiale, en moyennant la concentration d'aérosols sur les points de la zone où ils sont présents.



# Glossaire

## Acronyme Description

---

AERONET	AERosol RObotic NETwork Réseau d'observations automatisé dédié aux aérosols
AOD	Aerosol Optical Depth Épaisseur optique des aérosols
BC	Black Carbon Carbone suie
CACM	Caltech Atmospheric Chemistry Mechanism
CAPITOUL	CANopy and Particles Interaction in TOulouse Urban Layer
CEPMMT	Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme
COV	Composé Organique Volatile
CCN	Cloud Condensation Nuclei Noyau de condensation nuageuse
CPC	Condensation Particle Counter
DMA	Differential Mobility Analyser Analyseur de différences de mobilité
EQSAM	EQuilibrium Simplified Aerosol Module
EUCAARI	European integrated project on aerosol cloud climate and air quality interactions
GEMS	Gridded European Emission Database Base de donnée des émissions européennes
GRASS	Geographic Resources Analysis Support System
HAP	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques
IFN	Ice Freezing Nuclei Noyau glaçogène
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
ISBA	Interface Soil Biosphere Atmosphere

---

IUAC	International Association for Urban Climate
LES	Large Eddy Simulation
LW	LongWave Grande longueur d'onde (rayonnement tellurique)
MODIS	MODerate-resolution Imaging Spectroradiometer
MPMPO	Model to Predict the Multiphase Partitioning of Organics
OCp	primary Organic Carbon Carbone organique primaire
OPC	Optical Particl Counter
ORAMIP	Observatoire Régional de l'Air en MIDi-Pyrénées
ORILAM	Organic Inorganic Lognormal Aerosol Model
PM 2.5	Particle Matter with $d < 2.5\mu m$ Particules dont le diamètre est inférieur à $2.5\mu m$
POI	Période d'Observations Intensives
PPM	Piecewise Parabolic Method
ReLACS2	Reduced Lumped Atmospheric Chemical Scheme 2
RRTM	Rapid Radiation Transfer Model
SMPS	Scanning Mobility Particle Sizer
SOA	Secondary Organic Aerosol Aérosol organique secondaire
SSA	Single Scattering Albedo Albédo de diffusion simple
SW	ShortWave Courte longueur d'onde (rayonnement solaire)
T2M	Température à 2 mètres
TEB	Town Energy Balance
TUV	Tropospheric Ultraviolet-Visible model
UHF	Ultra Haute Fréquence

# Bibliographie

- Ackermann, I., H. Hass, M. Memmesheimer, A. Ebel, F. Binkowski, and U. Shankar (1998), Modal aerosol dynamics model for Europe : development and first applications, *Atm. Env.*, *32(17)*, 2981–2999.
- Alfaro, S., and L. Gomes (2001), Modeling mineral aerosol production by wind erosion : Emission intensities and aerosol size distributions in source areas, *J. Geophys. Res.*, *106(D16)*, 18,075–18,084.
- Andreae, M. (1991), Biomass burning : Its history use and distribution and its impact on environmental quality and global climate, *J.S. Levine (Ed.) Global Biomass Burning : Atmospheric, climatic and biospheric implications*, pp. 3.
- Andreae, M., and P. Crutzen (1997), Atmospheric aerosols : Biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, *276*, 1052–1058.
- Aumont, B., S. Madronich, I. Bey, and G. S. Tyndal (2000), Contribution of secondary voc to the composition of aqueous atmospheric particles : a modeling approach, *J. Atmos. Chem.*, pp. 59–75.
- Bae, S., C. H. Jung, and Y. P. Kima (2009), Development of an aerosol dynamics model for dry deposition process using the moment method, *Aerosol Science Technology*, *43(6)*, 570–580.
- Bardouki, H., H. Liakakou, C. Econoou, J. Sciare, J. S. abd V. Zdmal, K. Eleftheriadis, M. Lazaridis, C. Dye, and N. Mihalopoulos (2003), Chemical composition of size resolved atmospheric aerosols in the eastern mediterranean during summer and winter, *Atm. Env.*, *37,2*, 195–208(14).
- Bechtold, P., E. Bazile, F. Guichard, P. Mascart, and E. Richard (2001), A mass-flux convection scheme for regional and global models, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, *127*, 869–886.
- Best, M., A. Beljaars, J. Polcher, and P. Viterbo (2004), A proposed structure for coupling tiled surfaces with the planetary boundary layer, *Journal of Hydrometeorology*, *5*, 1271–1278.
- Bhumralkar, C. (1975), Numerical experiment on the computation of ground surface temperature in an atmospheric general circulation model, *Journal of Applied Meteorology*, *14*, 1246–1258.
- Binkowski, F., and S. Roselle (2003), Models-3 community multiscale air quality (cmaq) model aerosol component. 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, *108*, D6.

