LGGE, le 19 septembre 2007

# Soufre Atmosphérique et Changements Climatiques : une étude de modélisation pour les moyennes et hautes latitudes Sud

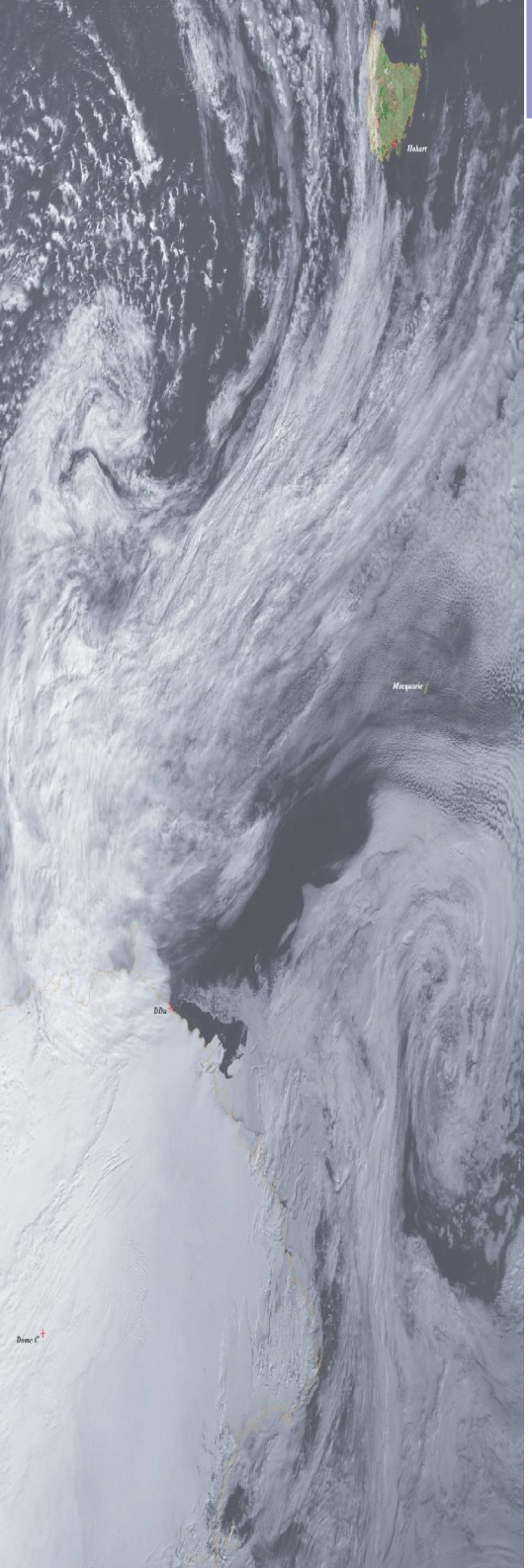
Hélène CASTEBRUNET

## JURY

| | |
|---|---|
| M. Eric Wolff | rapporteur |
| M. Vincent-Henri Peuch | rapporteur |
| Mme Anne-Marie Boullier | examinatrice |
| M. Michael Schulz | examinateur |
| M. Christophe Genthon | directeur de thèse |
| Mlle Patricia Martinerie | co-directrice de thèse |

Joseph Fourier

Svante Arrhenius




# Plan de l'exposé

**1.** Introduction

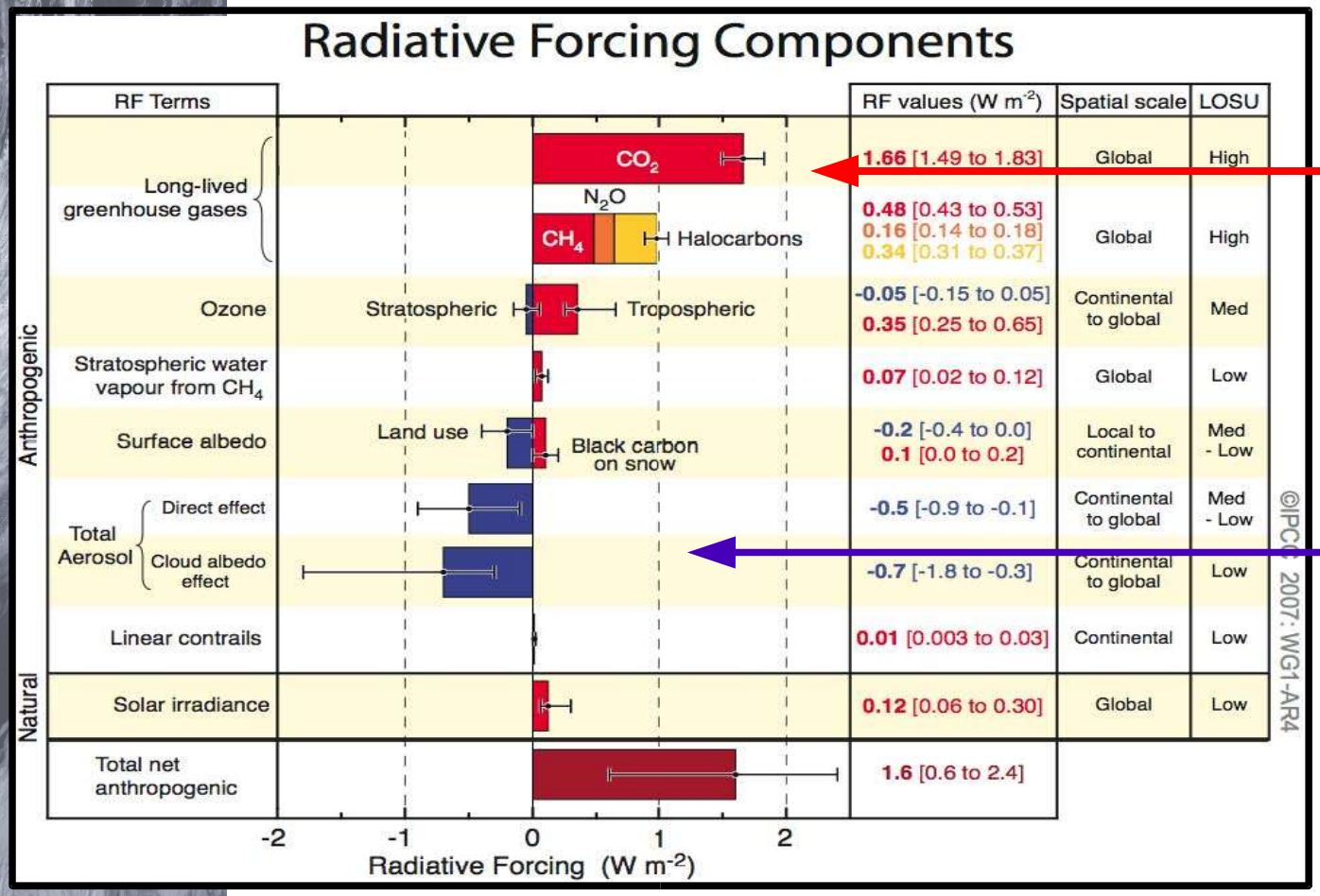
**2.** Mon outil de travail : le modèle LMD-ZT Soufre

**3.** La mise à jour du modèle

**4.** Le cycle du soufre au Dernier Maximum Glaciaire

**5.** Conclusions et Perspectives

# 1. Introduction : impact climatique des aérosols




Gaz à effet de serre

Aérosols

(IPCC, 2007)

**Impact écologique et environnemental:**

- formation et temps de vie des nuages
- dépôts acides
- santé humaine, etc ...

# 1. Introduction : le soufre, ses sources

**Sources naturelles**

Océans

*(DMS)*

Volcans

*($SO_2$, $H_2S$)*

Biosphère terrestre, sols

*(DMS, $H_2S$)*

+

−

**Sources anthropiques**

Energies fossiles et industrie

*(SOx)*

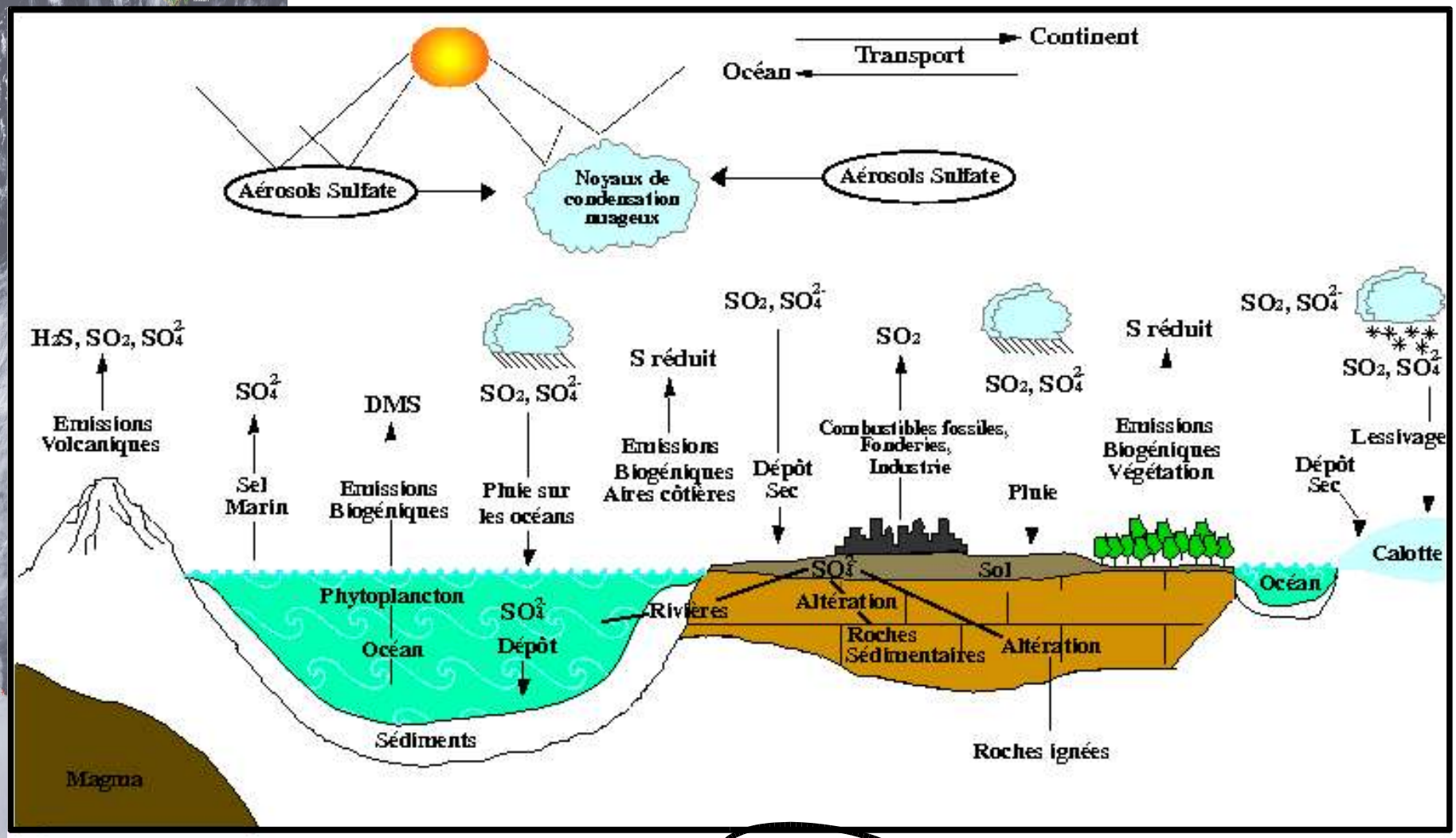
Trafic maritime et aérien

*($SO_x$)*

Feux de biomasse

*($SO_2$)*

# 1. Introduction : le soufre, ses sources

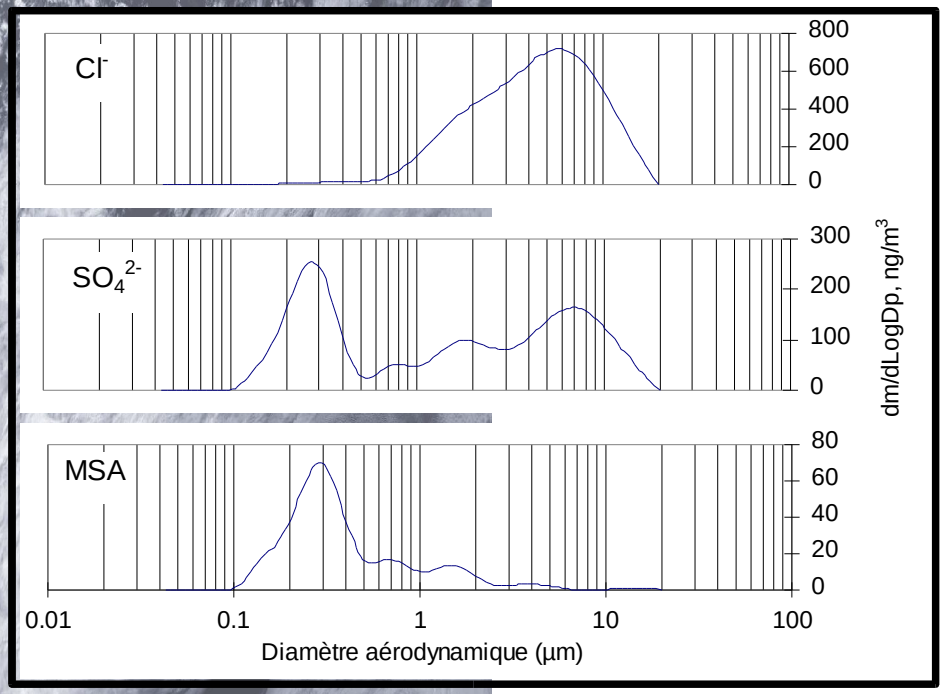


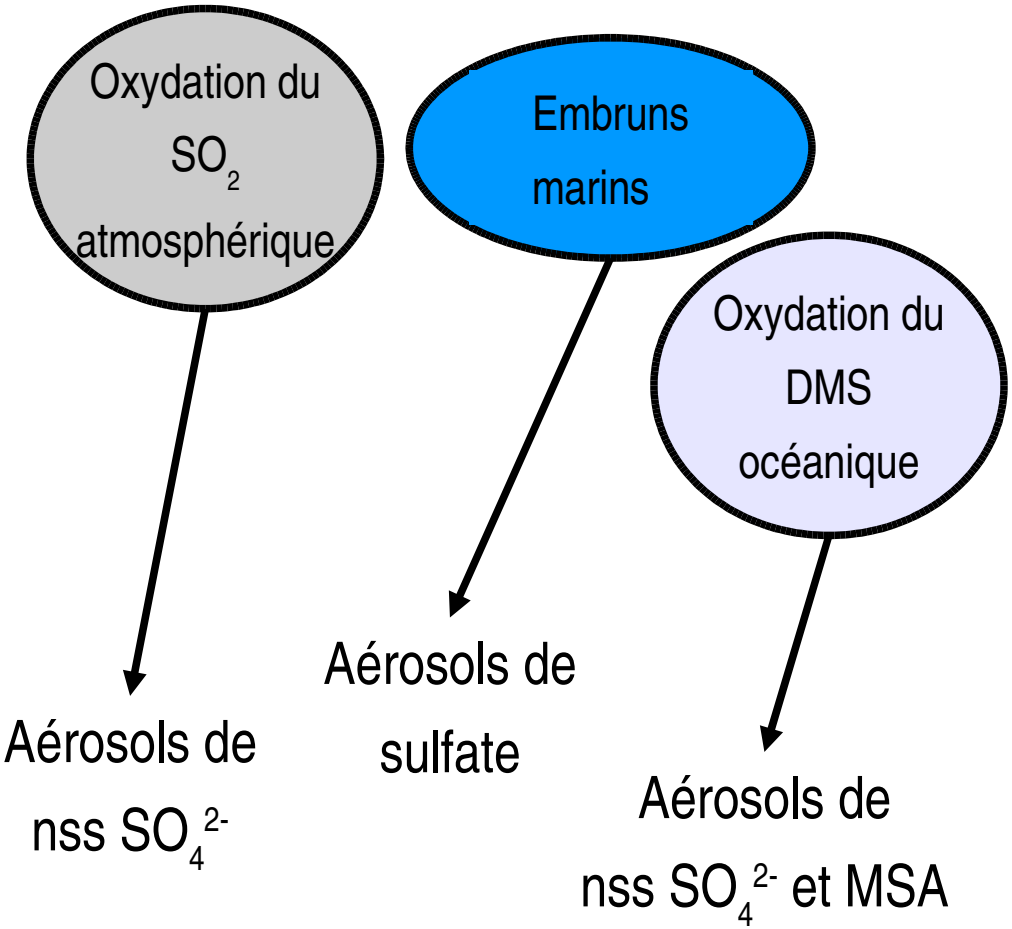

Transfert dans l'air

Oxydation Transport

Dépôt sec Lessivage

# 1. Introduction : impact climatique des aérosols

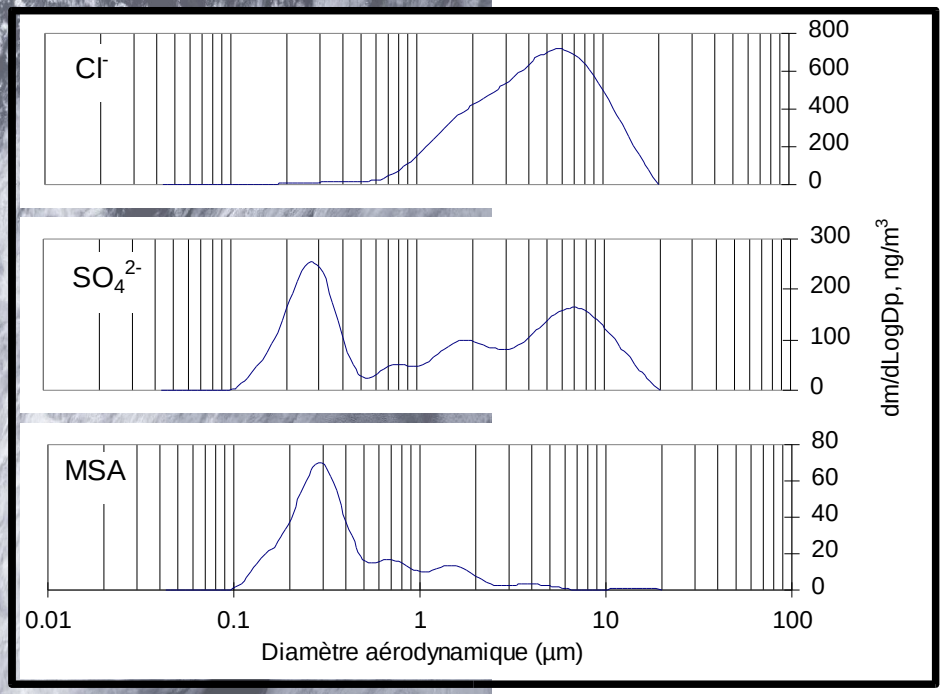



nss $SO_4^{2-}$ = «non sea salt», sulfate non issu du sel de mer

MSA = acide méthane sulfonique

# 1. Introduction : impact climatique des aérosols




Oxydation du $SO_2$ atmosphérique → Aérosols de nss $SO_4^{2-}$

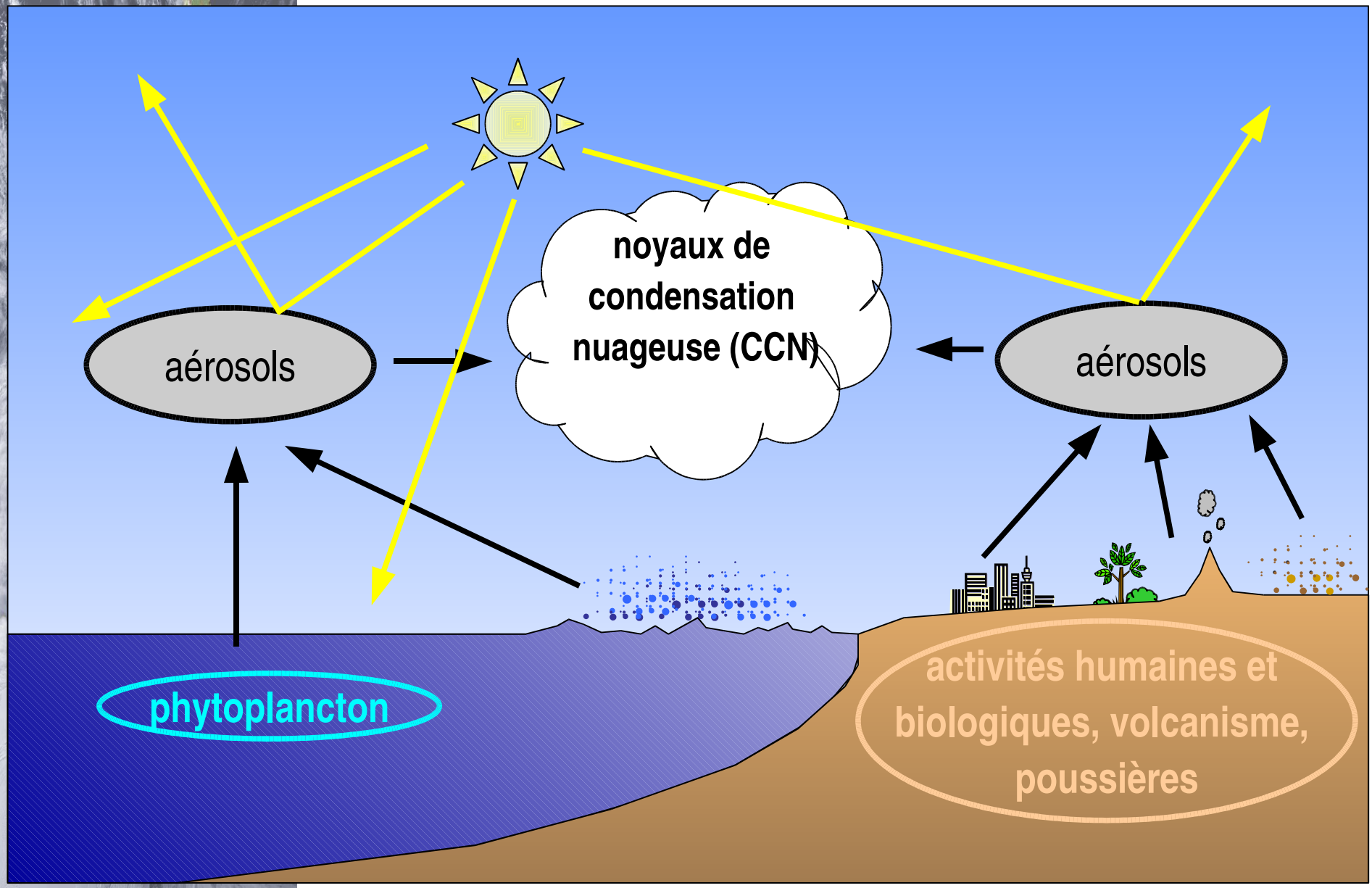
Embruns marins → Aérosols de sulfate

Oxydation du DMS océanique → Aérosols de nss $SO_4^{2-}$ et MSA

Les aérosols interagissent sur le bilan radiatif :