- Binkowski, F., and U. Shankar (1995), The regional particulate model 1. Model description and preliminary results, *J. Geophys. Res.*, *100*, 26,191–26,209.
- Blackadar, A. (1976), Modeling the nocturnal boundary layer. proc., *Third Symp. on Atmospheric Turbulence, Diffusion and Air Quality*, Boston, Amer. Meteor. Soc., pp. 46–49.
- Blanchard, D., and A. Woodcock (1957), Bubble formation and modification in the sea and its meteorological significance, *Tellus*, *9*, 145–158.
- Boone, A., and P. Etchevers (2000), An intercomparison of three snow schemes of varying complexity coupled to the same land-surface and macroscale hydrologic models, *J. Hydrometeor.*
- Bougeault, P., and P. Lacarrère (1989), Parametrization of orography-induced turbulence in a meso-beta model, *Mon. Wea. Rev.*, *117*, 1872–1890.
- Brimblecombe, C. (1987/1988), The big smoke, *Methuen, London*, p. pp. 185.
- Brown, L. (2001), Eco-economy : Building an economy for the earth, *paperback*.
- Cachier, H. (1998), Carbonaceous combustion aerosols, *Atmospheric Particles*, R.M. Harrison and R. Van Grieken. New York, John Wiley and Sons Ltd, pp. 295–348.
- Campuzano-Jost, P., C. Clark, H. Maring, D. Covert, S. Howell, V. Kapustin, K. Clarke, E. Saltzman, and A. Hynes (2003), Near-real-time measurement of sea-salt aerosol during the seas campaign : Comparison of emission-based sodium detection with an aerosol volatility technique, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, *20*, 1421–1430.
- Carpenter, R., K. Droegemeier, P. Woodward, and C. Hane (1990), Application of the piecewise parabolic method (ppm) to meteorological modeling, *Mon. Wea. Rev.*, *118*, 586–612.
- Cavalli, F., et al. (2004), Advances in characterization of size-resolved organic matter in marine aerosol over the north atlantic, *J. Geophys. Res.*, *109*, d24215, doi :10.1029/2004JD005137.
- Clarck, T., and R. Forley (1989), Severe downslope windstorm calculations in two and three spatial dimensions using anelastic interactive grid nesting : A possible mechanism for gustiness, *J. Atmos. Sci.*, *41*, 329–350.
- Cohard, J., and J. Pinty (2000b), A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme . ii : 2d experiments with a non hysrostatic model, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, *126*, 1843–1859.
- Colella, P., and P. Woodward (1984), The piecewise parabolic method (ppm) for gas-dynamical simulations, *J. Comput. Phys.*, *54*, 174–201.
- Crumeyroille, S., P. Tulet, L. Garcia-Carreras, C. Flamant, D. Parker, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, P. Formenti, and L. Gomes (2010), Transport of dust particles from the bodélé region to the monsoon layer : Amma case study of the 914 june 2006 period, *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, *10*, 5051–5090.

- Crutzen, P., and M. Andreae (1990), Biomass burning in the tropics : Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles, *Science*, *250*, 1669–1678.
- Cuxart, J., P. Bougeault, and J. Redelsperger (2000), A turbulence scheme allowing for mesoscale and large-eddy simulations, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, *126*, 1–30.
- Deardorff, J. (1973), Three-dimensional numerical modelling of the planetary boundary layers, *Workshop on Micrometeorology*, D.A. Haugen, Ed., Amer. Meteor. Soc., pp. 271–311.
- Deardorff, J. (1977), A parameterization of ground surface moisture content for use in atmospheric prediction models, *J. Geophys. Res.*, *16*, 1182–1185.
- Deardorff, J. (1978), Efficient prediction of ground surface temperature and moisture with inclusion of a layer of vegetation, *J. Geophys. Res.*, *20*, 1889–1903.
- Decesari, S., et al. (2006), Characterization of the organic composition of aerosols from rondônia, brazil, during the Iba-smocc 2002 experiment and its representation through model compounds, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 375–402.
- Dockery, D., C. Pope, X. Xu, J. Spengler, J. Ware, M. Fay, B. Ferris, and F. Speizer (1993), An association between air pollution and mortality in six us cities, *N. Engl. J. Med.*, *329*, 1753–1759.
- Donaldson, K., X. Li, and W. Macnee (1998), Ultrafine (nanometre) particle mediated lung injury, *Journal of Aerosol Science*, *29*, 553–560.
- Douville, H., J.-F. Royer, and J.-F. Mahfouf (1995), A new snow parameterization for the french community climate model. part i : Validation in stand-alone experiments, *Climate Dyn.*, *23*, 21–35.
- Fouquart, Y., and B. Bonnel (1980), Computation of solar heating of the earth's atmosphere : A new parametrization, *Beitr. Phys.*, *53*, 35–62.
- Friedlander, S. (1977), Smoke, Dust, and Haze, Fundamentals of aerosols dynamics, *Oxford University Press*, 2nd ed.
- Fu, Q., and K.-N. Liou (1992), On the correlated k-distribution method for radiative transfer in non-homogeneous atmosphere, *J. Atmos. Sci.*, *49*, 2139–2156.
- Fuzzi, e. a. (2007), Overview of the inorganic and organic composition of size segregated aerosol in rondônia, brazil, from the biomass burning period to the onset of the wet season, *J. Geophys. Res.*, *112*, D01201, doi :10.1029/2005JD006741.
- Gelencser, A., T. Meszaros, M. Blazso, G. Kiss, Z. Krivacsy, A. Molnar, and E. Meszaros (2000), Structural characterisation of organic matter in fine tropospheric aerosol by pyrolysis-gas chromatography-mass spectrometry, *J. Atmos. Chem.*, pp. 173–183.
- Gillette, D. A., and P. Goodwin. (1974), On the microscale transport of sand sized wind erosion soil aggregates, *J. Geophys. Res.*, *79*, 4080–4084.

- Gomes, L. (1990), Approche géochimique du soulèvement des aérosols à l'interface sol-atmosphère en zone désertique, *Thèse de doctorat de sciences, Université Paris 7*.
- Gomes, L., and D. Gillette (1992), Chemical and mineral composition by size of dust deposited during dust storm in sw tadjikistan., *In precipitation scavenging and atmosphere-surface exchange processe, edited by Slinn W.G.N. et al., Vol. 2*, 921–932, hemisphere, New York.
- Gomes, L., G. Bergametti, F. Dulac, and U. Ezat (1990), Assessing the actual size distribution of atmospheric aerosols collected with cascade impactor, *J. Aer. Sci*, *21*, 47–59.
- Gomes, L., M. Mallet, J. Roger, and P. Dubuisson (2008), Effects of the physical and optical properties of urban aerosols measured during the capitoul summer campaign on the local direct radiative forcing, *Meteorology and Atmospheric Physic*, *108*, 289–306.
- Griffin, R., D. C. III, R. Flagan, and J. Seinfeld (1999), Organic aerosols formation from the oxidation of biogenic hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, *104*, 3555–3567.
- Griffin, R., D. Dabdub, and J. Seinfeld (2002), Secondary organic aerosol. 1. Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents, *J. Geophys. Res.*, *107(D17)*, 4332, doi :10.1029/2001JD000,541.
- Griffin, R., D. Dabdub, and J. Seinfeld (2005), Development and initial evaluation of a dynamic species-resolved model for gas phase chemistry and size-resolved gas/particle partitioning associated with secondary organic aerosol formation, *J. Geophys. Res.*, *110*, D05,304, doi :10.1029/2004JD005219.
- Grimmond, C., and T. Oke (1999), Heat storage in urban areas : local-scale observations and evaluation of a simple model, *Journal of Applied Meteorology*, *38*, 922–940.
- Gunn, R., and B. Phillips (1957), An experimental investigation of the effect of air pollution on the initiation of rain, *J. Meteor.*, *14*, 272–280.
- Hannigan, M., G. Cass, B. Penman, C. Crespi, A. Lafleur, W. Busby, W. Thily, and B. Simoneit (1998), Bioassay directed chemical analysis of Los Angeles airborne particulate matter using a human cell mutagenicity assay, *Environ. Sci. Technol.*, *32*, 3502–3514.
- Hao, W., M. Lui, and P. Crutzen (1990), Estimates of annual and regional releases of co2 and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on fao statistics for the period 1975-1980, *J.G. Goldammer (Ed.) Fire in the Tropical Biota : Ecosystem processes and Global Challenges, Ecological Studies, vol. 84*, 440–462, springer-Verlag, New York.
- Harrington, D., and S. Kreidenweis (1998), Simulation of sulfate aerosol dynamics part ii. model intercomparion, *Atmos. Environ.*, *32*, 1701–1709.
- Haywood, J., P. Francis, O. Dubovik, M. Glew, and B. Holben (2003a), Comparison of aerosol size distribution, radiative properties, and optical depths determined by aircraft observations and sun photometers during safari 2000, *J. Geophys. Res.*, *108*, 8471.