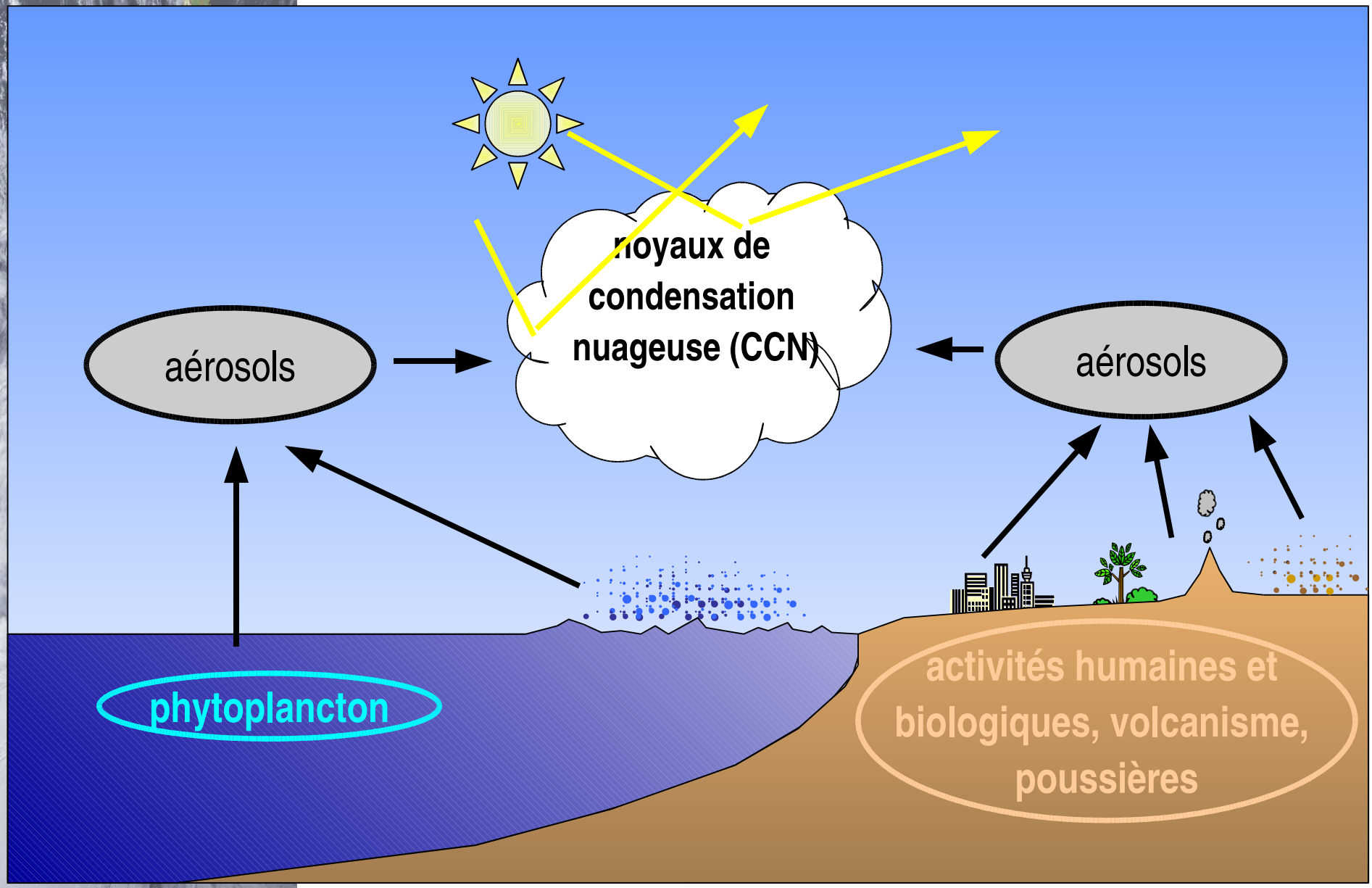
- par effet direct
- par effet indirect

# 1. Introduction : le soufre, ses sources




**Effet direct**

# 1. Introduction : le soufre, ses sources



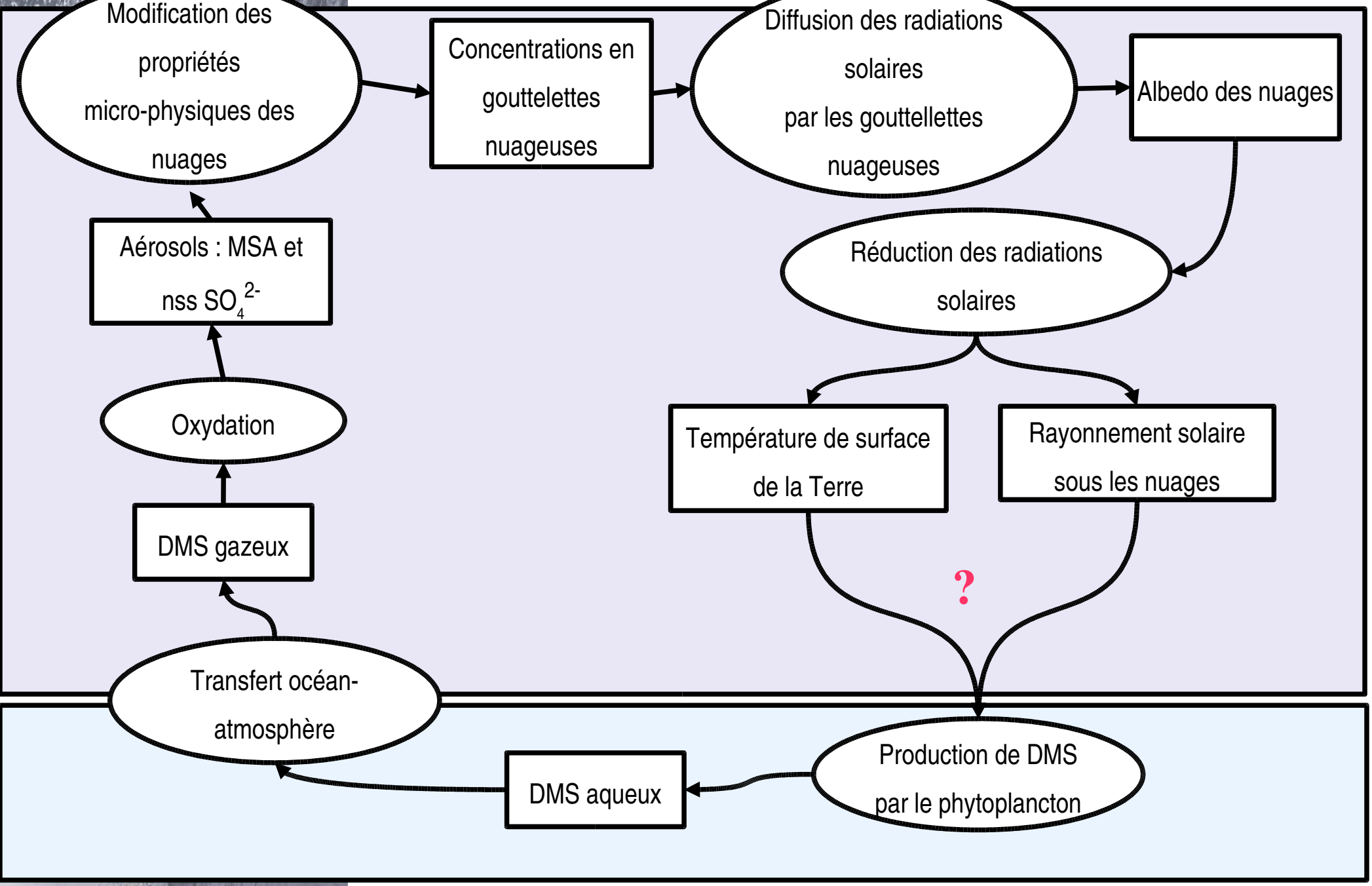

**Effet direct**

**Effet indirect**

# 1. Introduction : le soufre et le climat

## L'hypothèse CLAW

(Charlson et al., *Nature*, 1987)



# 1. Introduction : l'Antarctique, terrain d'étude

**Etudier l'impact climatique des aérosols soufrés :**

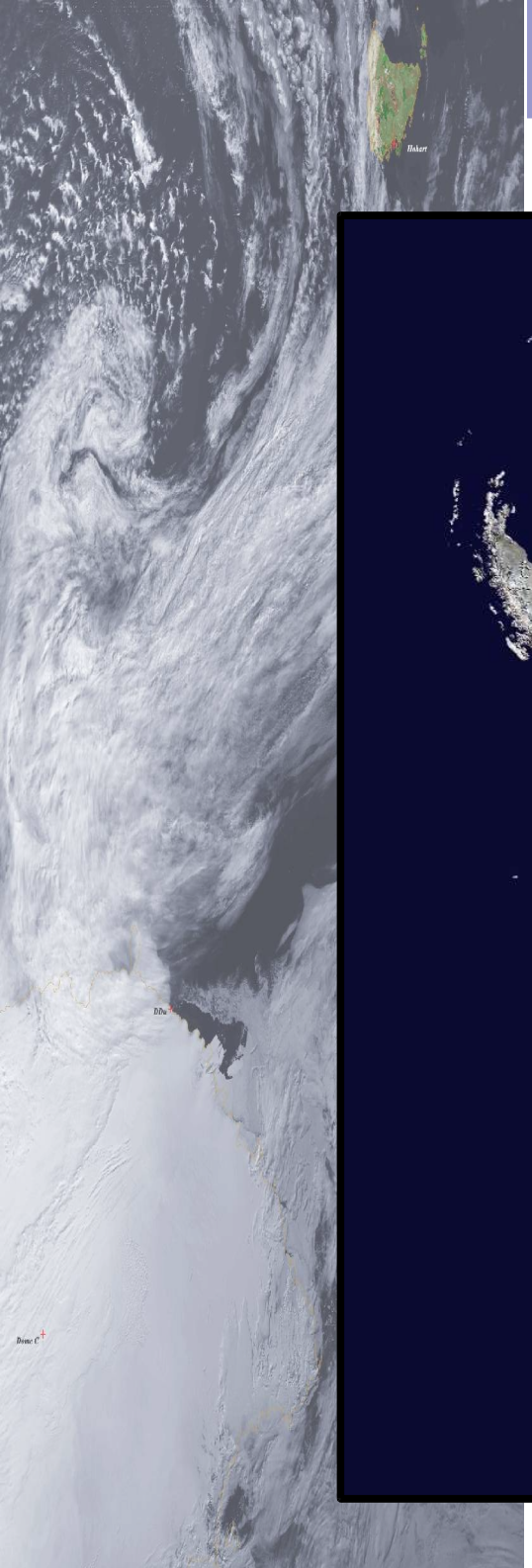
- ✔ Comportement de la composante naturelle dans le passé
- ✔ Compréhension des changements climatiques futurs

**L'Antarctique, terrain d'étude idéal**

Peu exposé aux sources anthropiques

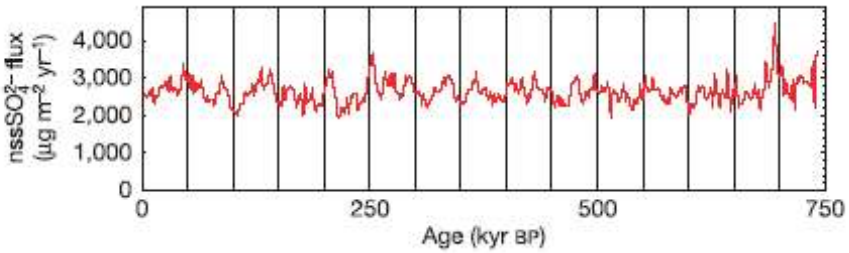
Bien isolé climatiquement

# 1. Introduction : l'Antarctique, terrain d'étude

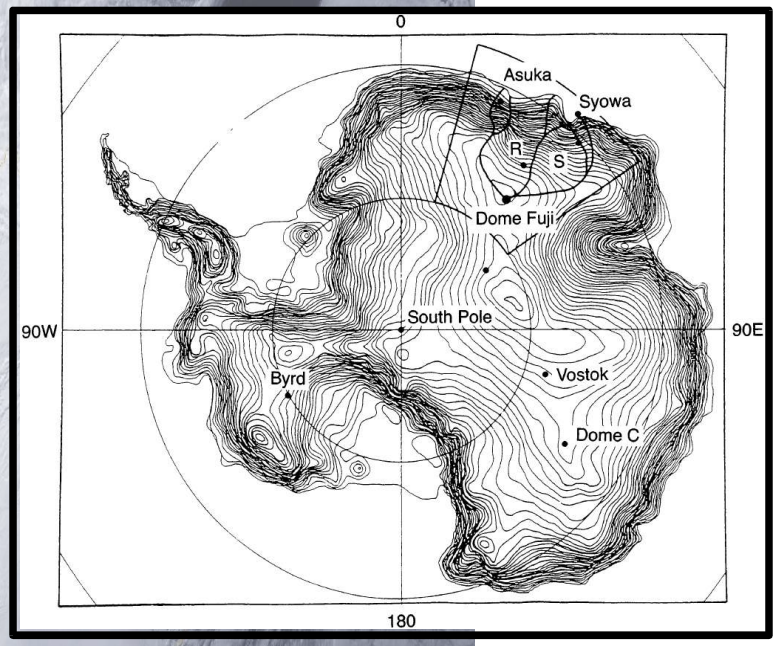


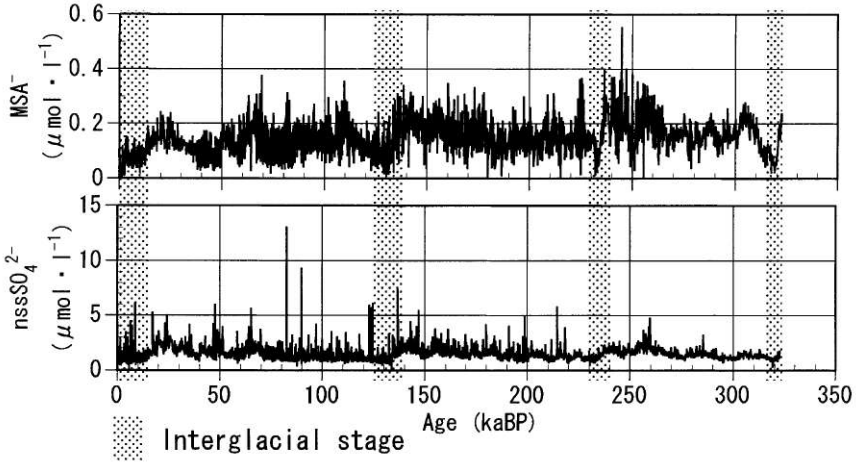
# 1. Introduction : l'Antarctique, terrain d'étude

## Les forages profonds

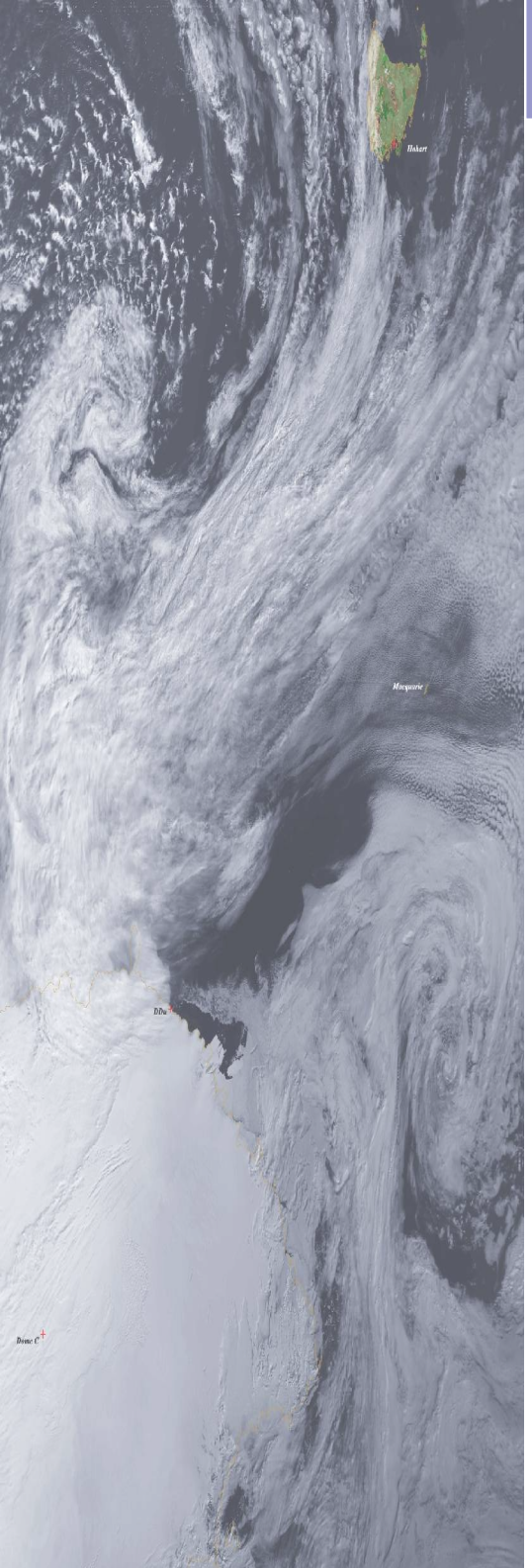



EPICA-Dome C : Profil de nss $SO_4^{2-}$ (Wolff et al., *Nature*, 2006)

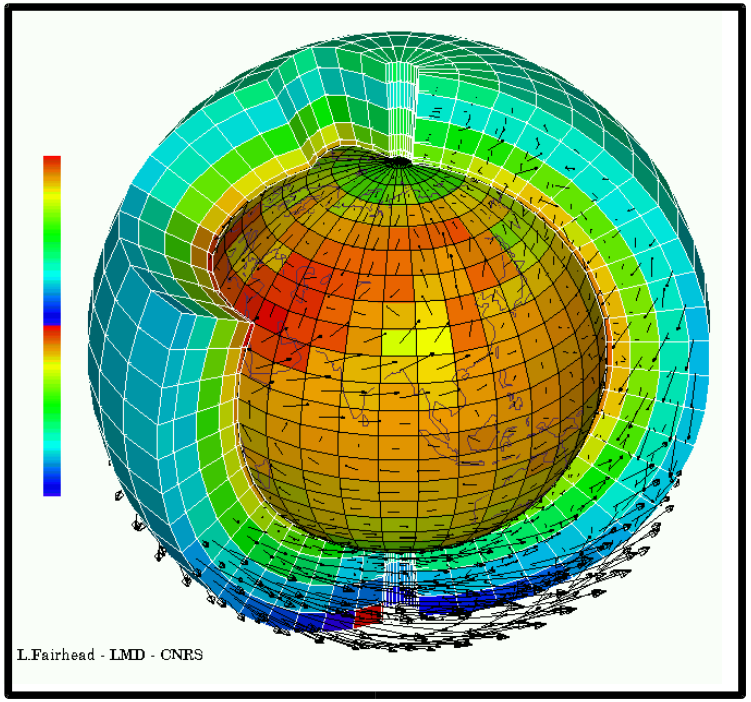



Dome F : Profil de MSA et nss $SO_4^{2-}$ (Watanabe, *MNIPR*, 2003)



# 1. Introduction : objectif de ce travail

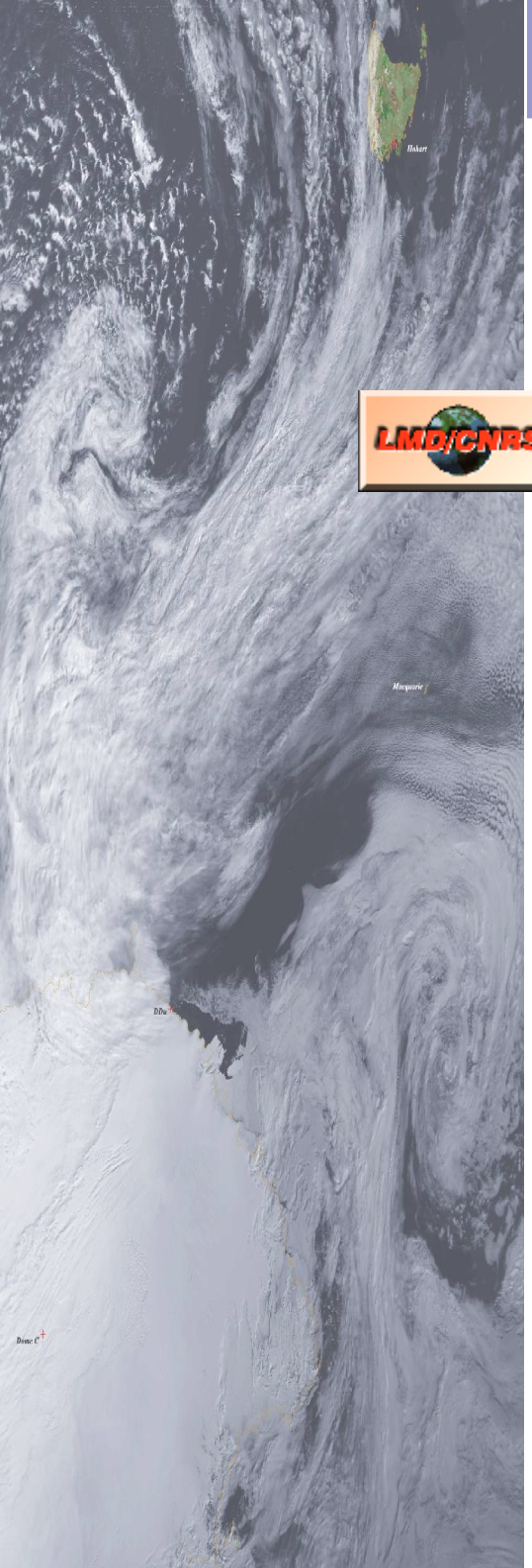



Maillage atmosphérique du modèle LMD-ZT

**Outil : la modélisation**

**Représentation du cycle du soufre :**

- émissions, chimie, transport, déposition des espèces soufrées
- deux climats connus : le présent, et le Dernier Maximum Glaciaire, il y a environ 20 000 ans



# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre

**Modèle de circulation générale atmosphérique couplé à un module de chimie du soufre, « LMD-ZT Soufre »**

- **LMD** : **L**aboratoire de **M**étéorologie **D**ynamique

- **Z** : **Z**oomé sur l'Antarctique (Krinner, *JGR*, 1997) :

  résolution d'environ 100 km

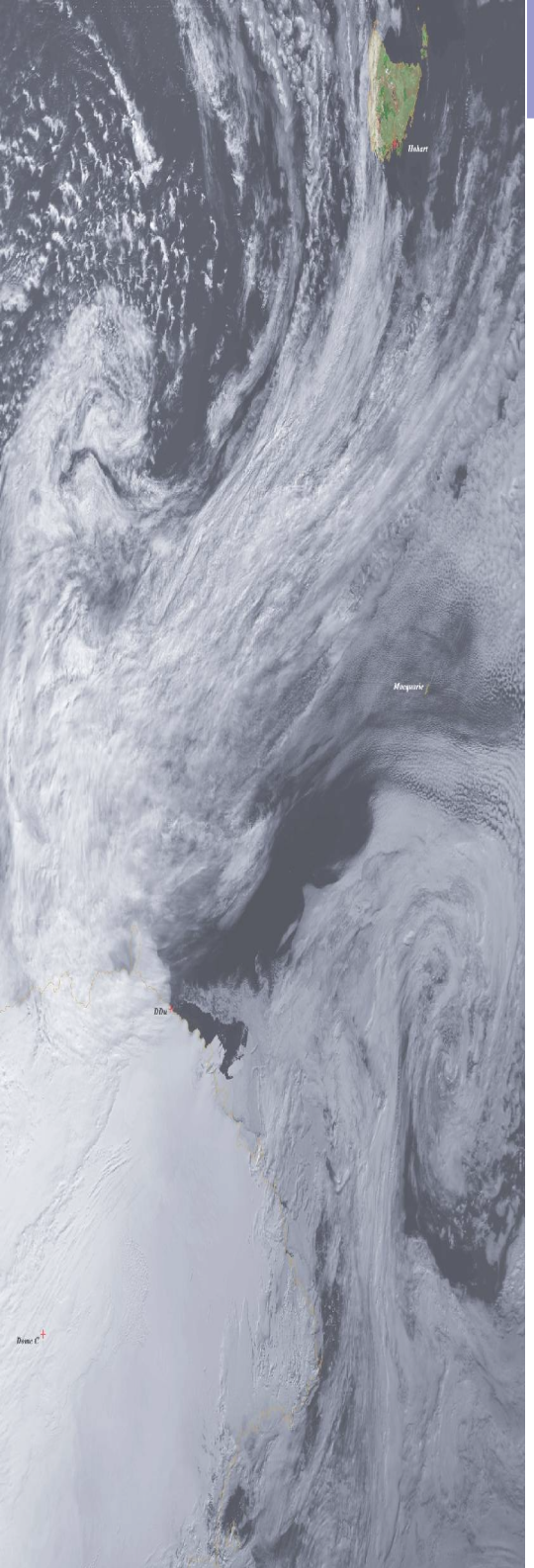
- **T** : **T**raceur

Un schéma de transport et de mélange de traceurs.