- Haywood, J., S. Osborne, P. Francis, A. Keil, P. Formenti, M. Andreae, and P. Kaye (2003b), The mean physical and optical properties of regional haze dominated by biomass burning aerosol measured from the c-130 aircraft during safari 2000, *J. Geophys. Res.*, *108*, 8473.
- Heintzenger, J., and D. Covert (2000), Size distribution and chemical composition of marine aerosols : A compilation and review, *Tellus*, *52B*, 1104–1122.
- Hidalgo, J., G. Pigeon, and V. Masson (2008), Urban breeze circulation during the capitoul field experiment : Experimental data analysis approach, *Meteorology and Atmospheric Physics*, *102*, 223–241.
- Hobbs, P. (1995), Aerosol-cloud interactions, *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*, ed. Academic Press, San Diego, pp. 33-73.
- Hoek, G., B. Brunekreef, S. Goldbohm, P. Fisher, and P. V. D. Brandt (2002), Association between mortality and indicators of traffic-related air pollution in the netherlands, *The Lancet*, *360*, 1203–1209.
- Johnson, B. (2003), *The Semi-direct Aerosol Effect*, thesis.
- Johnson, B., K. Shine, and P. M. Forster (2004), The semi-direct aerosol effect : Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, pp. 1407–1422.
- Junge, C. (1963), Air chemistry and radioactivity, *New York : Academic Press*, 382 p.
- Kinne, S. (2006), An aerosol initial assessment optical properties in aerosol component modules of global models, *Atmos. Chem. Phys.*, *6*, 1815–1834.
- Kulmala, M., A. Laaksonen, and L. Pirjola (1998), Parametrization for sulfuric acid / water nucleation rates, *J. Geophys. Res.*, *103*, D7, 8301–8307.
- Kulmala, M., V. Kerminen, T. Anttila, A. Laaksonen, and C. O'Dowd (2004), Organic aerosol formation via sulphate cluster activation, *J. Geophys. Res.*, *109*, doi :10.1029/2003JD003,961.
- Köhler, H. (1936), The nucleus in the growth of hygroscopic droplets, *Trans. Faraday Soc.*, *32*, 1152–1161.
- Lacis, A. A., and V. Oinas (1991), A description of the correlated k distribution method for modeling nongray gaseous absorption, thermal emission, and multiple scattering in vertically inhomogeneous atmospheres, *J. Geophys. Res.*, *96D*, 9027–9063.
- Lafore, J., et al. (1998), The meso-nh atmospheric simulation system. part i : adiabatic formulation and control simulations, *Ann. Geophys.*, *16*, 90–109.
- Le Canut, P., M. Andreae, G. Wienhold, and T. Zenker (1996), Airborne studies of emissions from savanna fires in southern africa, 1, aerosol emissions measured with a laser optical particle counter, *J. Geophys. Res.*, *101(23)*, 615–630.

- Lindesay, J., M. Andreae, J. Goldammer, G. Harris, H. Annegarn, M. Garstang, R. Scholes, and B. Wilgen (1996), International geosphere-biosphere programme/international global atmospheric chemistry safari-92 field experiment : Background and overview, *J. Geophys. Res.*, *101(19)*, 521–530.
- Madronich, S., and G. Weller (1990), Numerical integration errors in calculated tropospheric photodissociation rate coefficients, *J. Atmos. Chem.*, *10*, 289–300.
- Mallet, M., P. Tulet, D. Serca, F. Solmon, O. Dubovik, J. Pelon, V. Pont, and O. Thoueron (2009), A study of the impact of saharan dust on the radiative forcing, surface energy budget and atmospheric dynamics over the west african region in march 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, *9*, 7143–7160.
- Masson, V. (2000), A physically-based scheme for the urban energy balance in atmospheric models, *Boundary-Layer Meteorology*, *94*, 357–397.
- Masson, V., J. Champeaux, F. Chauvin, C. Meriguet, and R. Lacaze (2003), A global database of land surface parameters at 1-km resolution in meteorological and climate models, *Journal of Climate*, *16(9)*, 1261–1282.
- Matsui, H., M. Koike, N. Takegawa, Y. Kondo, R. J. Griffin, Y. Miyazaki, Y. Yokouchi, and T. Ohara (2009), Secondary organic aerosol formation in urban air : Temporal variations and possible contributions from unidentified hydrocarbons, *J. Geophys. Res.*, *114*, doi :10.1029/2008JD010,164, d04201.
- Maxwell-Garnett, J. (1904), Colours in metal glasses and in metallic films, *Philos. T. Roy. Soc. A*, *203*, 385–420.
- Mayol-Bracero, O., P. Guyon, B. Graham, G. Roberts, M. Andreae, S. Decesari, M. Facchini, S. Fuzzi, and P. Artaxo (2002), Water-soluble organic compounds in biomass burning aerosols over amazonia : 2. apportionment of the chemical composition and importance of the polyacid fraction, *J. Geophys. Res.*, *107*, 8091.
- Metzger, S., F. Dentener, S. Pandis, and J. Lelieveld (2002), Gas/aerosol partitioning : 1. a computationally efficient model, *J. Geophys. Res.*, *107(D16)*, doi :10.1029/2002GL014,769.
- Middlebrook, A., D. Murphy, and D. Thomson (1998), Observations of organic material in individual marine particles at cape grim during the first aerosol characterization experiment (ace1), *J. Geophys. Res.*, *103*, 16,475–16,483.
- Mie, G. (1908), Beiträge zur optik trüber medien, speziell kolloidaler metallösungen, *Ann. Phys. Leipzig*, *330*, 377–445.
- Mlawer, E. J., S. J. Taubman, P. D. Brown, M. J. Iacono, and S. A. Clough (1997), Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres : Rrtm, a validated correlated-k model for the longwave, *J. Geophys. Res.*, *102D(16)*, 663–682.



- Mondon, S., and J. L. Redelsperger (1998), Study of a fair weather boundary layer in toga-coare : Parameterization of surface fluxes in large-scale and regional models for light wind conditions, *Boundary-Layer Meteorology*, 88, 47–76.
- Morcrette, J., L. Smith, and Y. Fouquart (1986), Pressure and temperature dependence of the absorption in longwave radiation parameterizations, *Beitr. Phys. Atmosph.*, 59, 455–469.
- Murphy, D., D. Thomson, A. Middlebrook, and M. Schein (1998), In situ single-particle characterization at cape grim, *J. Geophys. Res.*, 103(16), 485–491.
- Nemery, B., P. Hoet, and A. Nenmar (2001), The meuse valley fog of 1930 : an air pollution disaster, *The Lancet*, 357, 704–708.
- Noilhan, J., and P. Lacarrere (1995), Gcm grid-scale evaporation from mesoscale modeling, *Journal of Climate*, 8, 206–223.
- Noilhan, J., and S. Planton (1989), A simple parameterization of land surface processes for meteorological models, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 536–549.
- Novakov, T., C. Corrigan, J. Penner, C. Chuang, O. Rosario, and O. M. Bracero (1997), Organic aerosols in the caribbean sea : A natural source ?, *J. Geophys. Res.*, 102(21), 307–313.
- Ntziachristos, L., D. Gkatzoflias, C. Kouridis, and Z. Samaras (2009), Copert : A european road transport emission inventory model, *Environmental Science and Engineering, Part 2*, 491–504, doi : 10.1007/978-3-540-88351-7\_37.
- O’Dowd, C., M. Smith, I. Consterdine, and J. Lowe (1997), Marine aerosol ; sea-salt, and the marine sulphur cycle : A short review, *Atm. Env.*, 31, 73–80.
- O’Dowd, C., M. Facchini, F. Cavalli, D. Ceburnis, M. Mircea, S. Decesari, S. Fuzzi, Y. Yoon, and J. Putaus (2004), Biogenically driven organic contribution to marine aerosol, *Nature*, 431, 676–680.
- Oke, T. (1983), The energetic basis of the urban heat island, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 108, 1–24.
- Oke, T. (1987), *Boundary layer climates*, London and York N. (Ed.).
- Oke, T. (1995), The heat island characteristics of the urban boundary layer : Characteristics, causes and effects, *Wind Climate in Cities*, pp. 81–107.
- Oke, T., R. S.-S. ad E. Jauregi, and C. Grimmond (1999), The energy balance of central mexico city during the dry season, *Atm. Env.*, 33, 3930–3939.
- Patterson, E., and D. Gillette (1977), Commonalities in measured size distributions for aerosols having a soil-derived component, *J. Geophys. Res.*, 82(15), 2074–2082.
- Pinty, J., and P. Jabouille (1998), A mixed-phase cloud parameterization for use in mesoscale non hydrostatic model : simulations of a squall line and of orographic precipitations, *Conference of Cloud Physics, Everett, WA, USA*, 217–220.