- **Module de chimie du soufre**

(Boucher et al., *Note Sc. IPSL,* 2002 ; Cosme et al., *JGR*, 2002)

avec oxydants imposés (OH, $NO_3$, $O_3$, $HO_2$, $H_2O_2$)




# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : son évolution

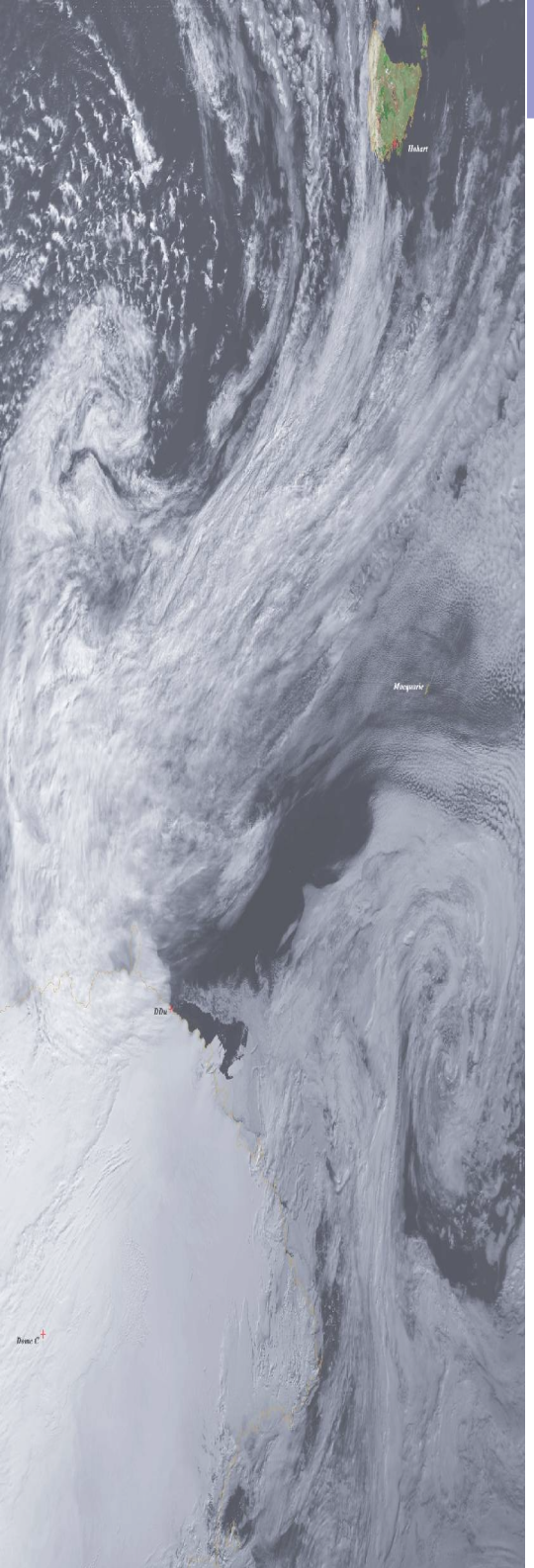
- Modèle LMD-ZT zoomé sur l'Antarctique et validé pour les climats présent et du Dernier Maximum Glaciaire

  (Genthon, *JGR*, 1994) et (Krinner et al., *Clim. Dyn*, 1998)

- Modèle LMD-ZT (version 3.3) couplé avec le module de chimie du soufre de Pham et al. (*JGR*, 1995) et validé :
  - à l'échelle globale (Boucher et al., Note Sc. *IPSL*, 2002)
  - aux moyennes et hautes latitudes Sud pour le climat actuel

    (Cosme et al., *JGR*, 2002)

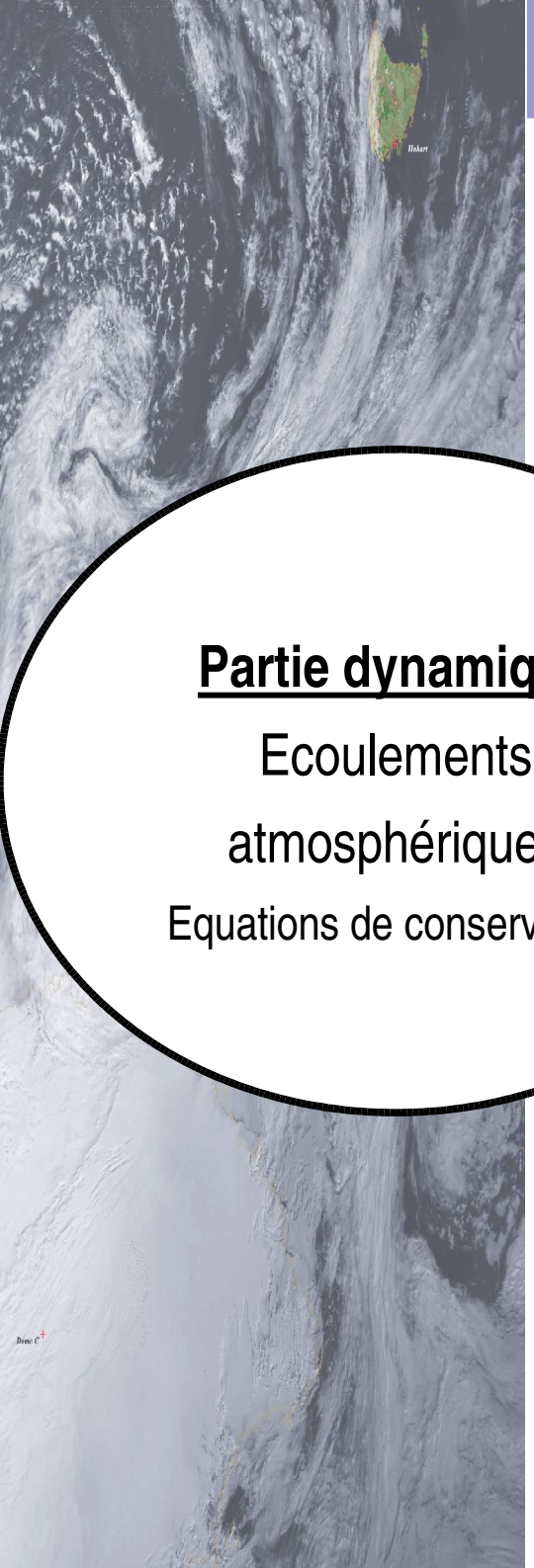
- Début de mon travail : version 4 du modèle LMD-ZT disponible




# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : description

## De quoi se compose ce modèle de circulation générale atmosphérique?

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : description



## De quoi se compose ce modèle de circulation générale atmosphérique?

**<u>Partie dynamique</u>**

Ecoulements atmosphériques

Equations de conservation

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : description

## De quoi se compose ce modèle de circulation générale atmosphérique?

**Partie dynamique**

Ecoulements atmosphériques

Equations de conservation

**Partie physique**

Processus paramétrisés :

- processus de surface et de couche limite
- convection
- condensation à grande échelle
- transfert radiatif

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : description

## De quoi se compose ce modèle de circulation générale atmosphérique?

**Partie dynamique**

Ecoulements atmosphériques

Equations de conservation

**Partie physique**

Processus paramétrisés :

- processus de surface de couche limite
- convection
- condensation à grande échelle
- transfert radiatif

**Module de chimie du soufre**

- émissions
- schéma d'oxydation
- lessivage et dépôt sec
- oxydants imposés

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : description

## De quoi se compose ce modèle de circulation générale atmosphérique?

**Partie dynamique**

Ecoulements atmosphériques

Equations de conservation :

- quantité de mouvement
- masse
- chaleur
- humidité

**Partie physique**

Processus paramétrisés :

-transfert radiatif
- processus de surface
de couche limite
- convection
- condensation à
échel

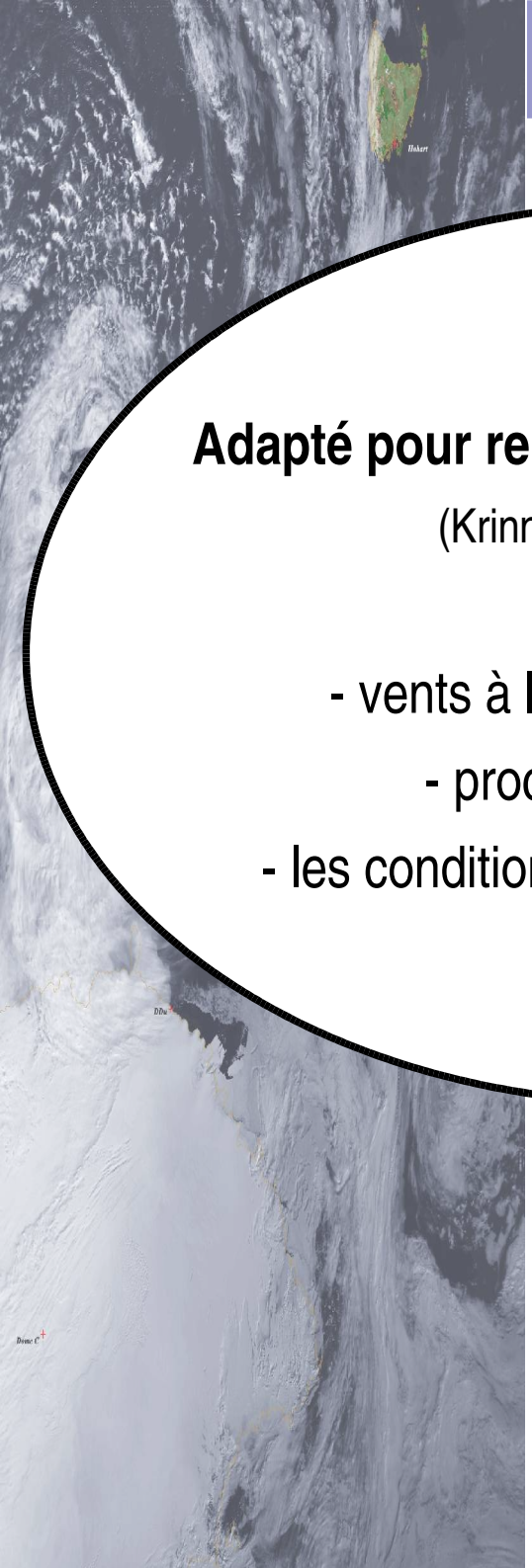
**Module de chimie du soufre**

- émissions
- schéma d'oxydation
- lessivage et dépôt sec

**Transport de traceurs**

- transport advectif
- transport convectif
- mélange turbulent

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : adaptation

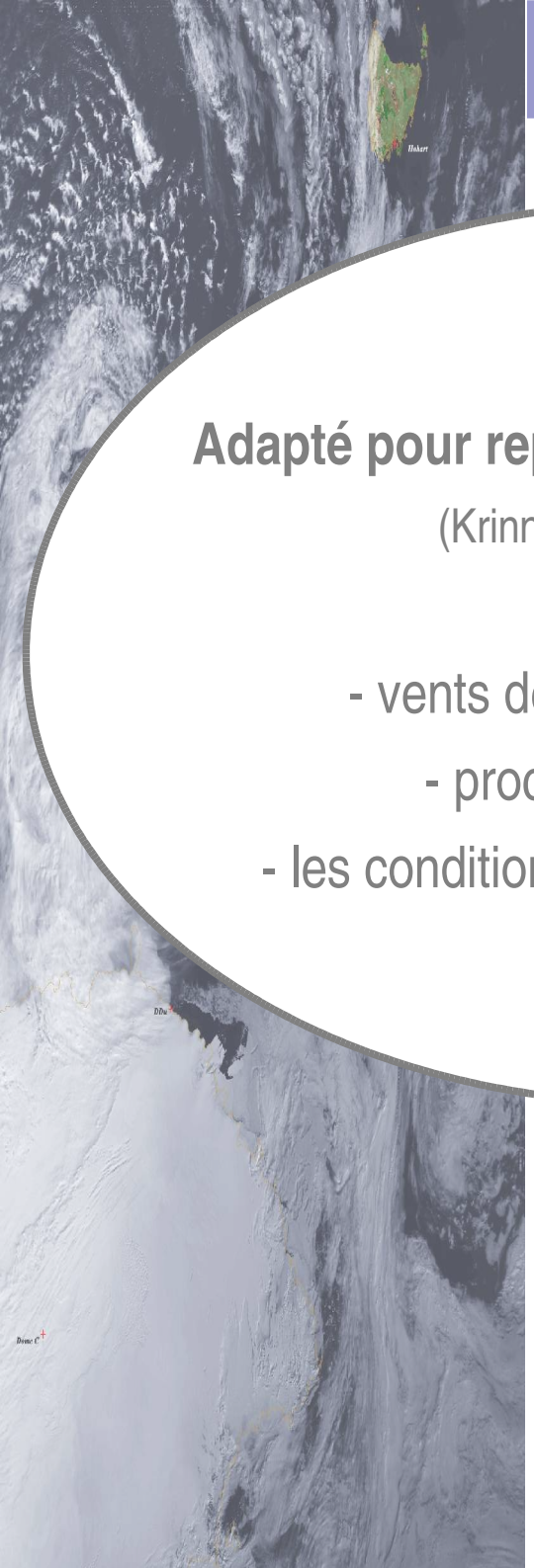


**Adapté pour représenter un climat polaire**

(Krinner et al., *JGR*, 1997)

- zoom
- vents à la surface de la calotte
- processus de surface
- les conditions de surface des océans

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : adaptation



**Adapté pour représenter un climat polaire**

(Krinner et al., *JGR*, 1997)

- zoom
- vents de surfacede la calotte
- processus de surface
- les conditions de surface des océans

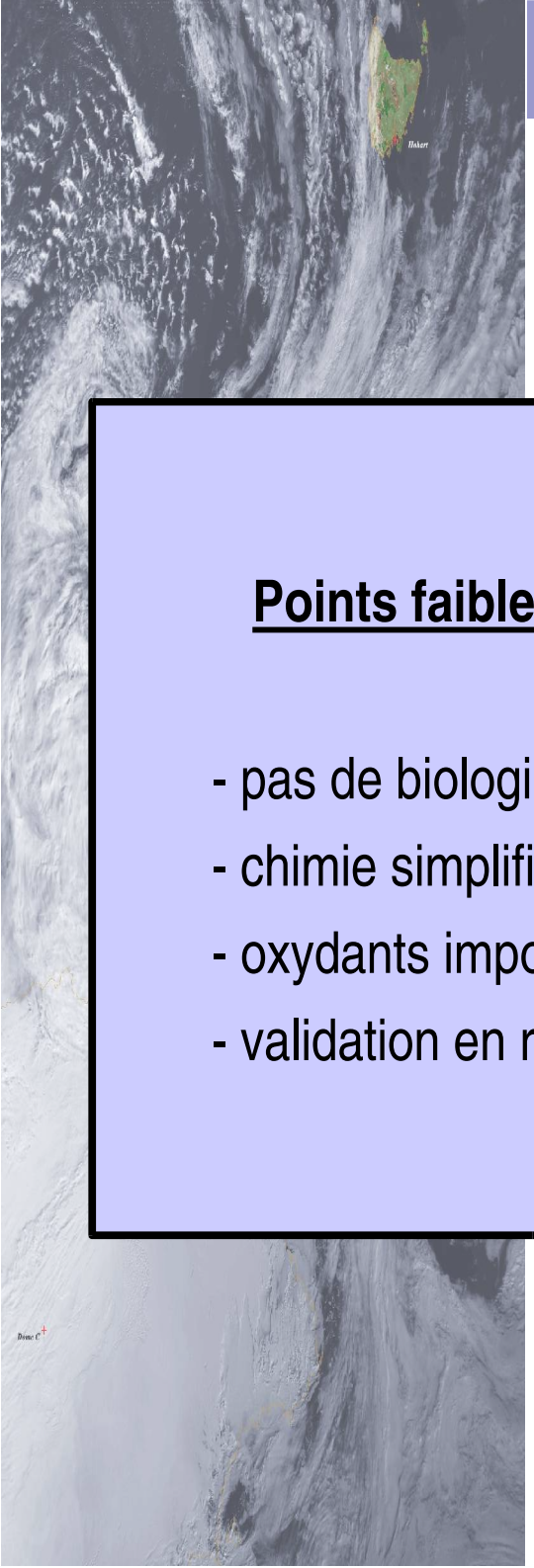
Paleoclimate Modelling Intercomparison Project

PMIP

**Adapté pour représenter le Dernier Maximum Glaciaire**

(CLIMAP, 1981) recommandé par PMIP (Joussaume et Taylor, 1995)

# 2. Le modèle LMD-ZT Soufre : bilan



**Points faibles du modèle**

- pas de biologie marine
- chimie simplifiée
- oxydants imposés
- validation en régions côtières

**Points forts du modèle**

- 3D
- zoom
- adapté à l'Antarctique
- outil validé
  - ✓ Climat du DMG
  - ✓ Soufre pour le climat actuel

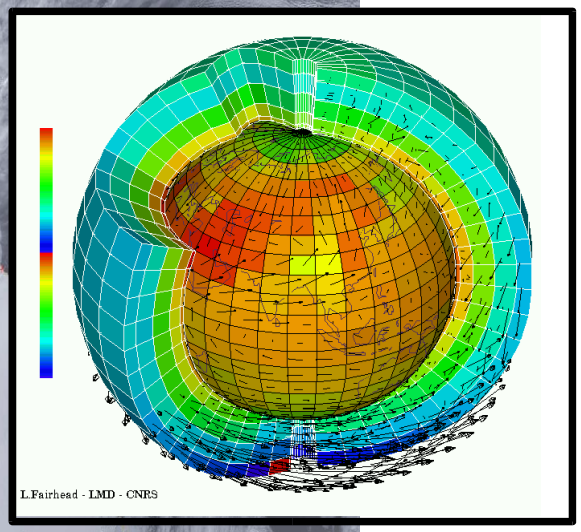
# 3. La mise à jour du modèle

**3.1** La nouvelle version LMD-ZT 4

**3.2** La mise à jour du schéma chimique

**3.3** La modification des processus de dépôt

**3.3** Validation




*validation*

# 3.1 La mise à jour du modèle : la version 4 de LMD-ZT

## Passage de la version 3.3 à la version 4

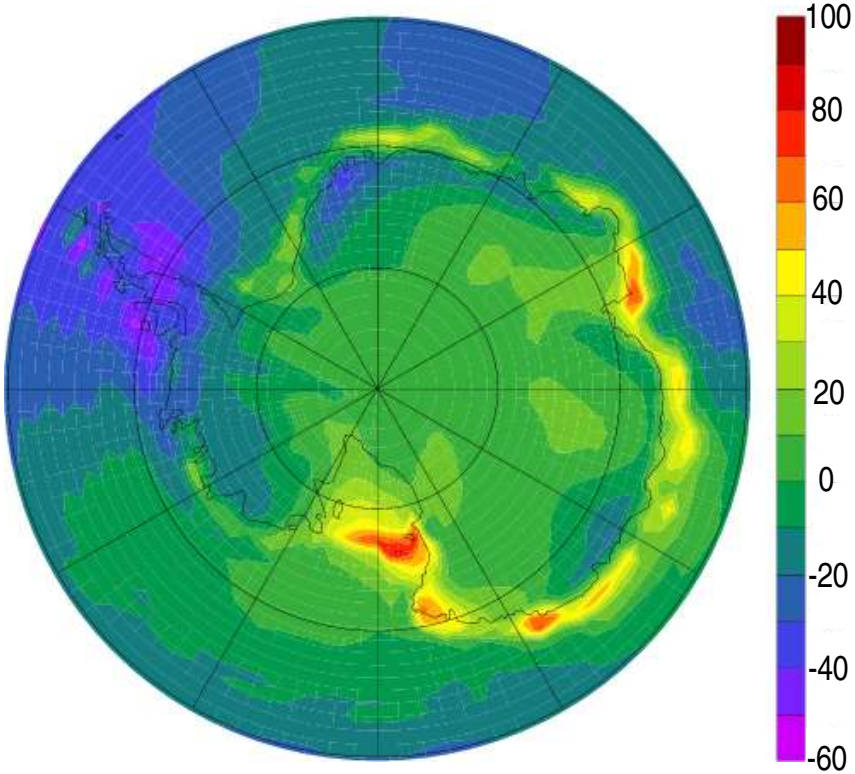
- **Nouvelles conditions de surface des océans** :
  - température de surface ↗ 1K
  - couverture de glace de mer ↘ 2% (été) et 5% (hiver)

- **Impact sur les vents de surface**

$V_{10m}$ ↗ au-dessus du continent et régions côtières

$V_{10m}$ ↘ au-dessus de l'océan Austral

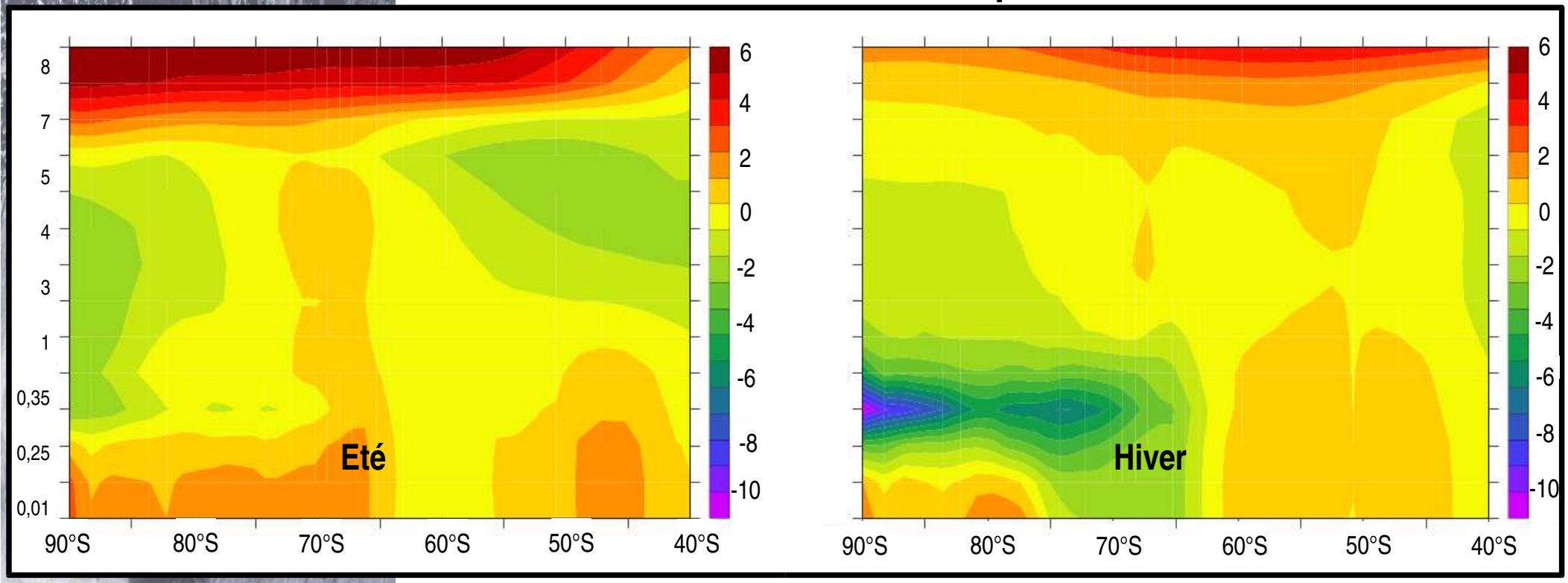
Entre 60 et 90°Sud, réduction de ~20% des flux océan-atmosphère de DMS




Changements du DMS en surface (%)

# 3.1 La mise à jour du modèle : la version 4 de LMD-ZT

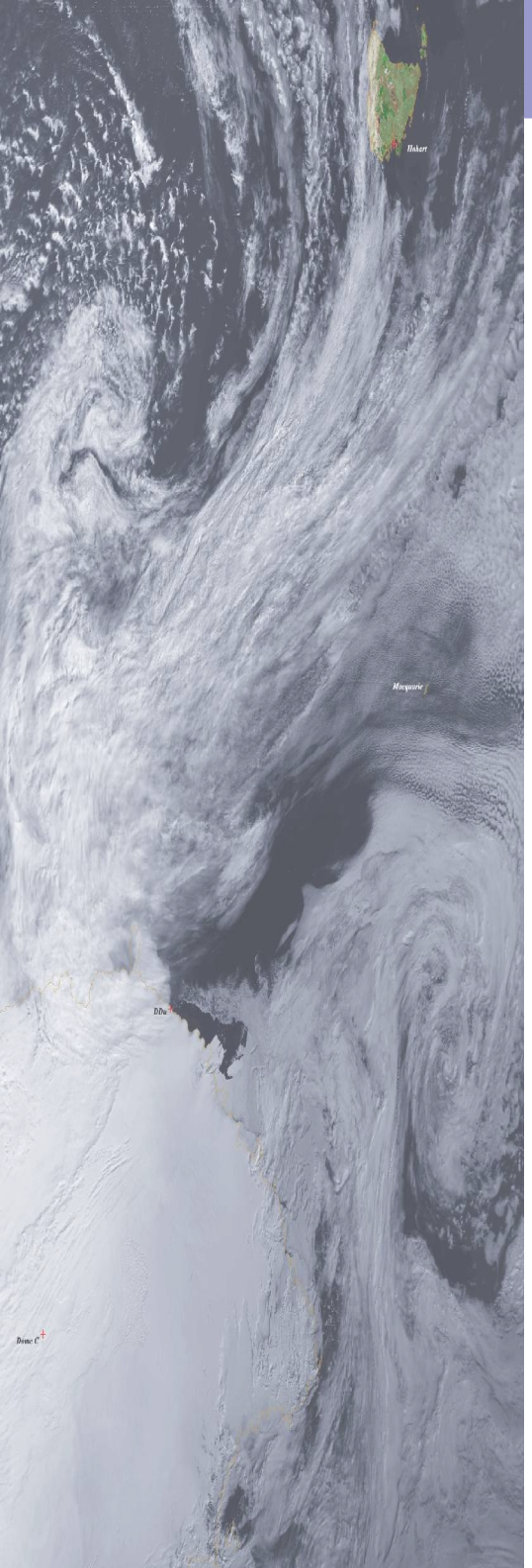
## Différences entre la température des versions 4 et 3.3




Réduction de la vitesse d'oxydation du DMS de 20% en été et de 12% en hiver

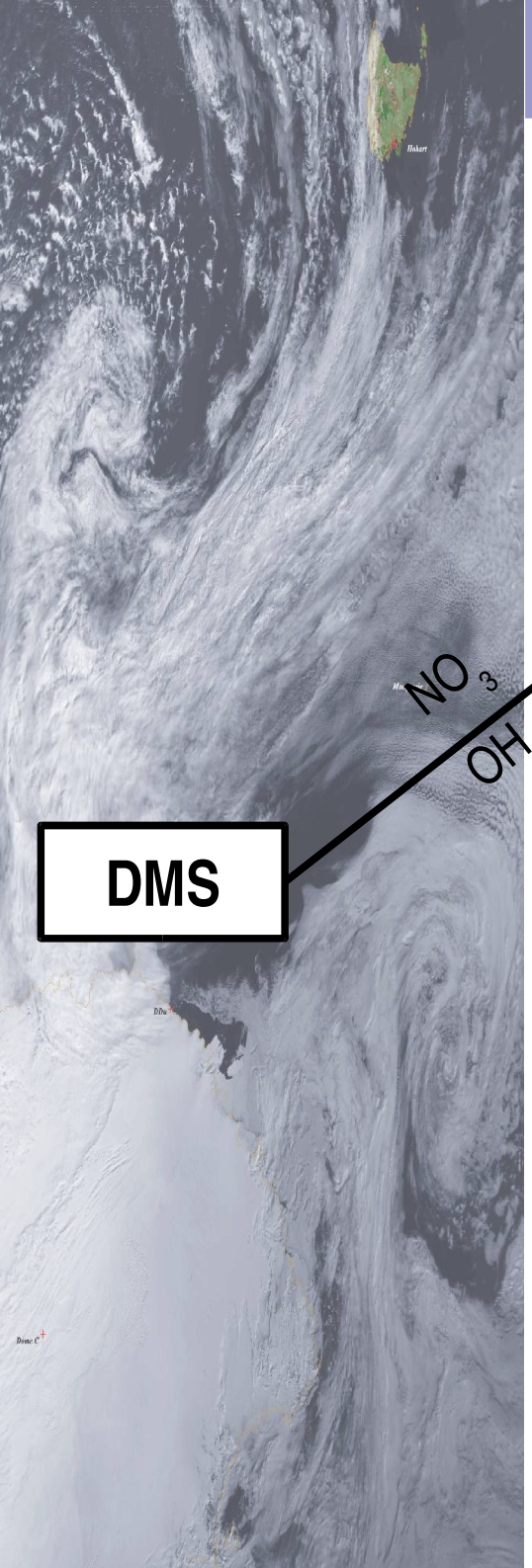
... mais effet insuffisant pour compenser les flux de DMS réduits :