- Piringer, M., et al. (2007), The surface energy balance and the mixing height in urban areas - activities and recommendations of cost action 715, *Boundary-Layer Meteorology*, 124, 3–24.
- Platt, R., R. Rowntree, and P. Muick (1994), The ecological city : Preserving and restoring urban biodiversity, *University of Massachusetts Press*.
- Polcher, J., et al. (1998), Importance of land-surface processes for the uncertainties of climate change ; a european project, *GEWEX-NEWS*.
- Pope, C., M. Thun, M. Namboodiri, D. Dockery, J. Evans, F. Speitzer, and C. Heath (1995), Particulate air pollution as a predictor of mortality in a prospective study of us adults, *Am. J. Respir. Crit. Care Med.*, 151, 669–674.
- Pruppacher, H., and J. Klett (1997), *Microphysics of Cloud and Precipitation*, 2d ed. Kluwer Academic Publishers.
- Pun, B. K., C. Seigneur, D. Grosjean, and P. Saxena (2000), Gas-phase formation of watersoluble organic compounds in the atmosphere : A retrosynthetic analysis, *J. Atmos. Chem.*, pp. 199–223.
- Reid, J., R. Koppmann, T. Eck, and D. Eleuterio (2005), A review of biomass burning part ii : intensive physical properties of biomass burning particles, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 799–825.
- Richards, K. (2004), Observation and simulation of dew in rural and urban environments, *Progress in Physical Geography*, 22, 76.
- Sachweh, M., and P. Koepke (1995), Radiation fog and urban climate, *Geophysical Res. Let.*, 22(9), 1073–1076.
- Sachweh, M., and P. Koepke (2004), Fog dynamics in urbanized area, *Theoretical and Applied Climatology*, 58, 1, 87–93.
- Salgado, R., and P. L. Moigne (2010), Coupling of the flake model to the surfex externalized surface model, 15, in press.
- Sandu, I., J.-L. Brenguier, O. Geoffroy, O. Thouron, and V. Masson (2008), Aerosol impacts on the diurnal cycle of marine stratocumulus, *J. Atmos. Sci.*, 65, 2705–2718, doi :10.1175/2008JAS2451.1.
- Schulz, M., G. deLeeuw, and Y. Balkanski (2004), Sea-salt aerosol source functions and emissions. emissions of atmospheric trace compounds, *P.A.C. Granier and C.E. Reeves, Eds., Kluwer*, pp. 333–359.
- Seigneur, C., A. Hudischewskyj, J. Seinfeld, K. Whitby, E. Whitby, J. Brock, and H. Barnes (1986), Simulation of aerosol dynamics : a comparative review of mathematical models, *Aerosol Sci. and Tech.*, 5, 205–222.
- Seinfeld, J., and S. Pandis (2006), Atmospheric Chemistry and Physics, *Wiley interscience pub*, second Edition.

- Shea, D., and A. Auer (1978), Thermodynamical properties and aerosol patterns in the plume downwind st. louis, *Journal of Applied Meteorology*, *17*, 689–698.
- Shepherd, J. (2004), A review of current investigations of urban-induced rainfall and recommendations for the future, *Earth Interactions*, *9*, 1–27.
- Shinokuza, Y., A. Clarke, S. Howell, V. Kapustin, and B. Huebert (2004), Sea-salt vertical profiles over the southern and tropical pacific oceans : Microphysics, optical properties, spatial variability, and variations with wind speed, *J. Geophys. Res.*, *109*, D24,201, doi :10.1029/2004JD004975.
- Sinha, P., P. Hobbs, R. Yokelson, D. Blake, S. Gao, and T. Kirchstetter (2003), Distribution of trace gases and aerosols during the dry biomass burning season in southern africa, *J. Geophys. Res.*, *108*, 4536.
- Solmon, F., C. Sarrat, D. Serca, P. Tulet, and R. Rosset (2004), Isoprene and monoterpenes biogenic emissions in france : modeling and impact during a regional pollution episode, *Atmos. Environ.*, *38*, 3853–3865.
- Solmon, F., P. Chuang, N. Meskhidze, and Y. Chen (2008), Acidic processing of mineral dust iron by anthropogenic compounds over the north pacific ocean, *J. Geophys. Res.*, doi :10.1029/2008JD010417.
- Squires, P. (1958), The microstructure and colloidal stability of warm clouds. i. the relation between structure and stability, *Tellus*, *10*, 256–271.
- Squires, P., and T. Twomey (1961), The relation between cloud drop numbers and the spectrum of cloud nuclei, *In Physics of Precipitation, Monograph*, *5*, 211–219.
- Stull, R. (1988), *An introduction to Boundary Layer Meteorology*, Kluwer Academic Publishers.
- Tsang, T., and A. Rao (1988), Comparison of different numerical schemes for condensational growth of aerosols, *Atm. Sci. and Tech.*, *9*, 271–277.
- Tulet, P., V. Crassier, F. Solmon, D. Guedalia, and R. Rosset (2003), Description of the mesoscale nonhydrostatic chemistry model and application to a transboundary pollution episode between northern france and southern england, *J. Geophys. Res.*, *108*, D1, 4021.
- Tulet, P., V. Crassier, F. Cousin, K. Shure, and R. Rosset (2005), Orilam, a three moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model. on-line coupling into the mesonh-c model and validation on the escompte campaign, *J. Geophys. Res.*, *110*, doi :10.1029/2004JD005716.
- Tulet, P., A. Grini, R. Griffin, and S. Petitcol (2006), Orilam-soa : A computationally efficient model for predicting secondary organic aerosols in 3d atmospheric models., *J. Geophys. Res.*, *111*, doi :10.1029/2006JD007152.
- Tulet, P., M. Mallet, V. Pont, J. Pelon, and A. Boone (2008), The 7-13 march 2006 dust storm over west africa : Generation, transport, and vertical stratification, *J. Geophys. Res.*, *113*, doi :10.1029/2008JD009871.

- Twomey, S. (1977), The influence of pollution on the short wave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, *34*, 1149–1152.
- Warner, J. (1968), A reduction of rain associated with smoke from sugar-cane fires-an inadvertent weather modification, *J. App. Meteor.*, *7*, 247–251.
- Warner, J., and S. Twomey (1967), The production of cloud nuclei by cane fires and the effect on cloud droplet concentration, *J. Atmos. Sci.*, *24*, 704–706.
- Warner, P. (1988), Chemistry of the natural atmosphere, *International Geophysics Series*, *41*, academic Press, New York, 753 p.
- Whitby, E., P. McMurry, U. Shankar, and F. Binkowski (1991), Modal aerosol dynamics modeling, *Atm. Res. and Exposure Asses. Lab., U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C.*
- Whitby, K. (1978), The physical characteristics of sulfur aerosols, *Atm. Env.*, *12*, 135–159.
- Wilemski, G. (1984), Composition of the critical nucleus in multicomponent vapor nucleation, *J. Chem. Phys.*, *80*, 1370–1372.
- Yoshikado, H. (1992), Numerical study of the daytime urban effect and its interaction with the sea breeze, *App. Meteor.*, *31*, 1146–1164.
- Zappoli, S., et al. (1999), Inorganic, organic and macromolecular components of fine aerosol in different areas of europe in relation to their water solubility, *Atm. Env.*, *33*, 2733–2743.

**AEROSOL IMPACTS ON THE URBAN  
BOUNDARY LAYER DYNAMICS :  
APPLICATION DURING THE CAPITOUL FIELD EXPERIMENT**

**Benjamin Aouizerats**

**ABSTRACT :**

Nowaday, aerosol modelling is an absolute interest for the understanding of the complex atmospheric system. The role of aerosol particles is considered crucial for air quality, meteorological and climatical purpose. Several studies show that the aerosol physical and chemical behaviours affect the atmospheric radiative budget by scattering and absorbing the radiative fluxes. Moreover, it has also been shown that the physical and chemical description of the aerosol is necessary to give shape to water droplets. Finally, several reports from the World Health Organisation show that the fine aerosol particles can cause major diseases as cancer or pulmonary diseases, and should be now considered as a public health matter.

This study takes place in this context, and aims at estimating the radiative feedbacks of urban aerosol on the boundary layer. The CAPITOUL field experiment, which took place in the city of Toulouse during one year from march 2004 to february 2005, is the framework of a modelling study during a 2-day IOP. First, an emission inventory has been set up to reproduce the gaz and particles emissions. Then, a simulation exercise aims at reproduce the aerosol evolution at the fine scale of 500 m, and the very specific spatial distribution at different resolutions. In order to estimate the impact of aerosol particles on radiation, a radiative module has been developped to compute online the aerosol optical properties depending on the complex aerosol physical and chemical parameters. The radiative fluxes are then impacted by the aerosol scattering and absorbing behaviour, leading to change in the urban dynamics. Those feedbacks on radiative fluxes lead to a change of the boundary layer's temperature. The impacts are also compared to the urban surface impacts.

**KEYWORDS :** aerosol, optical properties, direct effect, pollution,

**AUTEUR :** Benjamin Aouizerats

**TITRE :** Impact de l'aérosol sur dynamique en couche limite urbaine :  
Application durant la campagne CAPITOUL

**RÉSUMÉ :**

La modélisation de l'aérosol se pose actuellement comme un point de passage obligé pour la compréhension du système atmosphérique. Son rôle multiple le place au centre de préoccupations environnementales comme météorologiques. Aujourd'hui, de nombreuses études attestent que de par ses propriétés physico-chimiques, l'aérosol a un impact direct complexe sur le bilan radiatif du fait de ses propriétés diffusantes et absorbantes. Il a été également montré qu'il avait un fort impact indirect lorsqu'on considère sa capacité d'activation en gouttelettes nuageuses. Enfin et selon différents rapports de l'Organisation Mondiale de la Santé, l'aérosol fin et ultra fin (particules fines inhalables) pose un vrai problème de santé publique (cancers, asthmes,...). Cette étude s'inscrit dans ce contexte et a pour principal objectif d'étudier les impacts radiatifs de l'aérosol urbain sur la couche limite. L'un des objectifs est d'étudier et d'évaluer les rétroactions des aérosols sur la dynamique de la couche limite urbaine au travers des interactions entre les particules atmosphériques et le rayonnement. La campagne de mesure CAPITOUL qui eut lieu entre 2004 et 2005 à Toulouse a servi de cadre à cette étude. Un cadastre d'émissions des aérosols et des gaz a tout d'abord été établi. Puis, une modélisation de l'aérosol urbain, principalement émis par des sources anthropiques (trafic routier et industries), a permis l'étude de l'évolution granulométrique et chimique, ainsi que l'analyse de la distribution spatiale des particules, fortement dépendante de la résolution adoptée. Ensuite, un module permettant de prendre en compte les caractéristiques des aérosols (taille, composition, concentration) calculées en chaque point et à chaque pas de temps lors du calcul des flux radiatifs a été développé. Ce module a permis de calculer les flux radiatifs influencés par la nature absorbante ou diffusante des aérosols. Les impacts sur ces flux et sur la température de la couche limite dans le cas réel de la campagne CAPITOUL sont présentés et comparés aux impacts dus à la surface urbaine seule.