↘ [DMS] pour la version 4 de 17%



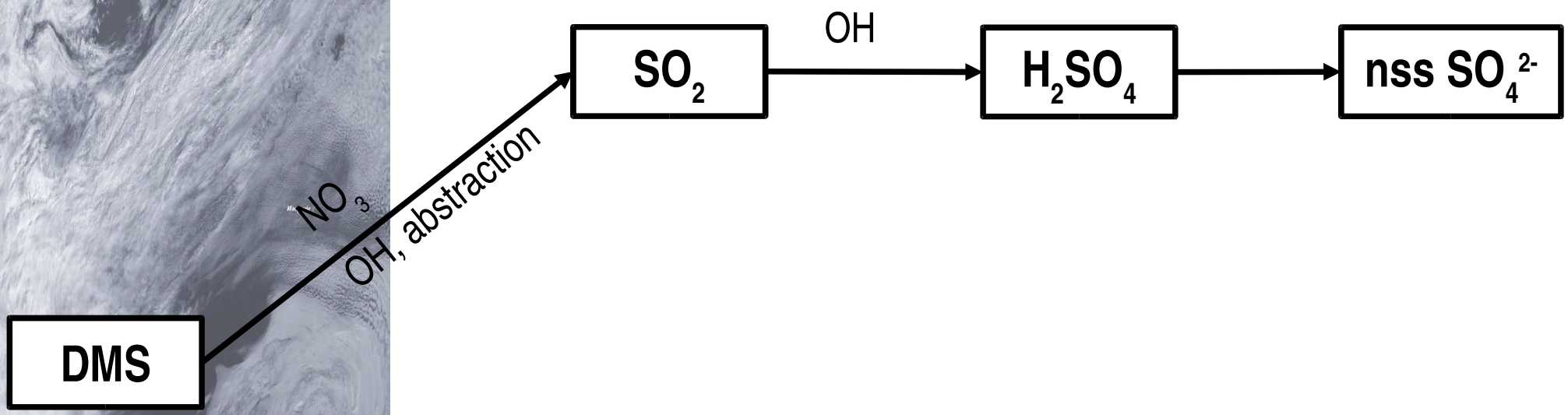

# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## La chimie du DMS : description

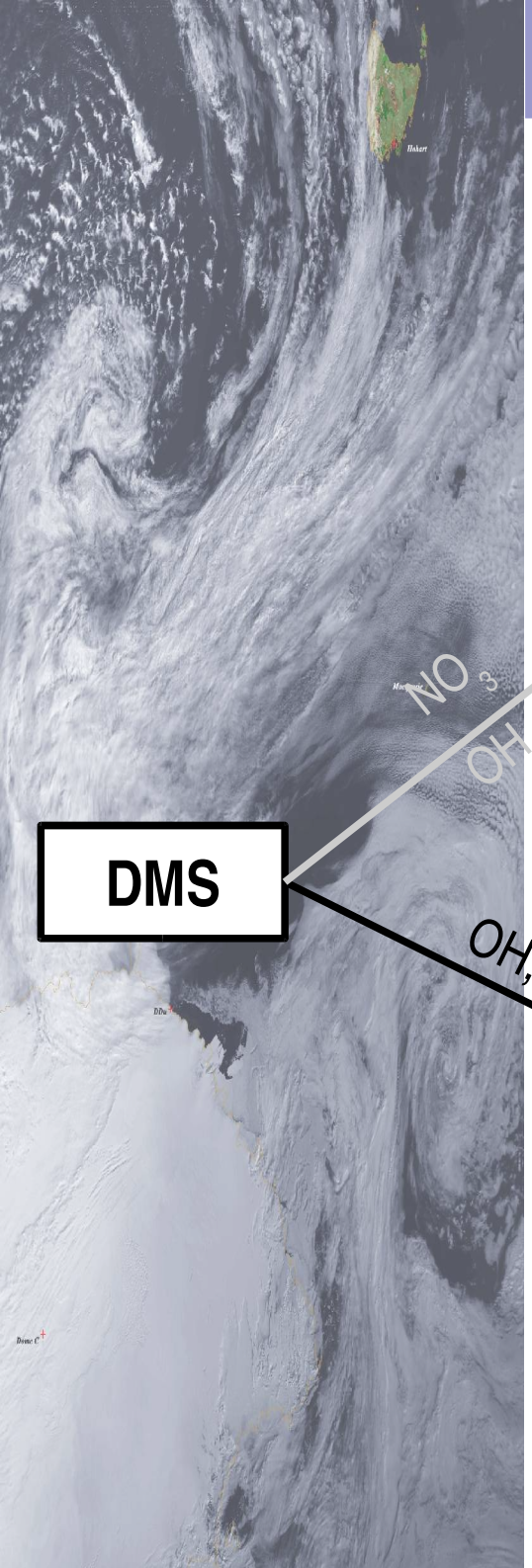


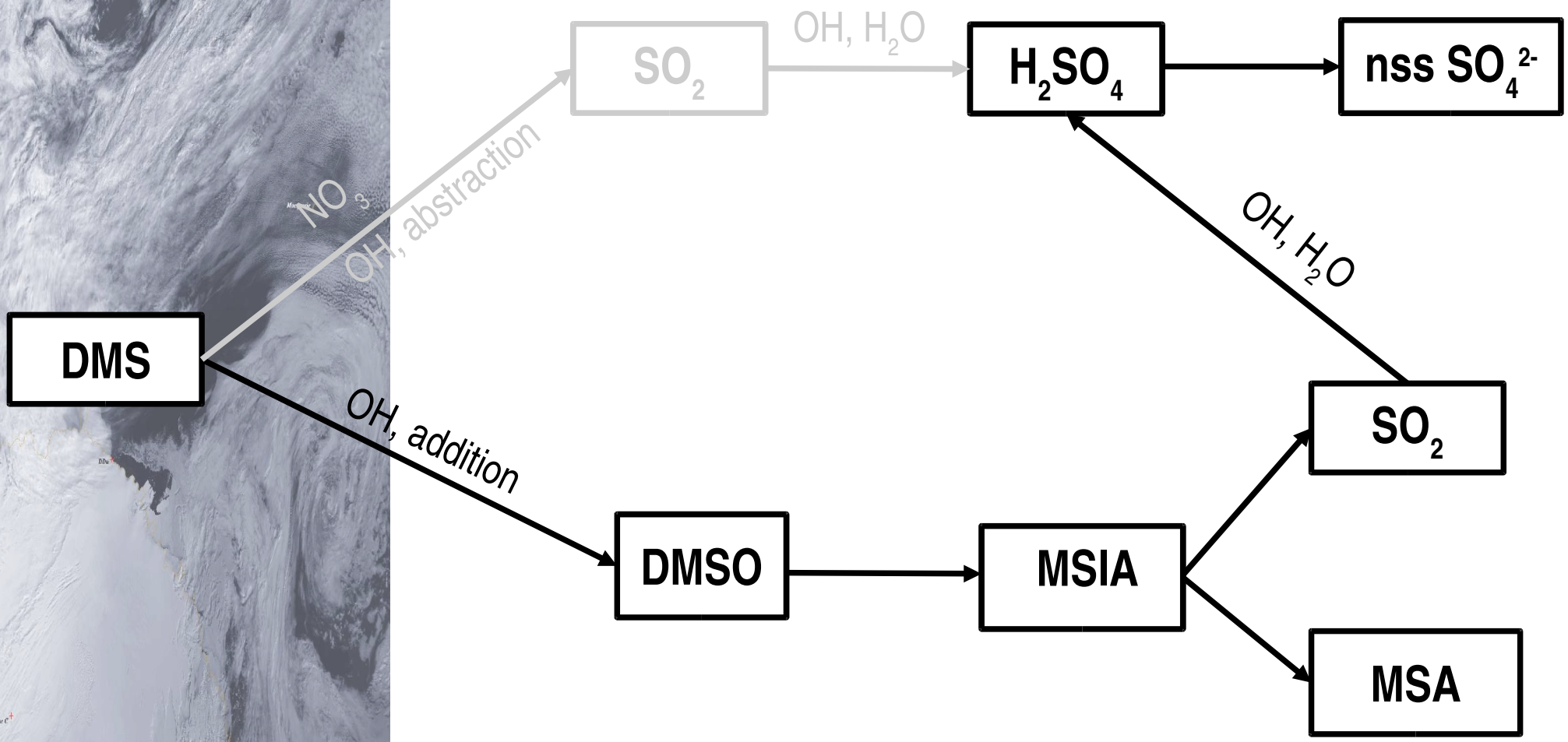
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## La chimie du DMS : description

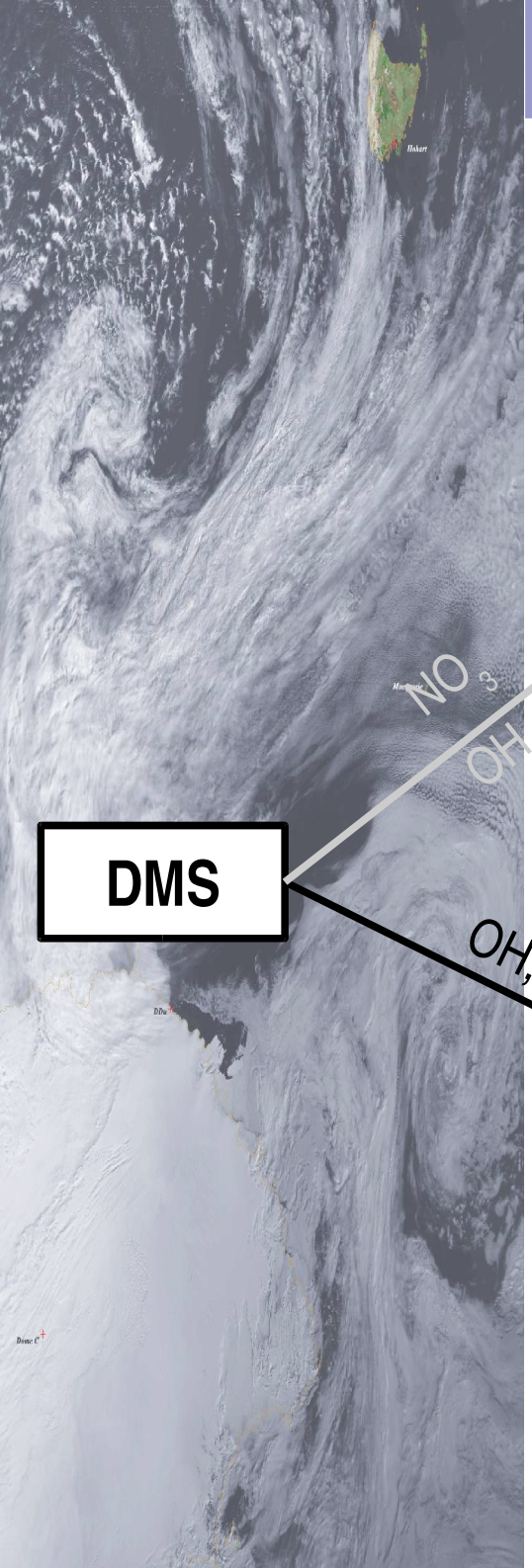


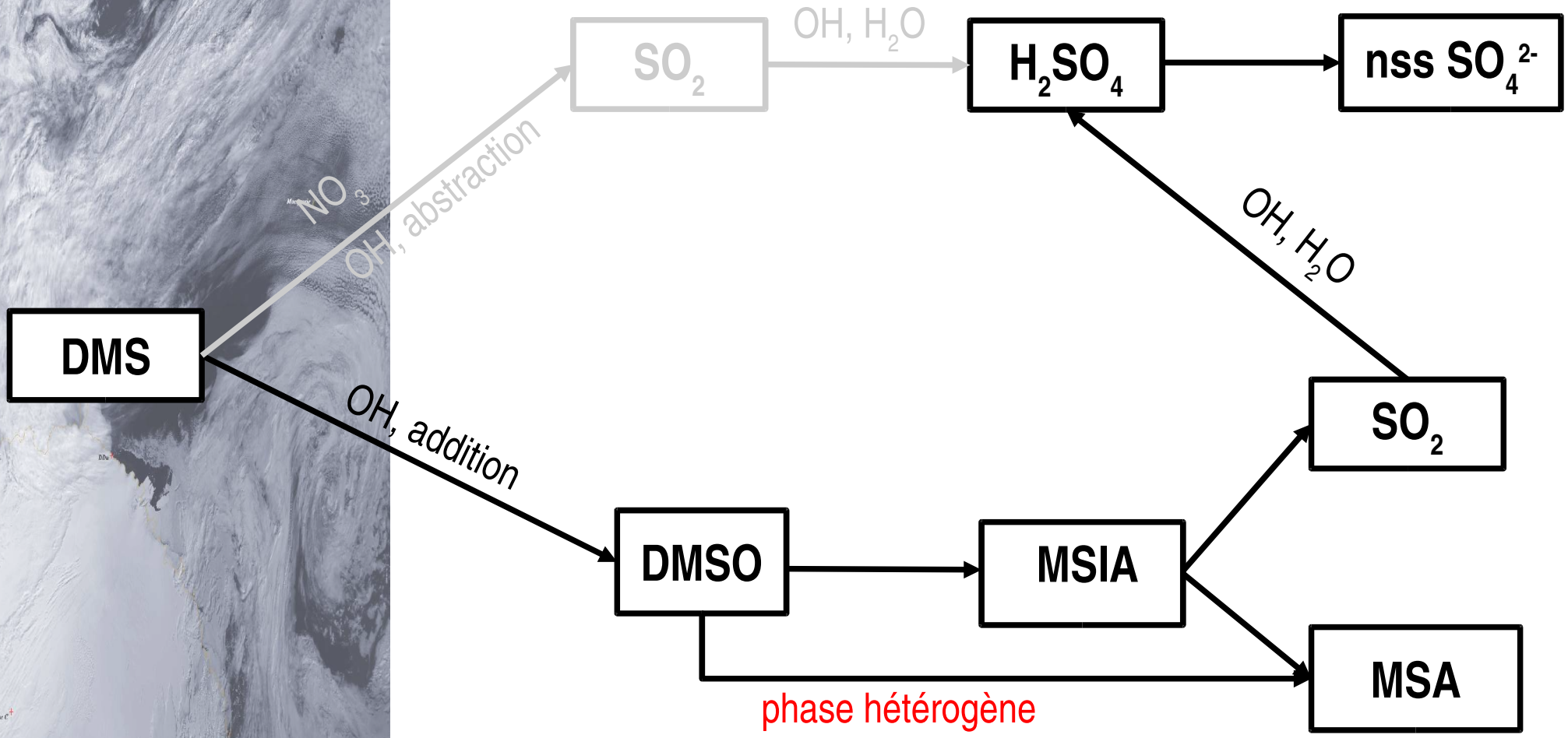
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique



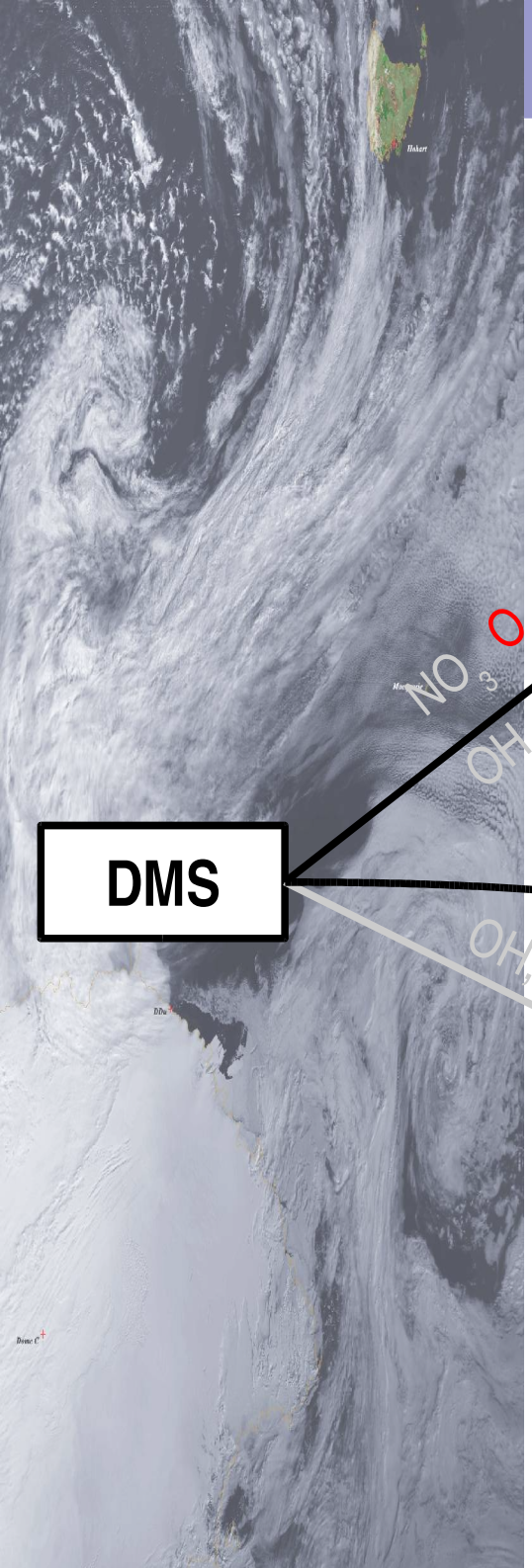


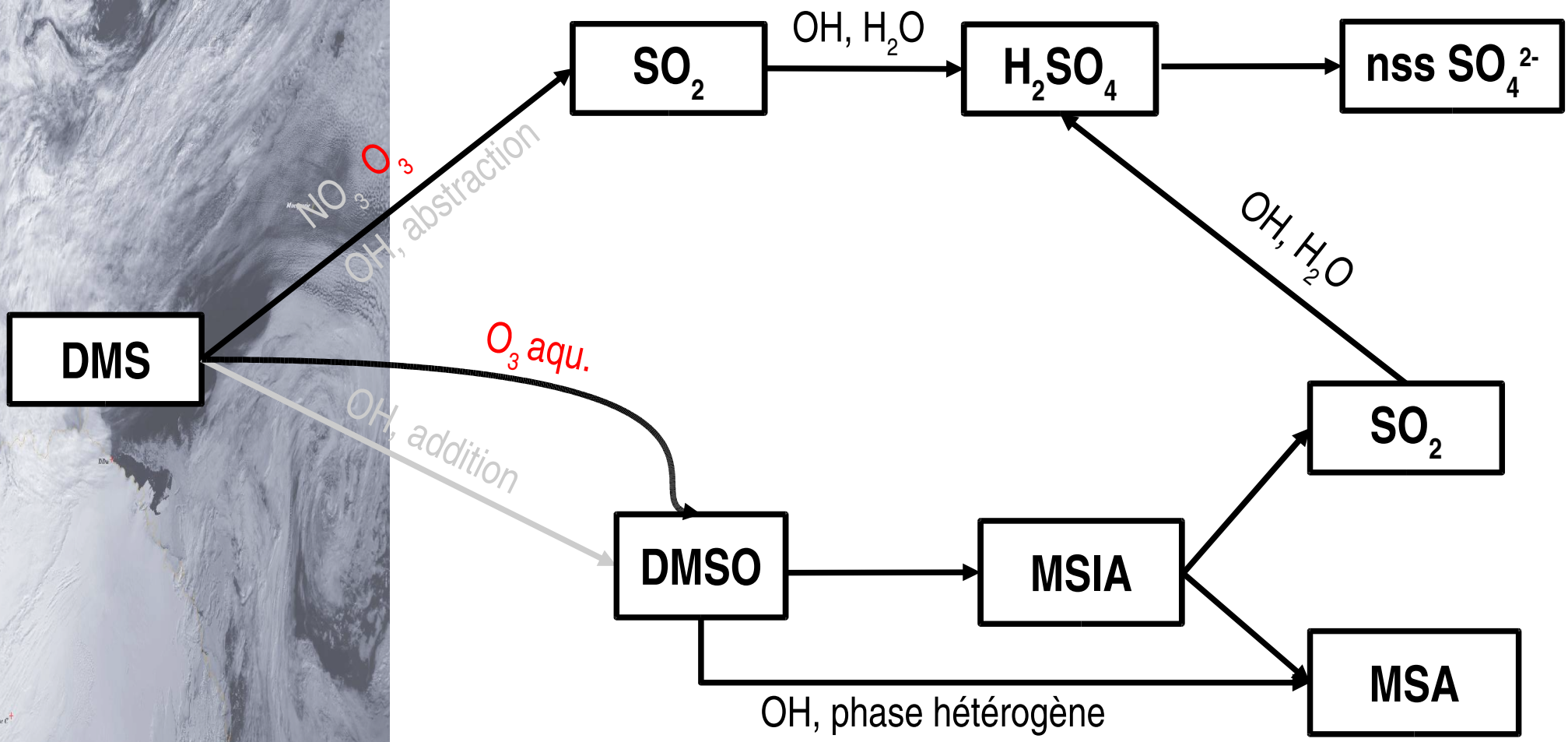
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique



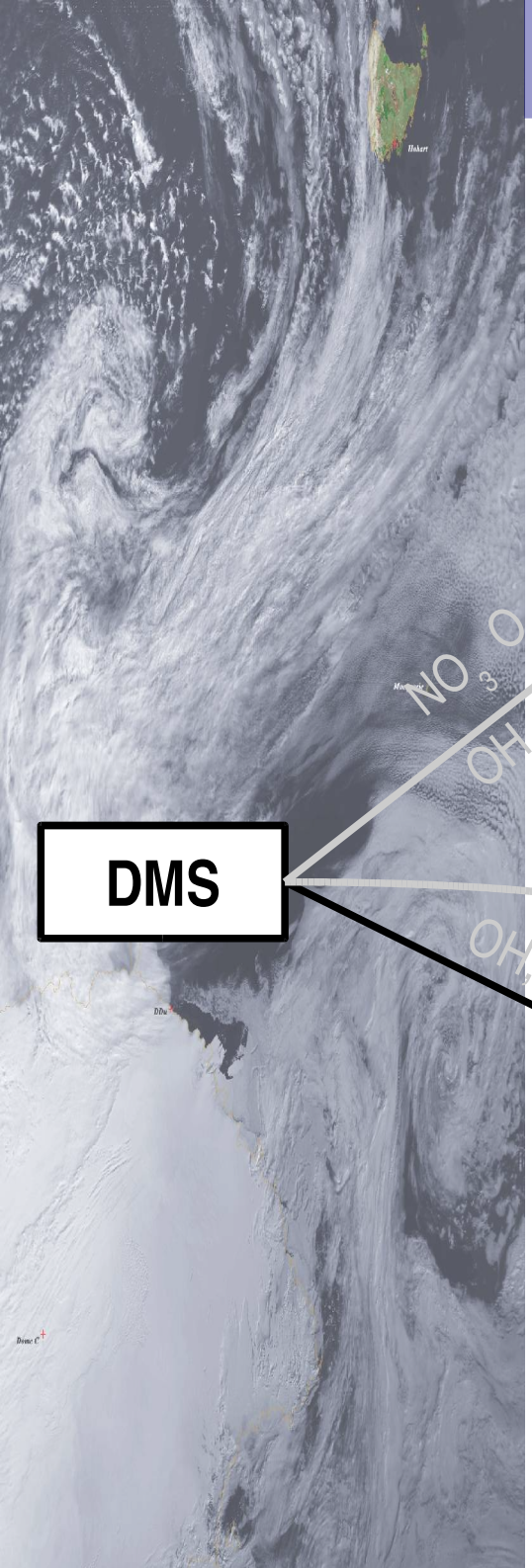


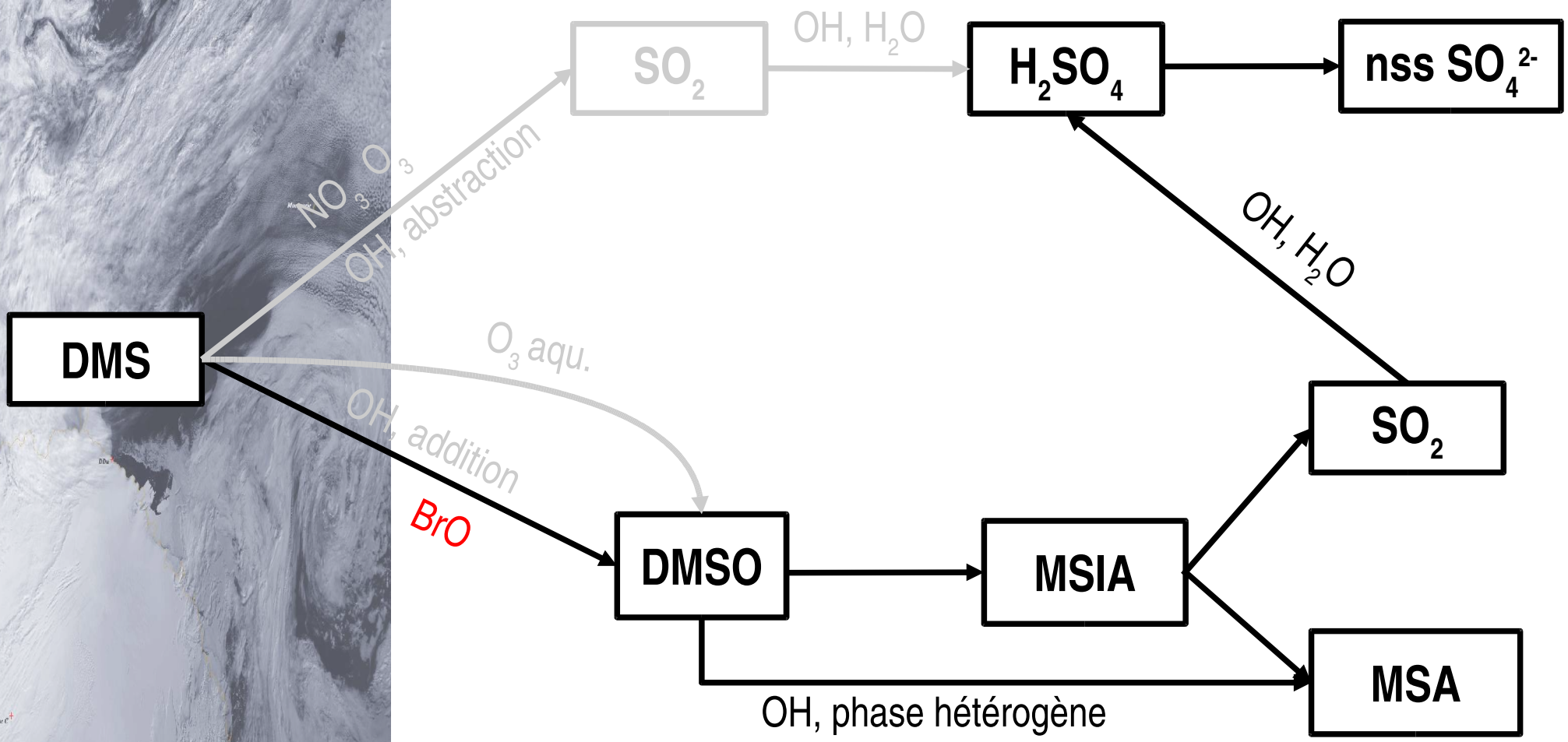
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique





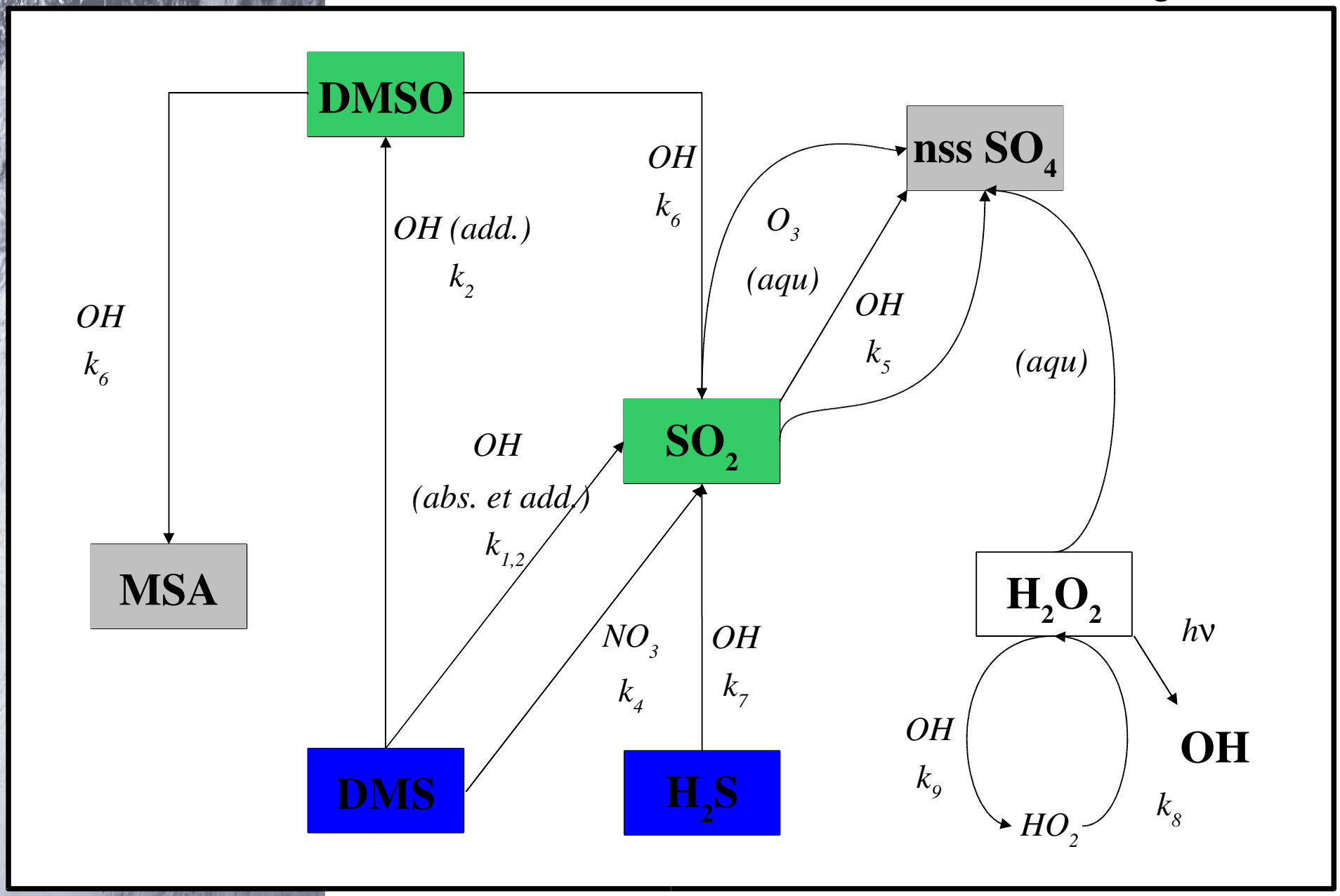
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique





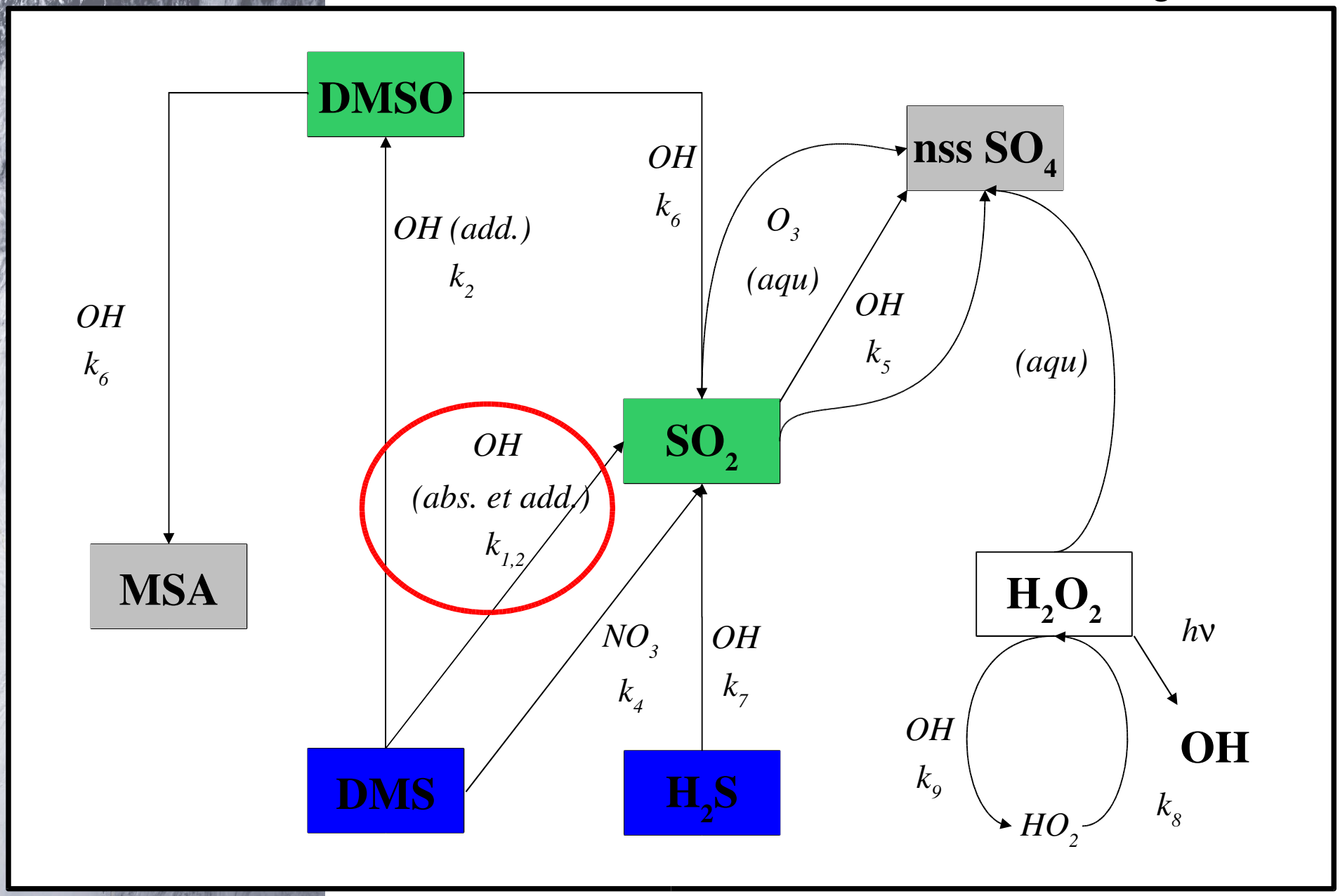
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## Le module de chimie du soufre « original »



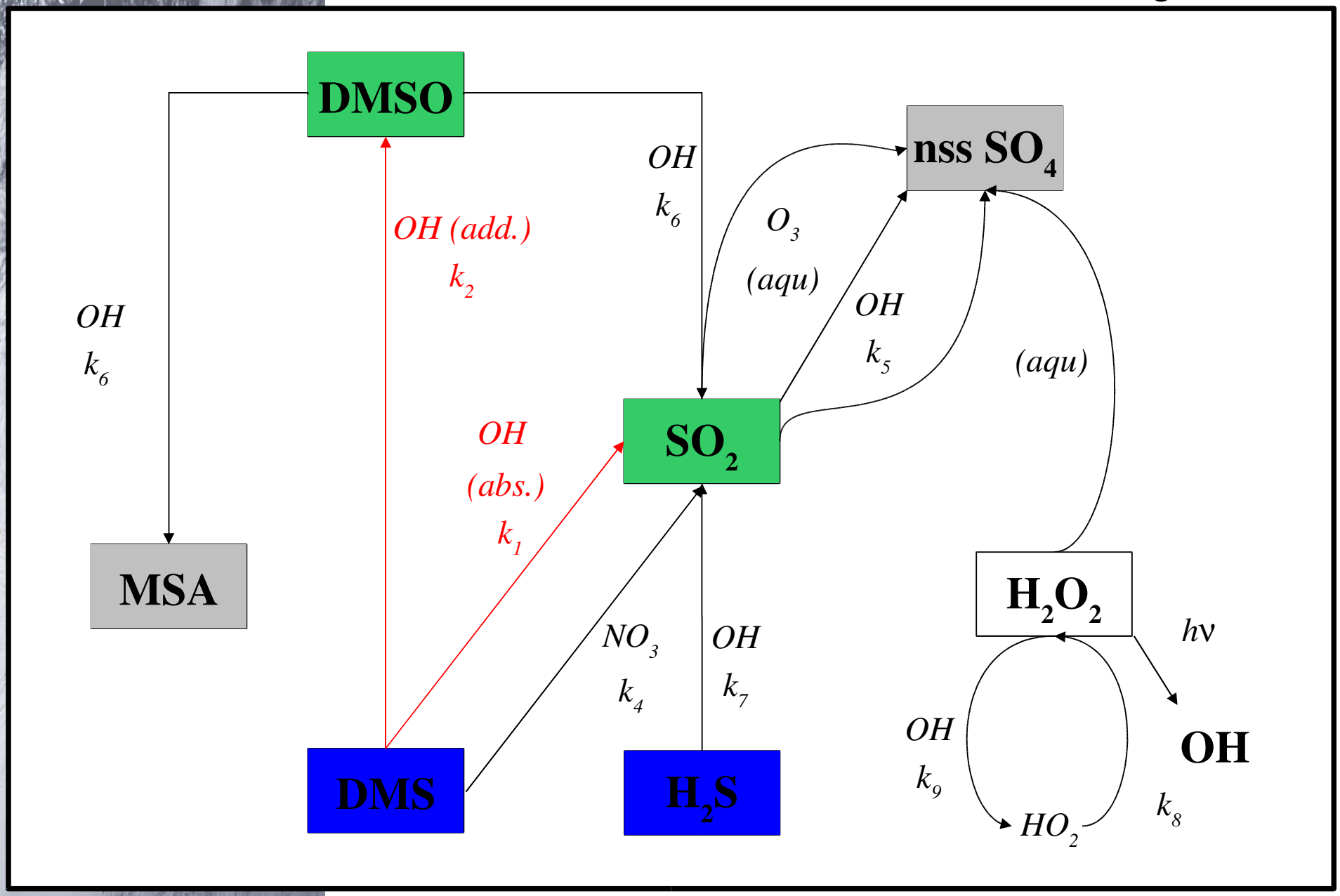
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## Le module de chimie du soufre « original »



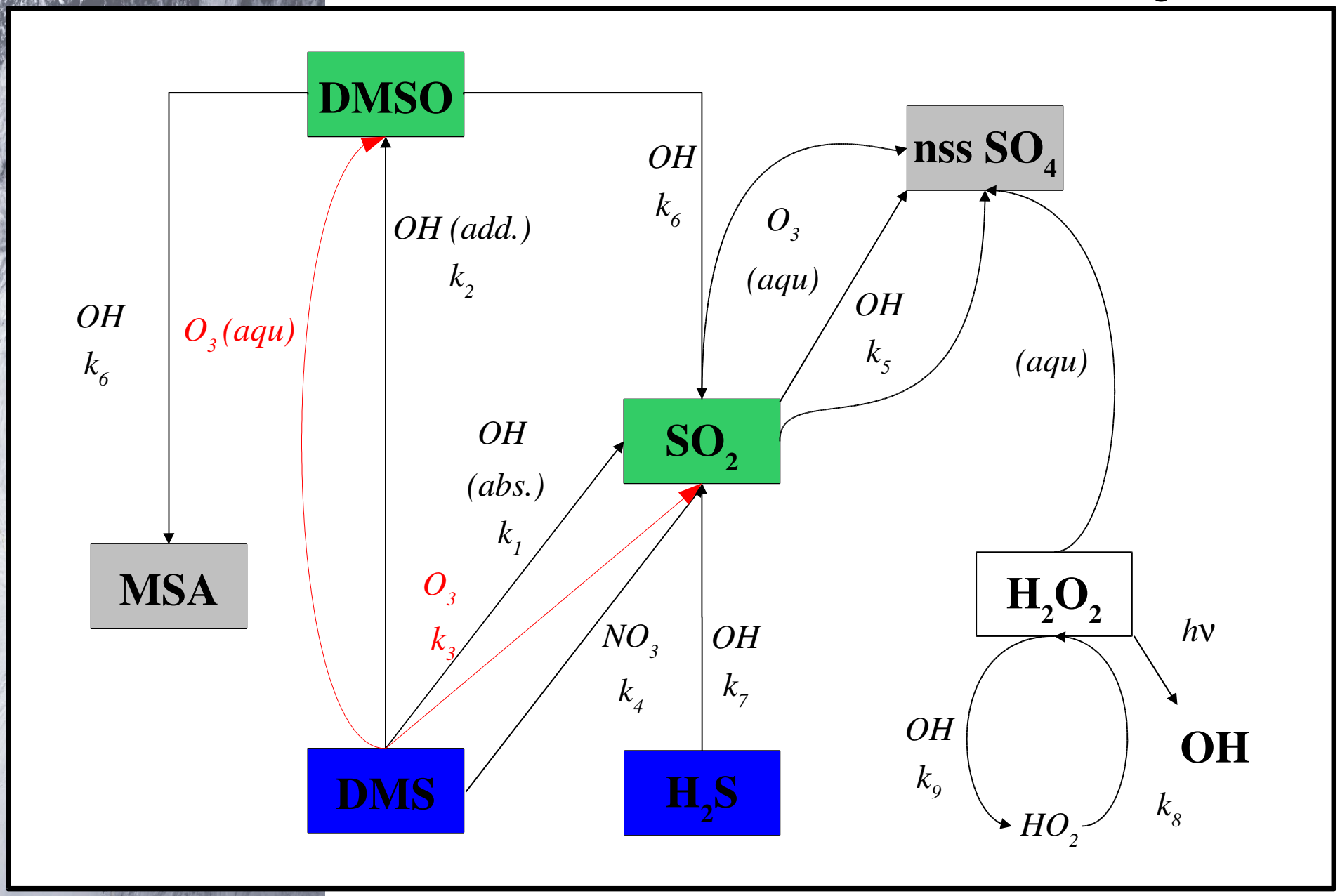
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## Le module de chimie du soufre « original »



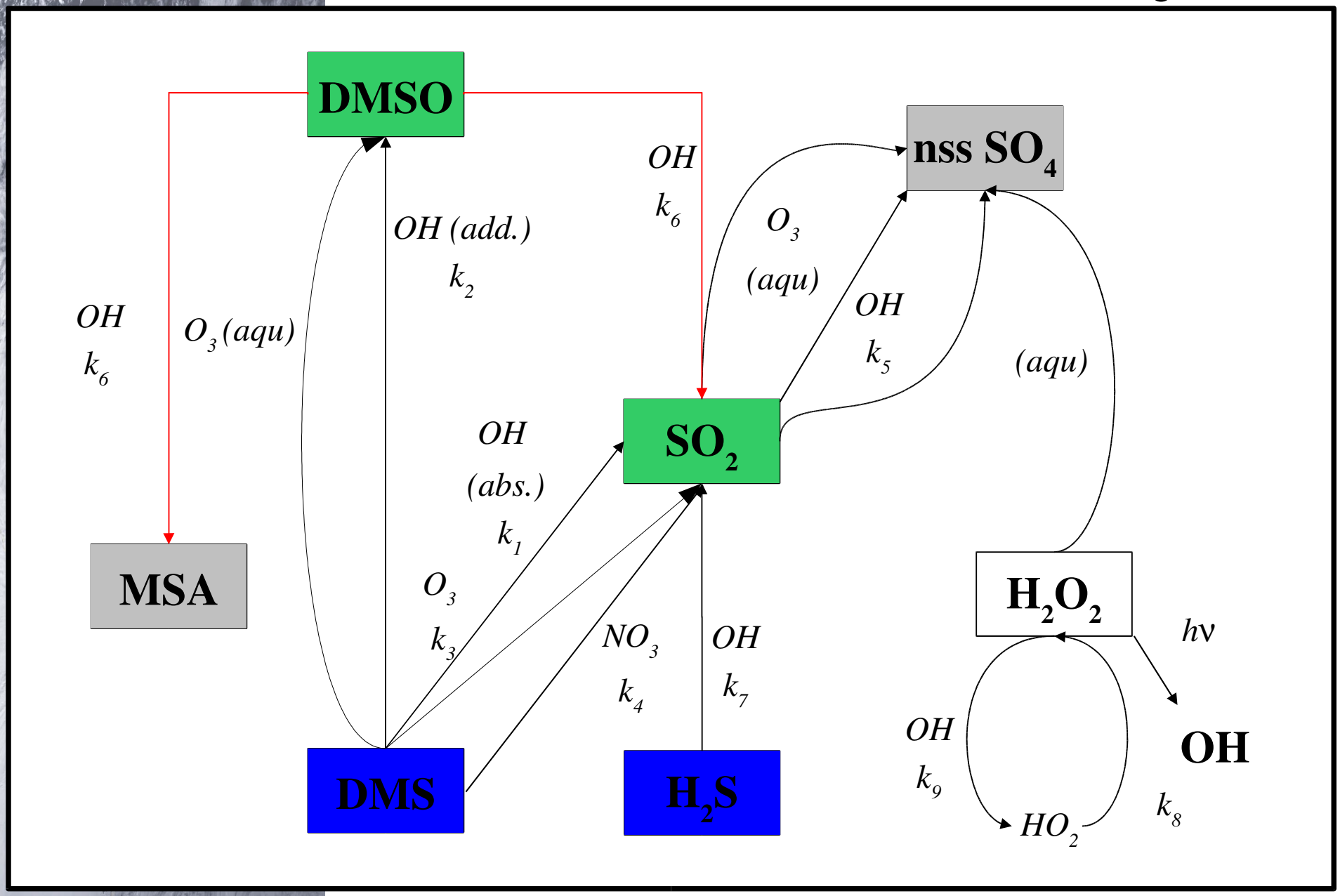
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## Le module de chimie du soufre « original »



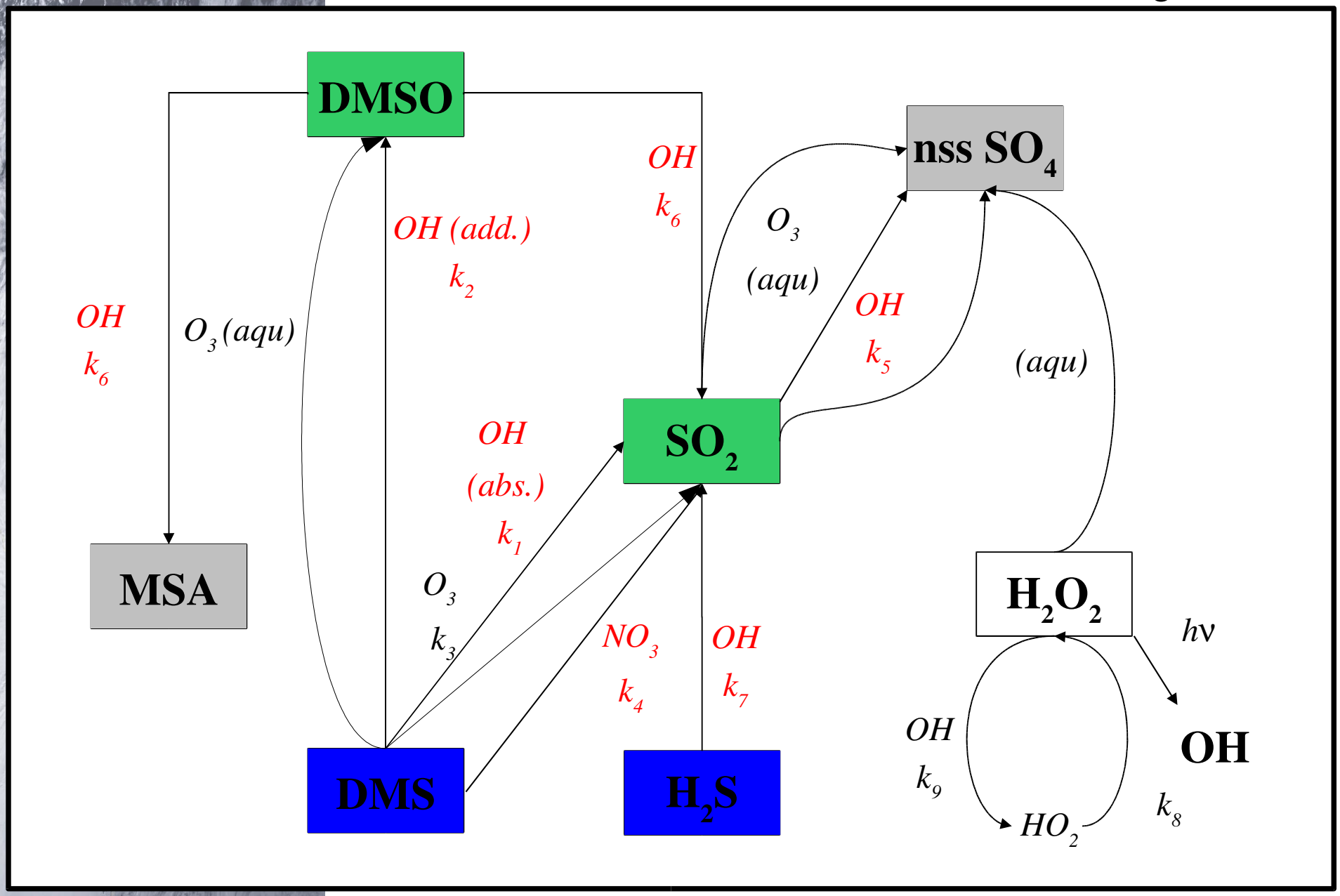
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## Le module de chimie du soufre « original »