**MOTS CLÉS :** aérosol, propriétés optiques, effet direct, pollution, CAPITOUL, Meso-NH

**DISCIPLINE :** Physique de l'atmosphère



1 Titre : Impacts radiatifs des aérosols sur la dynamique en couche limite urbaine : Application à la campagne CAPITOUL

2 Auteur : Benjamin Aouizerats

3 Soutenue le 24 novembre 2010 au CNRM-GAME, salle de conference, Toulouse

4 Discipline : Atmosphere et Ocean a moyenne echelle

5 Résumé : La modélisation de l'aérosol se pose actuellement comme un point de passage obligé pour la compréhension du système atmosphérique. Son rôle multiple le place au centre de préoccupations environnementales comme météorologiques. Aujourd'hui, de nombreuses études attestent que de par ses propriétés physico-chimiques, l'aérosol a un impact direct complexe sur le bilan radiatif du fait de ses propriétés diffusantes et absorbantes. Il a été également montré qu'il avait un fort impact indirect lorsqu'on considère sa capacité d'activation en gouttelettes nuageuses. Enfin et selon différents rapports de l'Organisation Mondiale de la Santé, l'aérosol fin et ultra fin (particules fines inhalables) pose un vrai problème de santé publique (cancers, asthmes,...). Cette étude s'inscrit dans ce contexte et a pour principal objectif d'étudier les impacts radiatifs de l'aérosol urbain sur la couche limite. L'un des objectifs est d'étudier et d'évaluer les rétroactions des aérosols sur la dynamique de la couche limite urbaine au travers des interactions entre les particules atmosphériques et le rayonnement. La campagne de mesure CAPITOUL qui eut lieu entre 2004 et 2005 à Toulouse a servi de cadre à cette étude. Un cadastre d'émissions des aérosols et des gaz a tout d'abord été établi. Puis, une modélisation de l'aérosol urbain, principalement émis par des sources anthropiques (trafic routier et industries), a permis l'étude de l'évolution granulométrique et chimique, ainsi que l'analyse de la distribution spatiale des particules, fortement dépendante de la résolution adoptée. Ensuite, un module permettant de prendre en compte les caractéristiques des aérosols (taille, composition, concentration) calculées en chaque point et à chaque pas de temps lors du calcul des flux radiatifs a été développé. Ce module a permis de calculer les flux radiatifs influencés par la nature absorbante ou diffusante des aérosols. Les impacts sur ces flux et sur la température de la couche limite dans le cas réel de la campagne CAPITOUL sont présentés et comparés aux impacts dus à la surface urbaine seule.

6 Abstract : Nowadays, aerosol modelling is an absolute interest for the understanding of the complex atmospheric system. The role of aerosol particles is considered crucial for air quality, meteorological and climatical purpose. Several studies show that the aerosol physical and chemical behaviours affect the atmospheric radiative budget by scattering and absorbing the radiative fluxes. Moreover, it has also been shown that the physical and chemical description of the aerosol is necessary to give shape to water droplets. Finally, several reports from the World Health Organisation show that the fine aerosol particles can cause major diseases as cancer or pulmonary diseases, and should be now considered as a public health matter. This study takes place in this context, and aims at estimating the radiative feedbacks of urban aerosol on the boundary layer. The CAPITOUL field experiment, which took place in the city of Toulouse during one year from march 2004 to february 2005, is the framework of a modelling study during a 2-day IOP. First, an emission inventory has been set up to reproduce the gaz and particles emissions. Then, a simulation exercise aims at reproduce the aerosol evolution at the fine scale of 500 m, and the very specific spatial distribution at different resolutions. In order to estimate the impact of aerosol particles on radiation, a radiative module has been developed to compute online the aerosol optical properties depending on the complex aerosol physical and chemical parameters. The radiative fluxes are then impacted by the aerosol scattering and absorbing behaviour, leading to change in the urban dynamics. Those feedbacks on radiative fluxes lead to a change of the boundary layer's temperature. The impacts are also compared to the urban surface impacts.

7 Mots clés : aérosol, propriétés optiques, effet direct, pollution, CAPITOUL, Méso-NH, modélisation

Key words : aerosol, optical properties, direct effect, pollution, CAPITOUL, Méso-NH, modelisation

8 Directeur de thèse : Jean-Louis Brenguier

9 Laboratoire d'accueil : CNRM-GAME