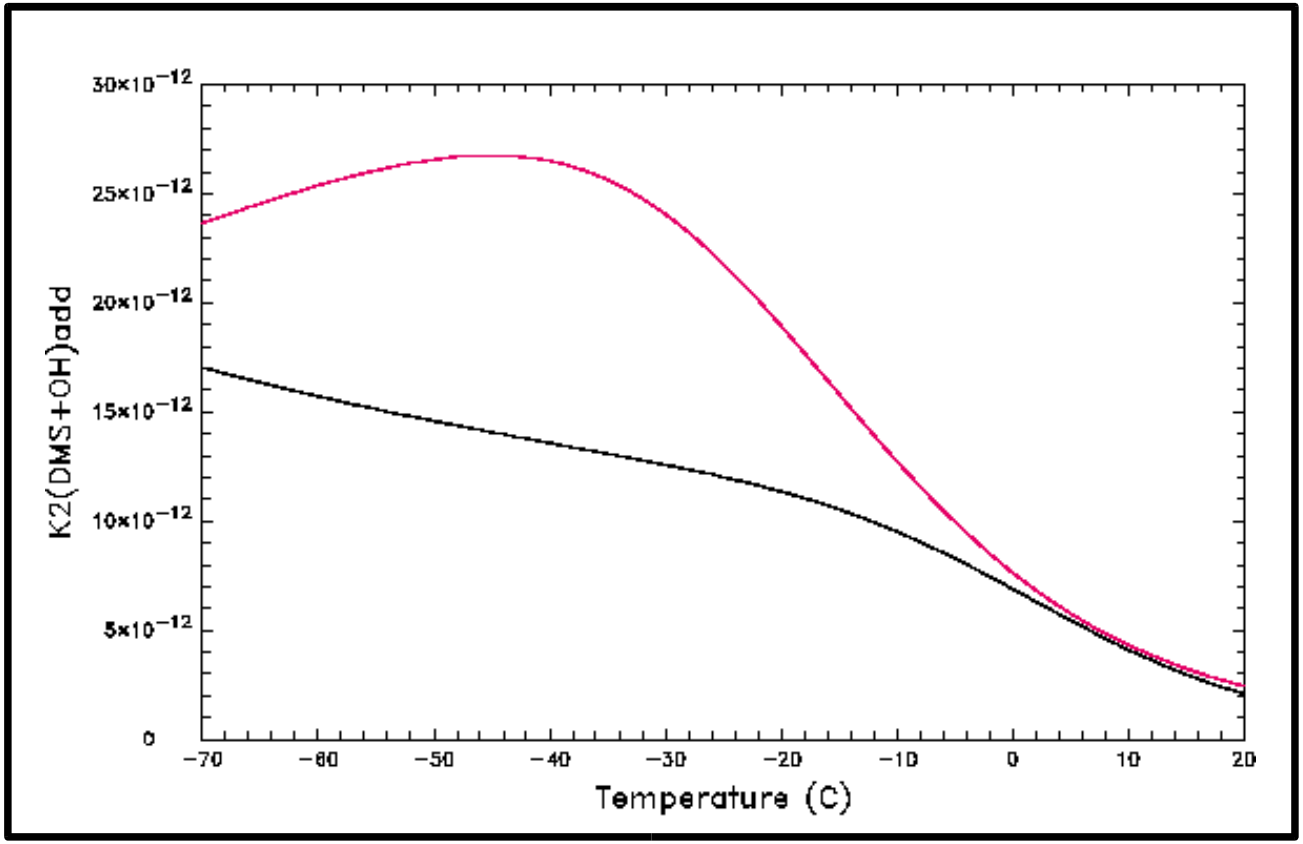
# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

## Le module de chimie du soufre « original »



# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

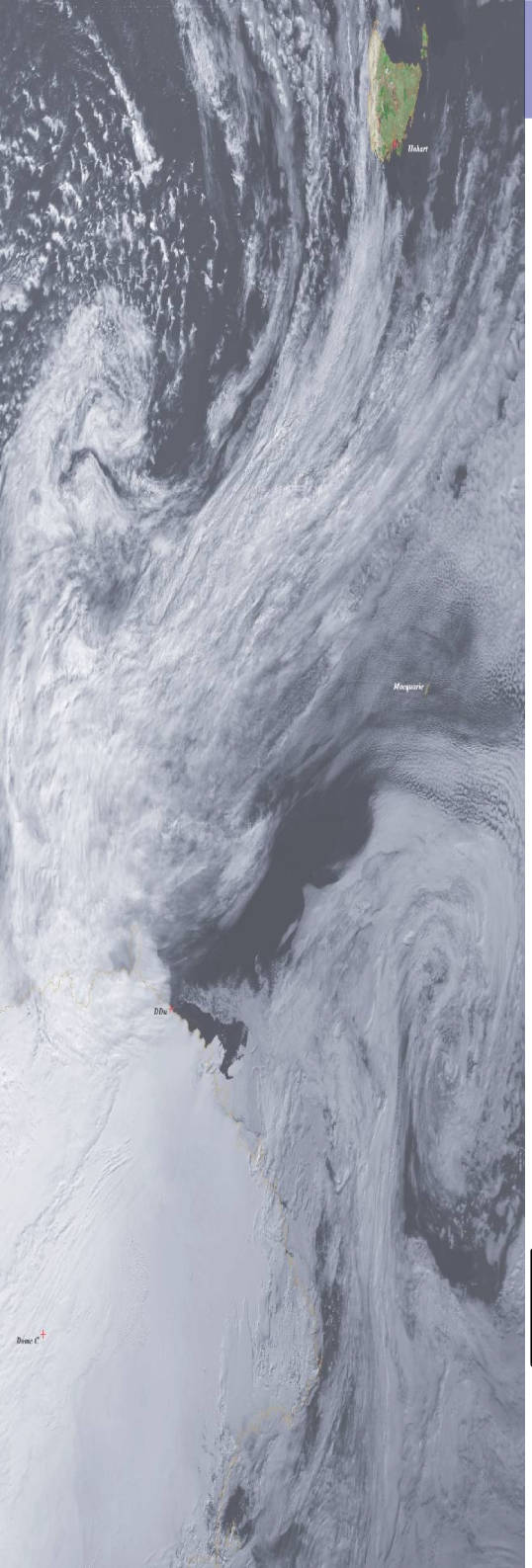
(Arsene, *PCCP*, 1999) et (Atkinson et al., *IUPAC*, 2006)




DMS+OH par voie d'addition

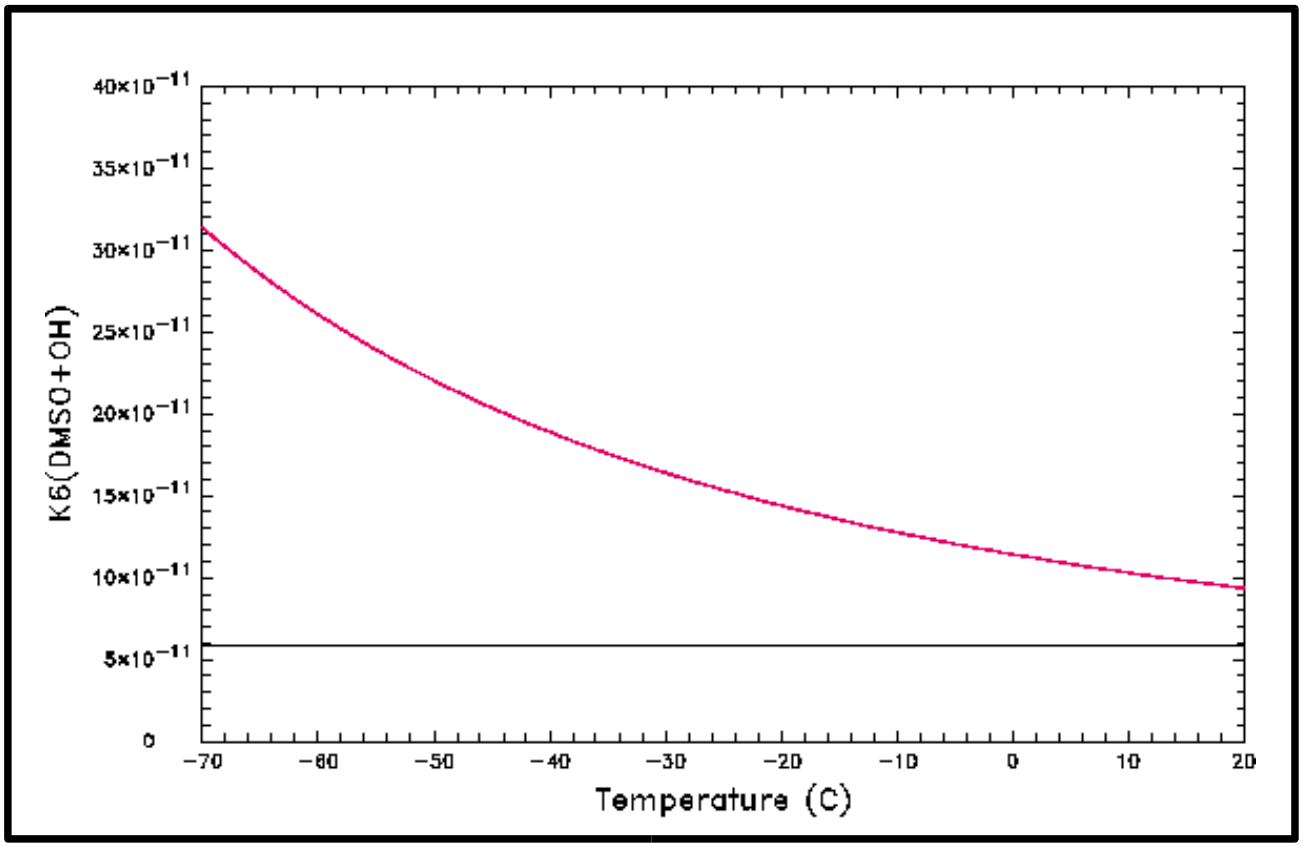
$k_2$ → 0,6 $SO_2$ + 0,4 DMSO (chimie «originale»)

$k_2$ → DMSO (chimie «2007»)



# 3.2 La mise à jour du modèle : le schéma chimique

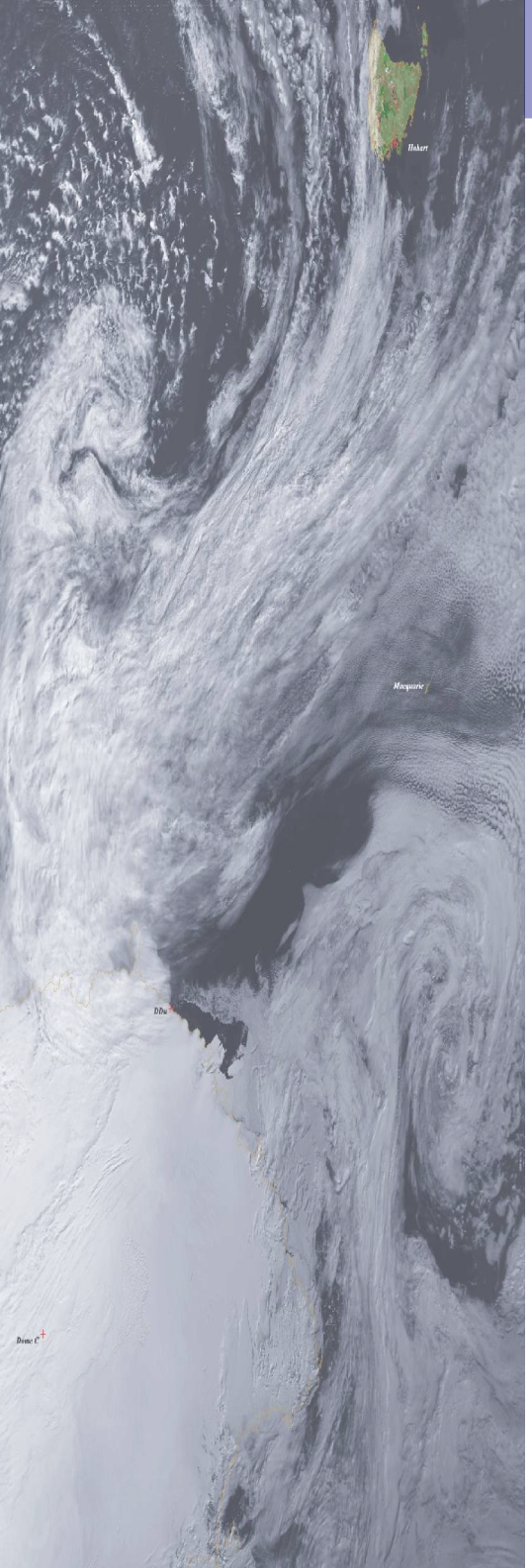
(Arsene, *PCCP*, 1999) et (Sanders et al., *JPL*, 2006)




DMSO+OH $\xrightarrow{k_6}$ $0{,}6\ SO_2 + 0{,}4\ MSA$ (chimie «originale»)

DMSO+OH → $\beta_{SO2} SO_2 + \beta_{MSA} MSA$ (chimie «2007»)

$\beta_{SO2}$=-0,0123(T-320) et $\beta_{MSA}$=1-$\beta_{SO2}$



# 3.3 La mise à jour du modèle : les processus de dépôt

## Dépôt sec

- Comparaison avec les concentrations dans la neige

  (Minikin et al., *JGR*, 1998) et (Legrand et al., *JGR,* 1997)

- Forte réduction du dépôt sec de MSA et nss $SO_4^{2-}$

  $0{,}25\ cm.s^{-1} \longrightarrow 0{,}05\ cm.s^{-1}$

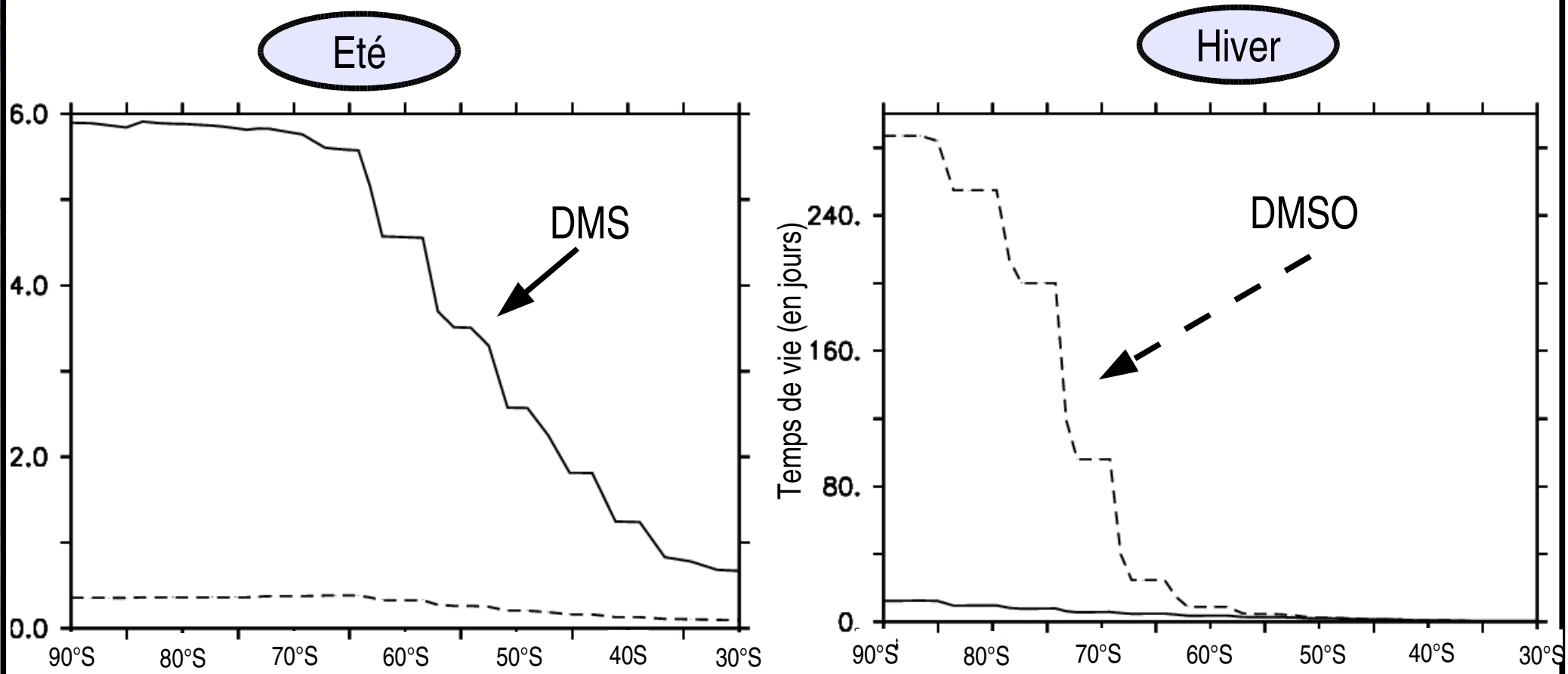
## Lessivage

Annulation du dépôt humide pour T < -20°C

(congélation des nuages)

# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

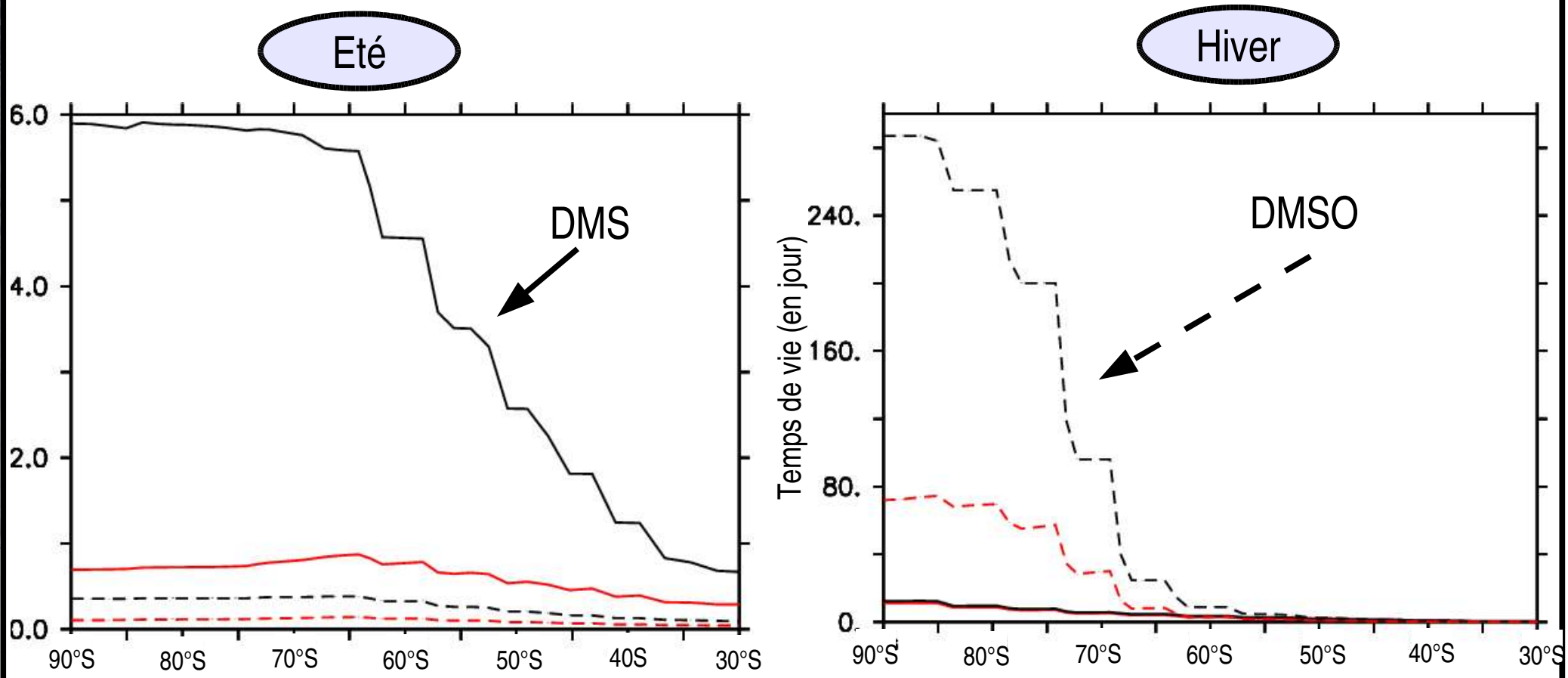
## Temps de vie du DMS et du DMSO




**Chimie originale**

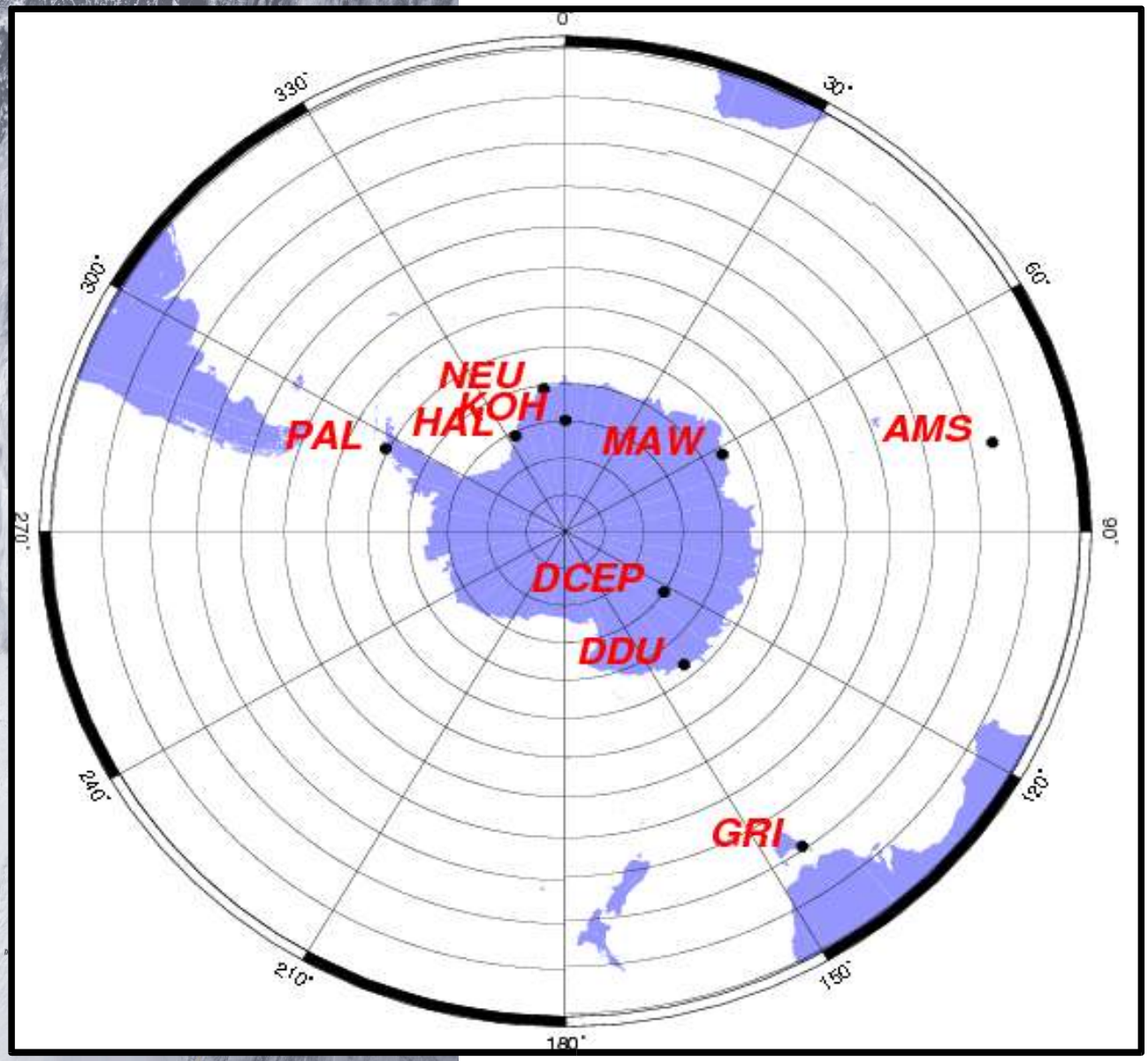
# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

## Temps de vie du DMS et du DMSO




**Chimie originale** — **Chimie 2007**

# 3.4 Le modèle LMD-ZT Soufre : validation




**Sur la côte :**

DDU : Dumont d'Urville

MAW : Mawson

NEU: Neumayer

HAL : Halley Bay

PAL : Palmer

**Les moyennes latitudes :**

AMS : Ile d'Amsterdam

GRI : Cape Grim

**Sur le plateau antarctique :**

DCEP : Dome C

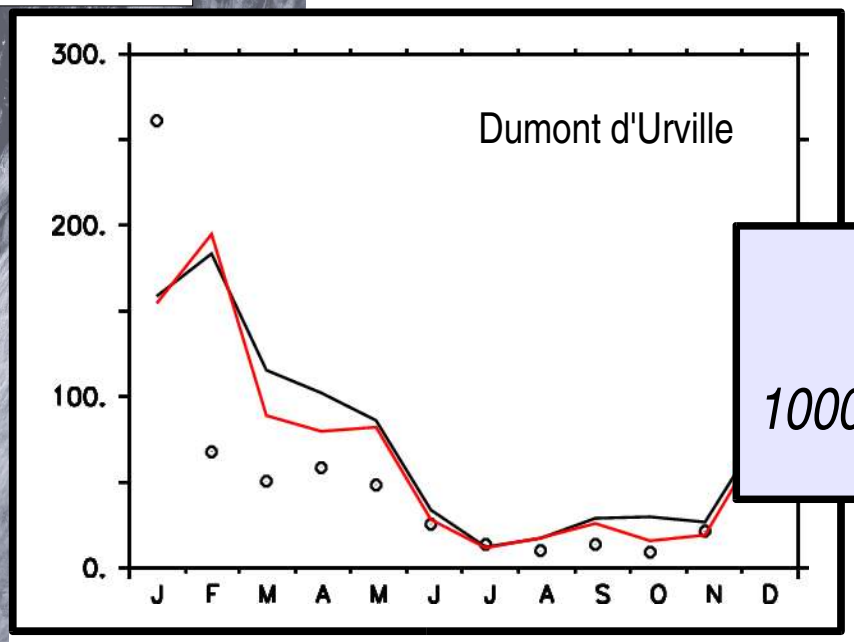
KOH : Kohnen

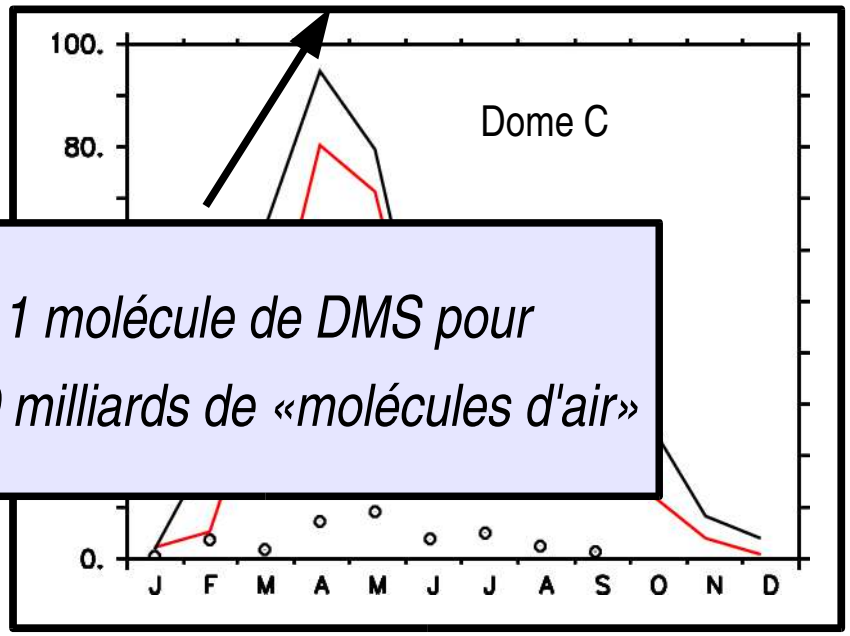
# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

Chimie originale

Chimie 2007

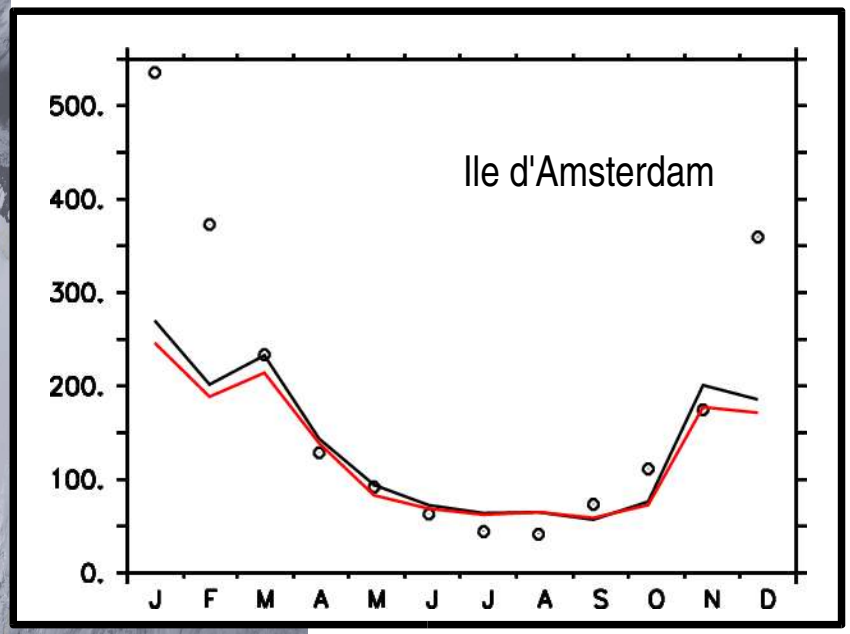
**Le DMS (en pptv)**

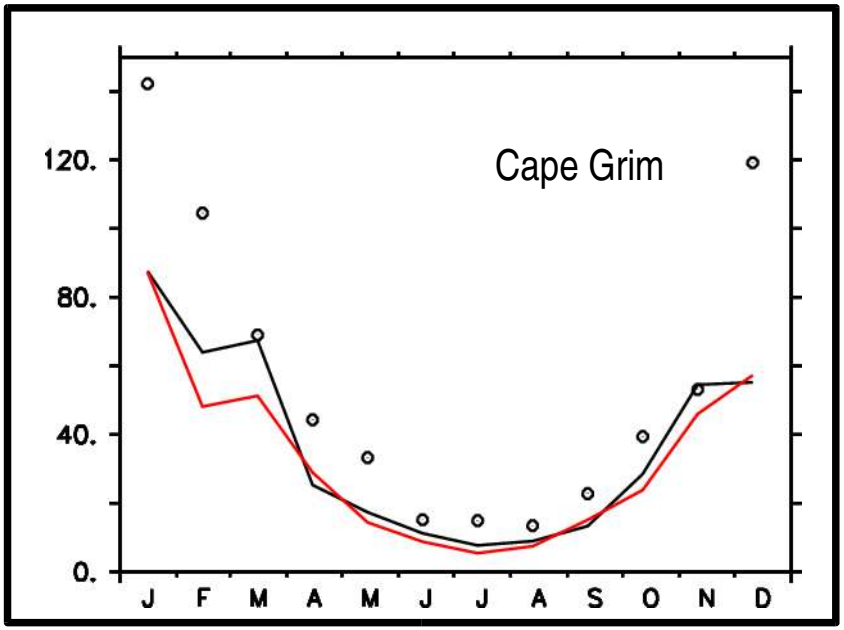



*1 molécule de DMS pour*

*1000 milliards de «molécules d'air»*



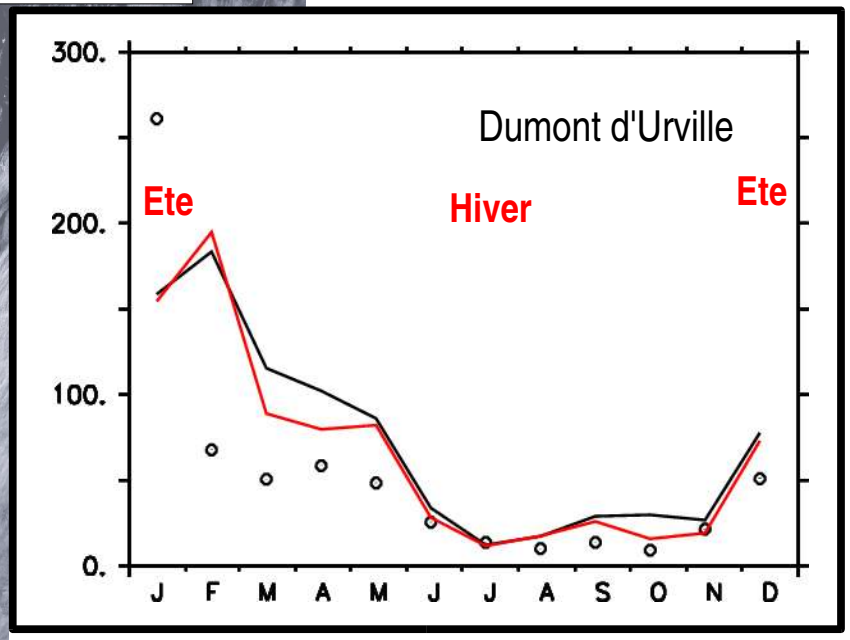



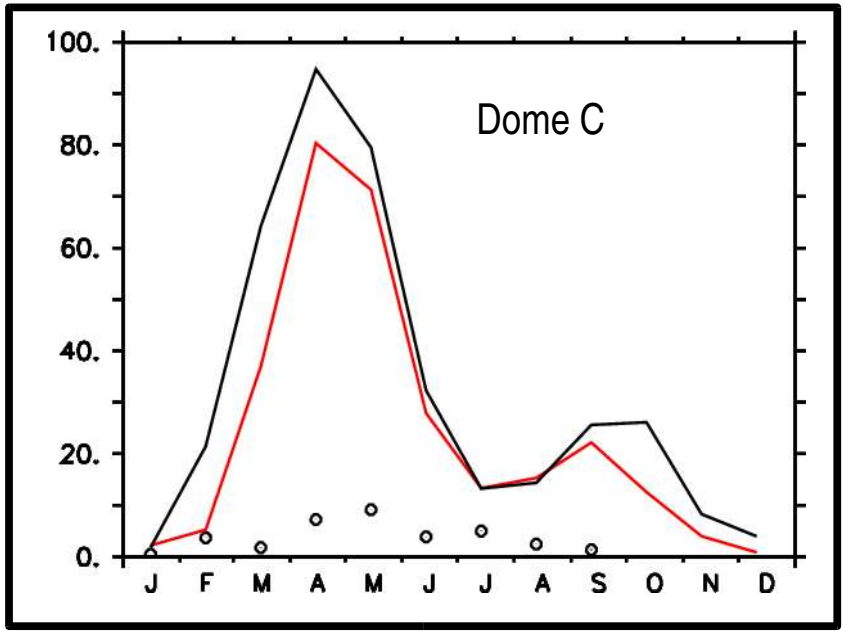
# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

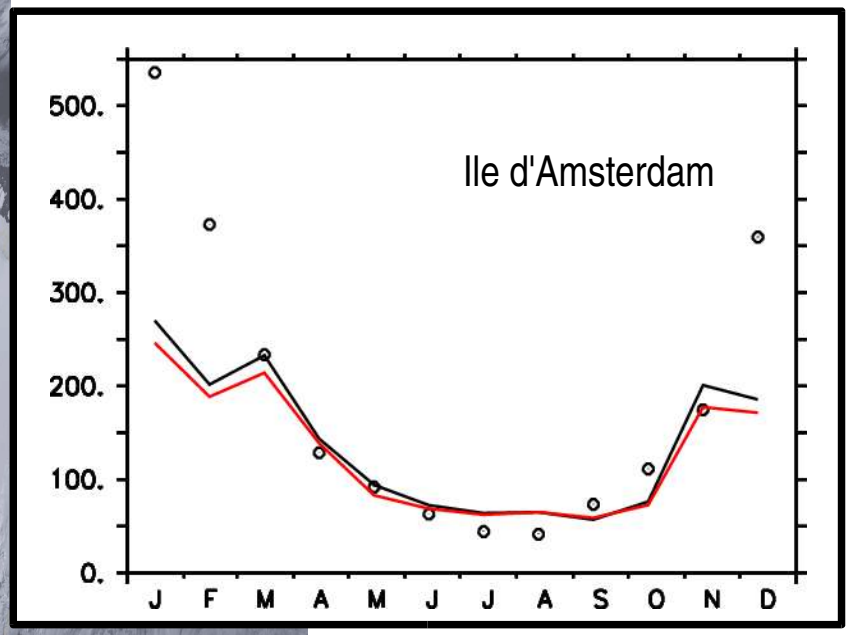
Chimie originale

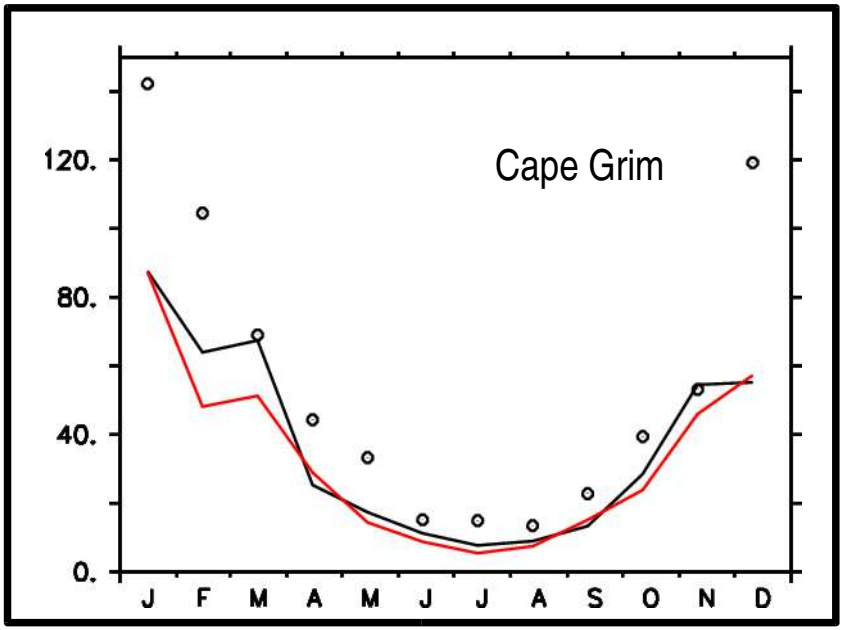
Chimie 2007

## Le DMS (en pptv)



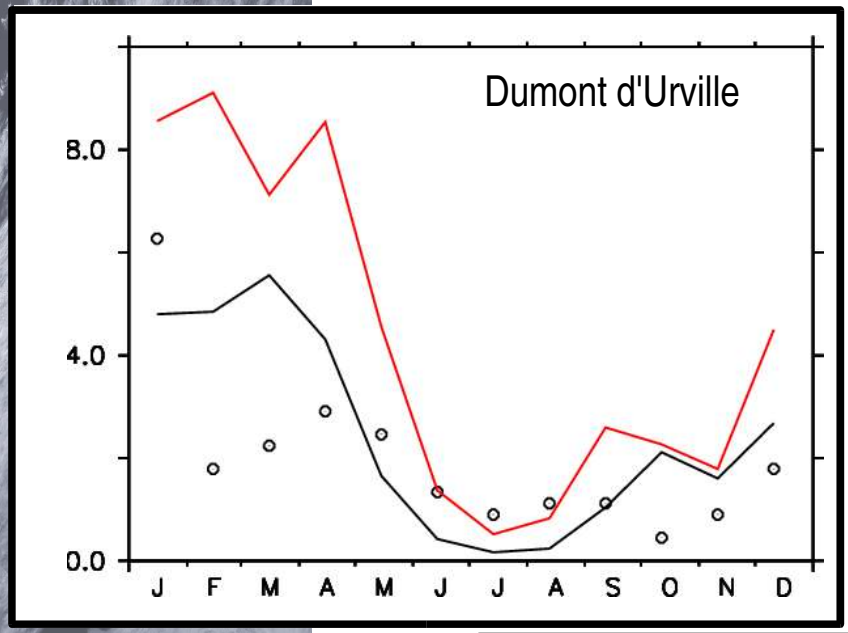



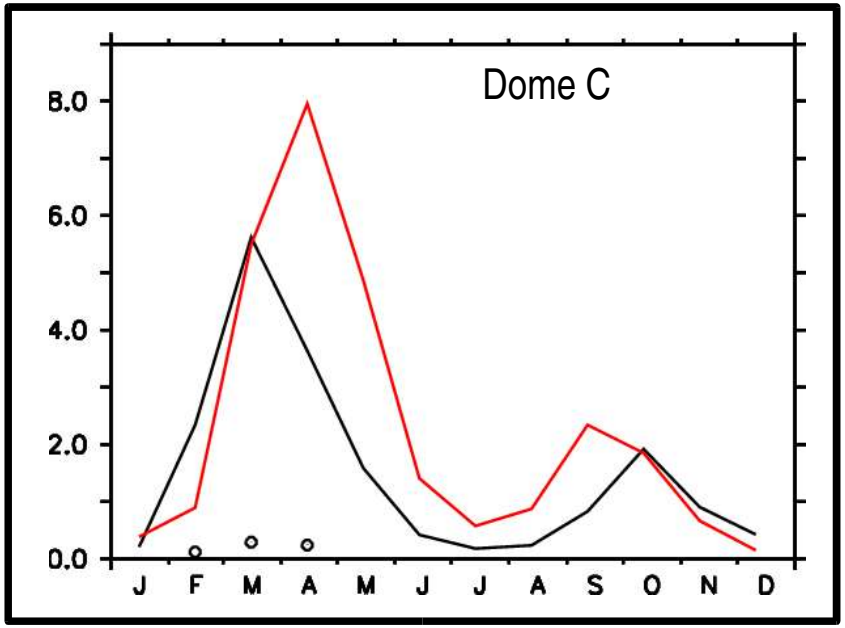
# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

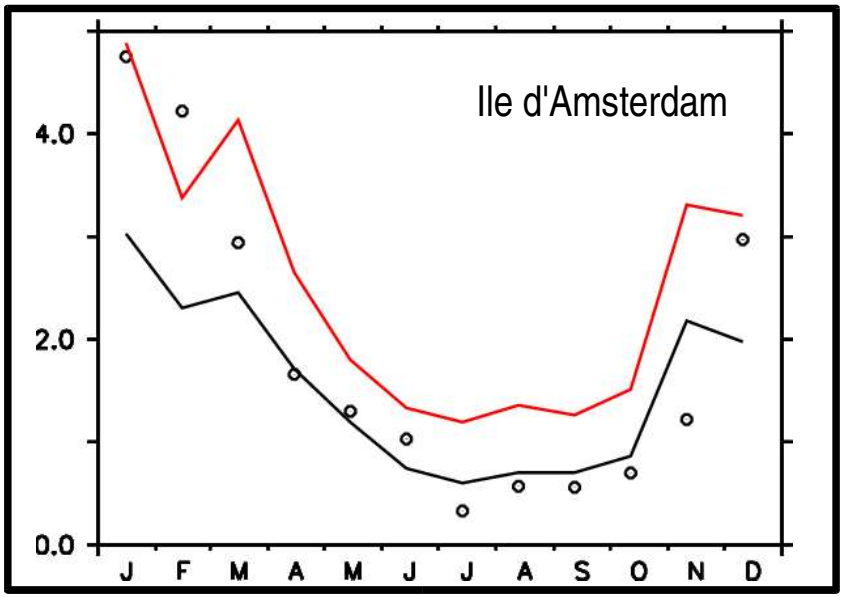
Chimie originale

Chimie 2007

## Le DMSO (en pptv)



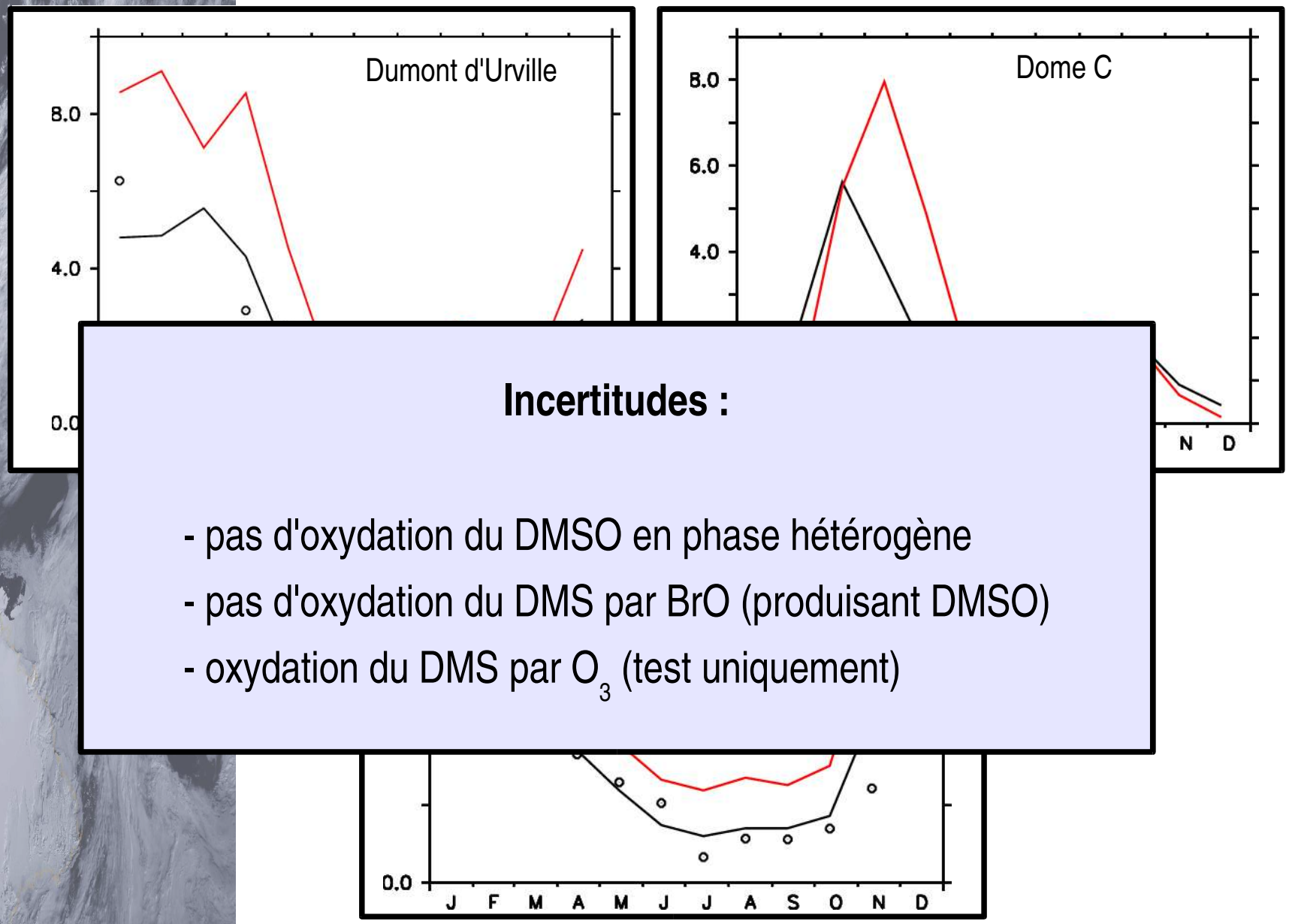



# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

Chimie originale

Chimie 2007

**Le DMSO (en pptv)**




**Incertitudes :**

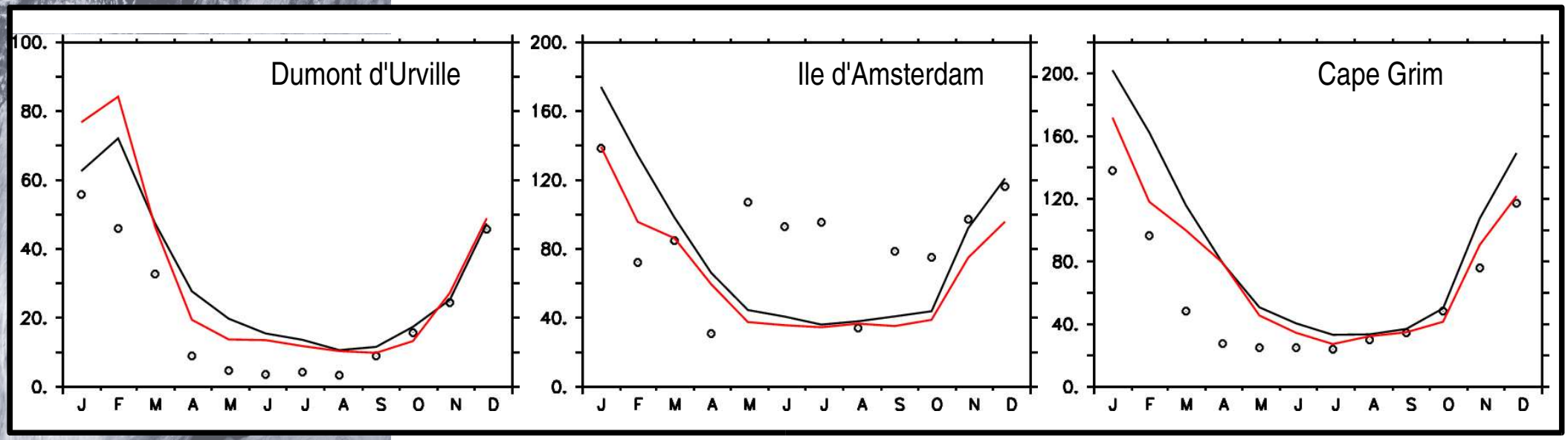
- pas d'oxydation du DMSO en phase hétérogène
- pas d'oxydation du DMS par BrO (produisant DMSO)
- oxydation du DMS par $O_3$ (test uniquement)

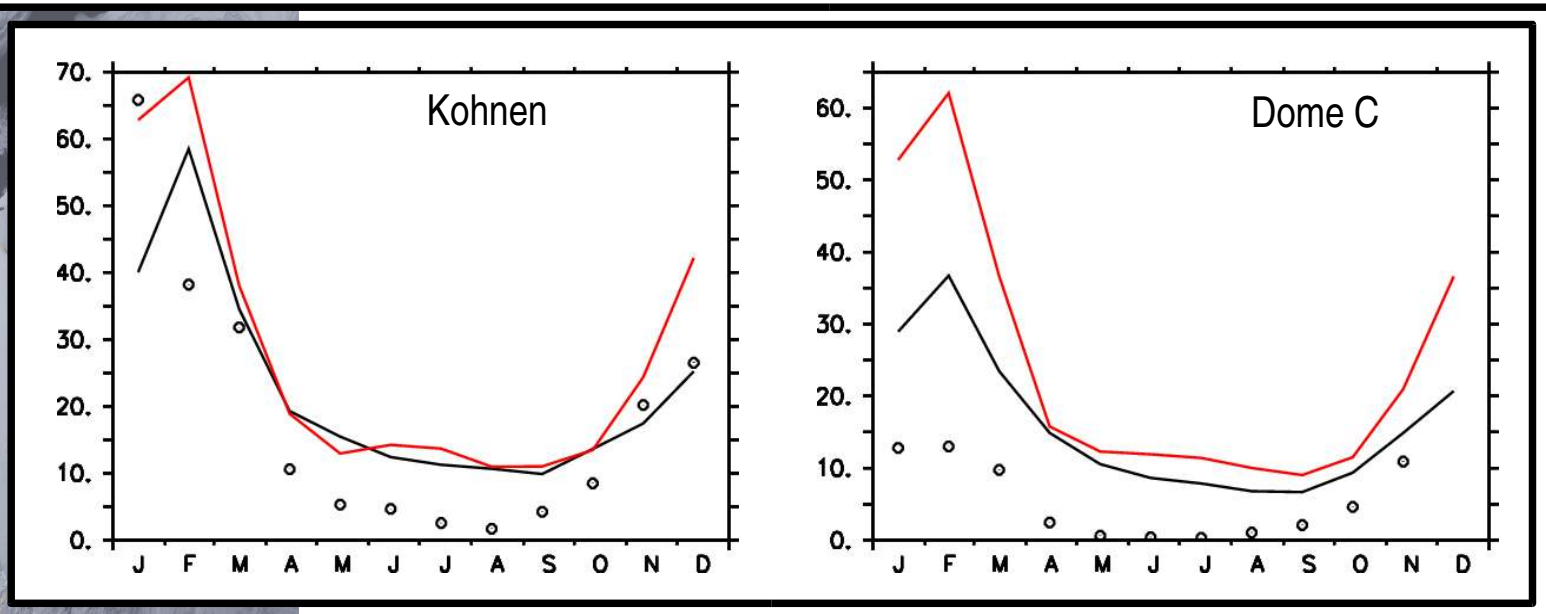
# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

Chimie originale

Chimie 2007

## Le nss $SO_4^{2-}$ (en pptv)



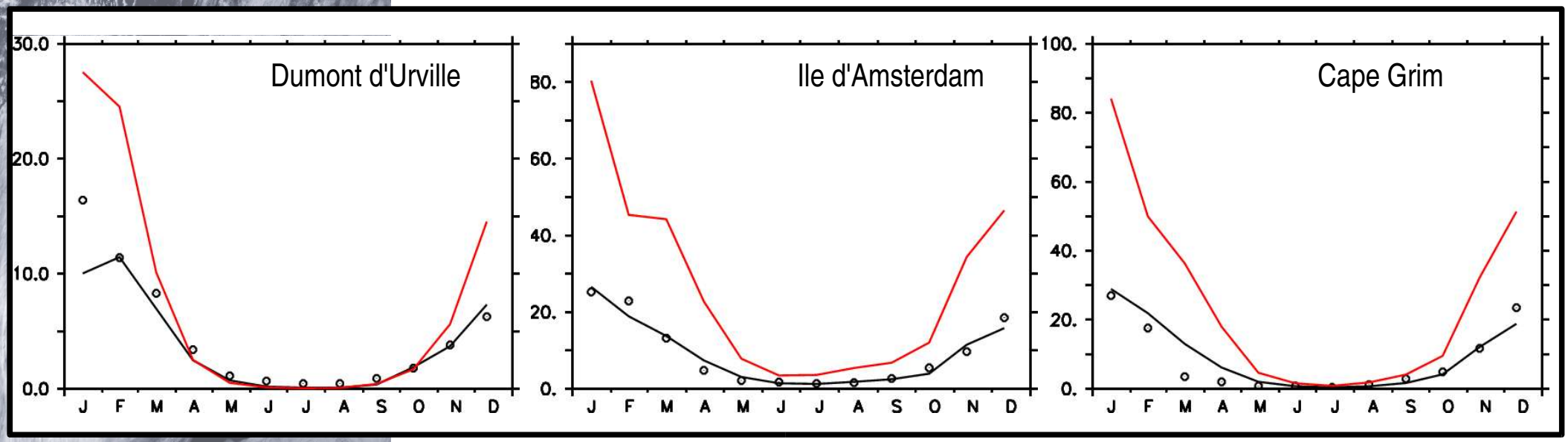



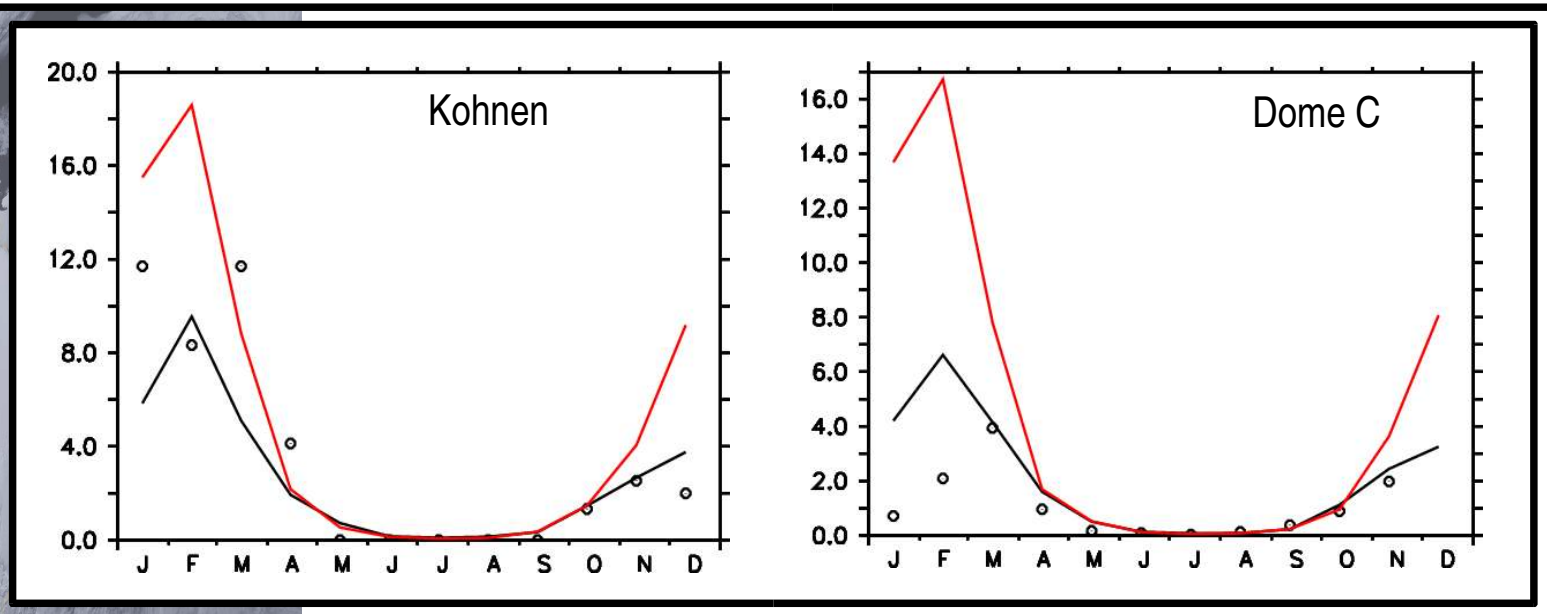
# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

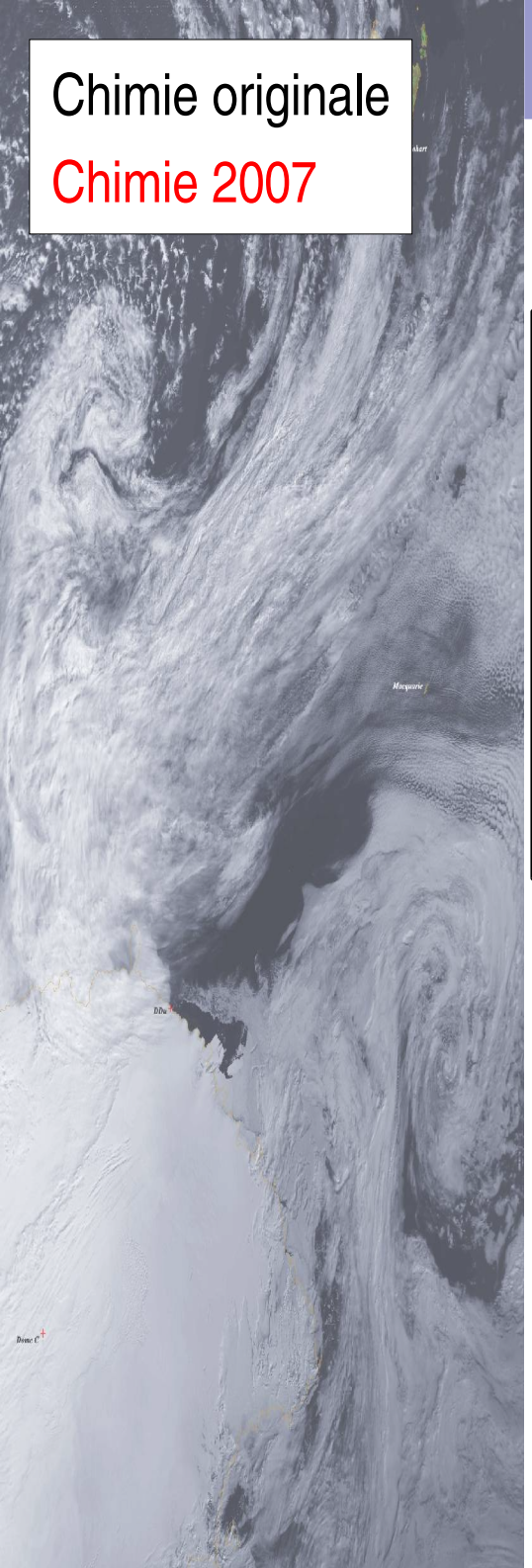
Chimie originale

Chimie 2007

## Le MSA (en pptv)

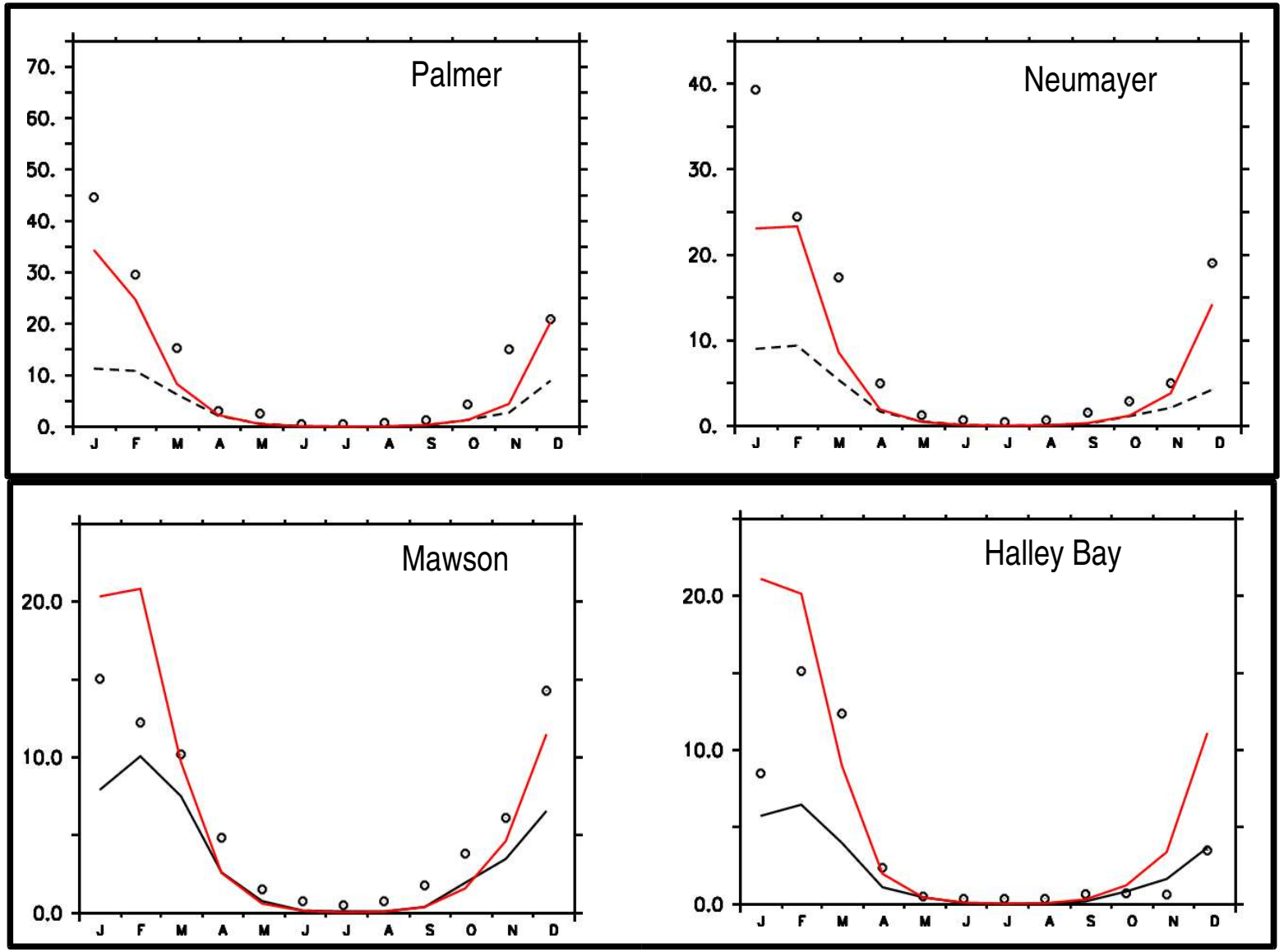





# 3.4 La mise à jour du modèle : évaluation

## Le MSA (en pptv)



# 3. La mise à jour du modèle : conclusion

**Modifications significatives mais cohérence avec les observations**

Forte sensibilité du DMSO

**Test de l'oxydation du DMS par l'ozone**

Sur-estimation du DMSO

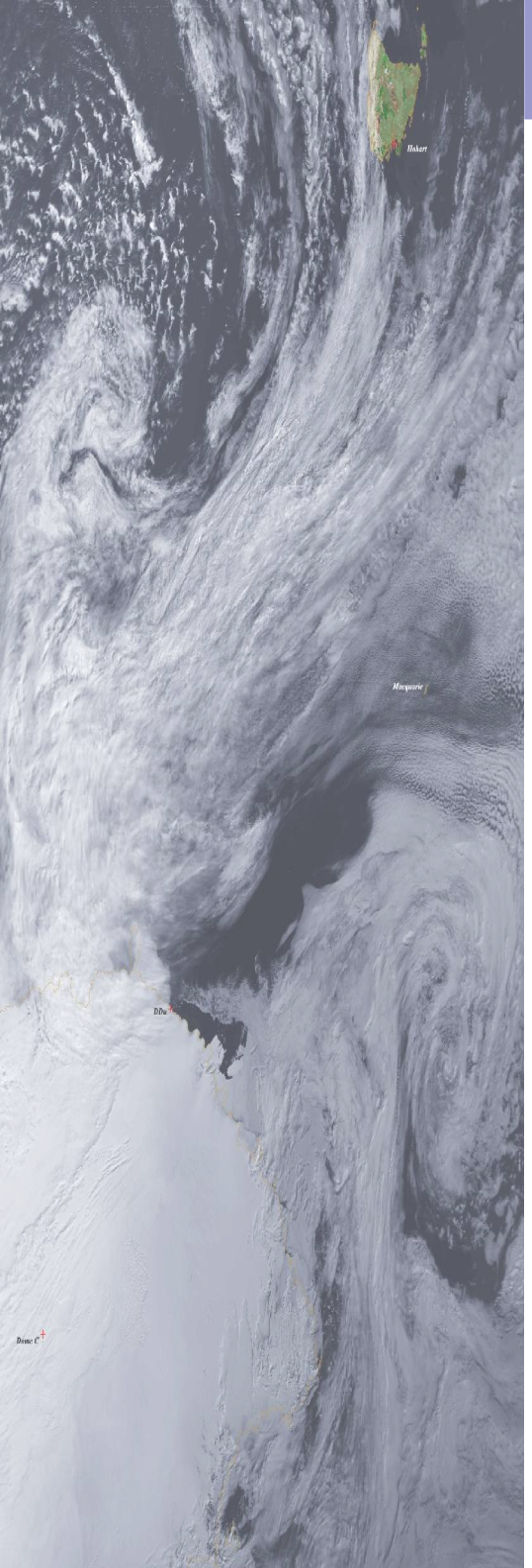
**Rapport [MSA]/[nss $SO_4$]**

Sous-estimation en hiver

**Des réactions manquent mais nécessitent :**

- ✔ Des champs d'aérosols validés aux hautes latitudes
- ✔ Des champs de BrO

**Amélioration de notre connaissance des processus de dépôt**

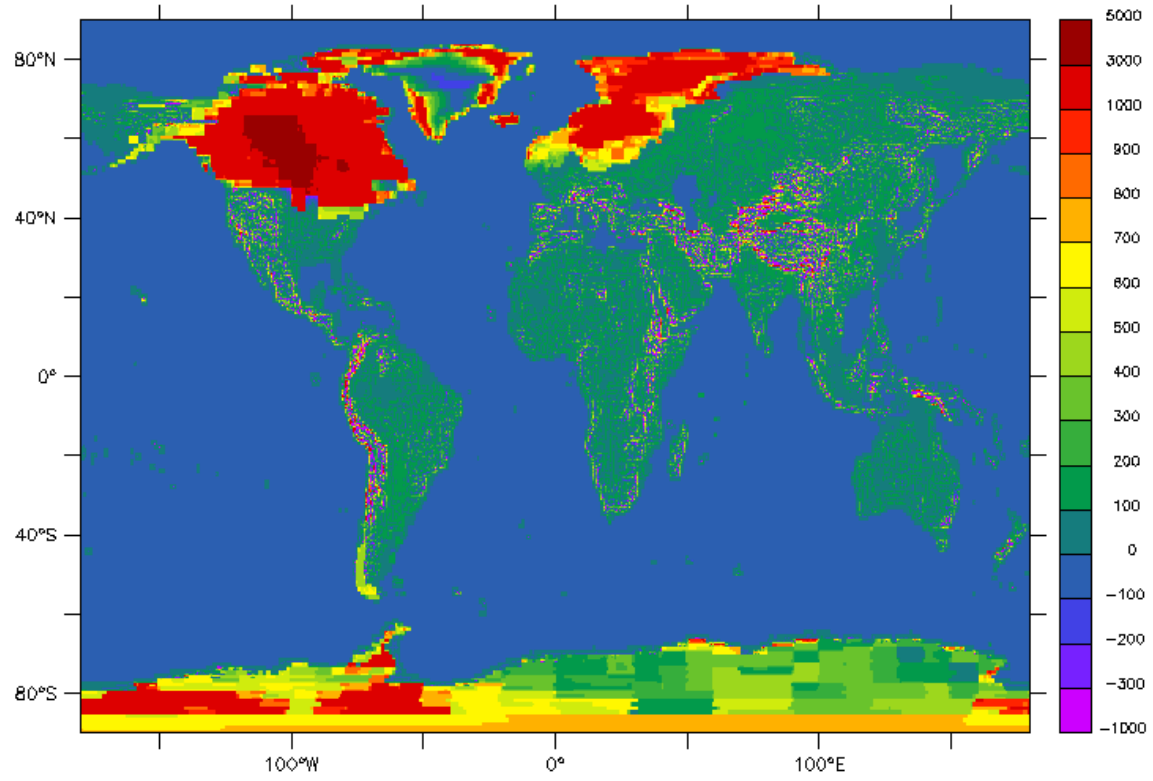



# 4. Le cycle du soufre au DMG

**Tout d'abord, représenter un climat glaciaire ...**

# 4. Le cycle du soufre au DMG

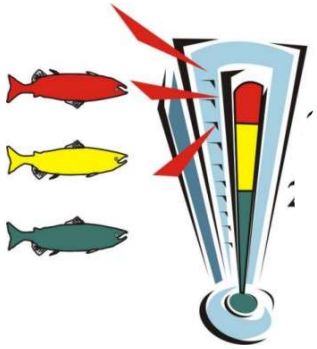
Tout d'abord, représenter un climat glaciaire ...




l'extension et l'altitude des calottes de glace (Peltier, 1994)

# 4. Le cycle du soufre au DMG

Tout d'abord, représenter un climat glaciaire ...



Températures de surface des océans

Couverture de glace de mer

les conditions de surface des océans (CLIMAP, 1981)

l'extension et l'altitude des calottes de glace (Peltier, 1994)

# 4. Le cycle du soufre au DMG

Tout d'abord, représenter un climat glaciaire ...

Paleoclimate Modelling Intercomparison Project

PMIP

l'albédo et la rugosité (Crowley, 1995)

les conditions de surface des océans (CLIMAP, 1981)

l'exsention et l'altitude des calottes de glace (Peltier, 1994)

# 5. Le cycle du soufre au DMG

Tout d'abord, représenter un climat glaciaire ...

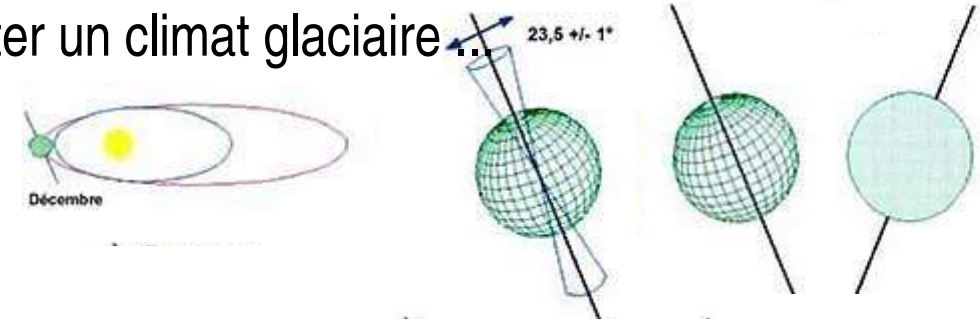
Paleoclimate Modelling Intercomparison Project

PMIP

- les teneurs en gaz à effet de serre et en CFCs (Petit et al., 1999)
- l'albédo et la rugosité (Crowley, 1995)
- les conditions de surface des océans (CLIMAP, 1981)
- l'extension et l'altitude des calottes de glace (Peltier, 1994)

# 5. Le cycle du soufre au DMG

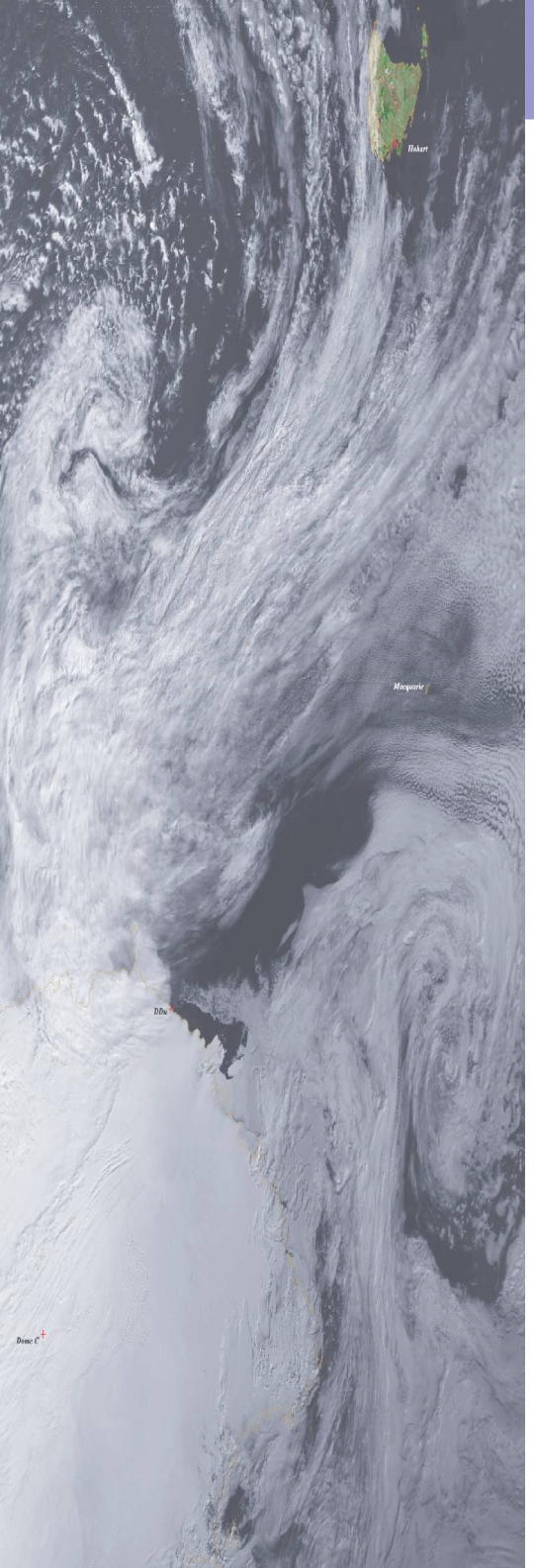
Tout d'abord, représenter un climat glaciaire...




Paleoclimate Modelling Intercomparison Project

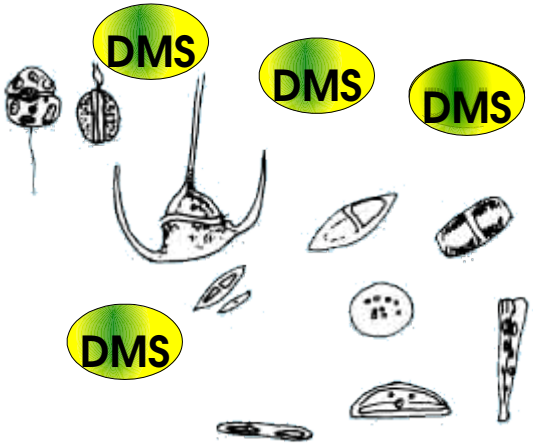
PMIP

- les paramètres astronomiques (Berger, 1978)
- les teneurs en gaz à effet de serre et en CFCs (Petit et al., 1999)
- l'albédo et la rugosité (Crowley, 1995)
- les conditions de surface des océans (CLIMAP, 1981)
- l'extension et l'altitude des calottes de glace (Peltier, 1994)



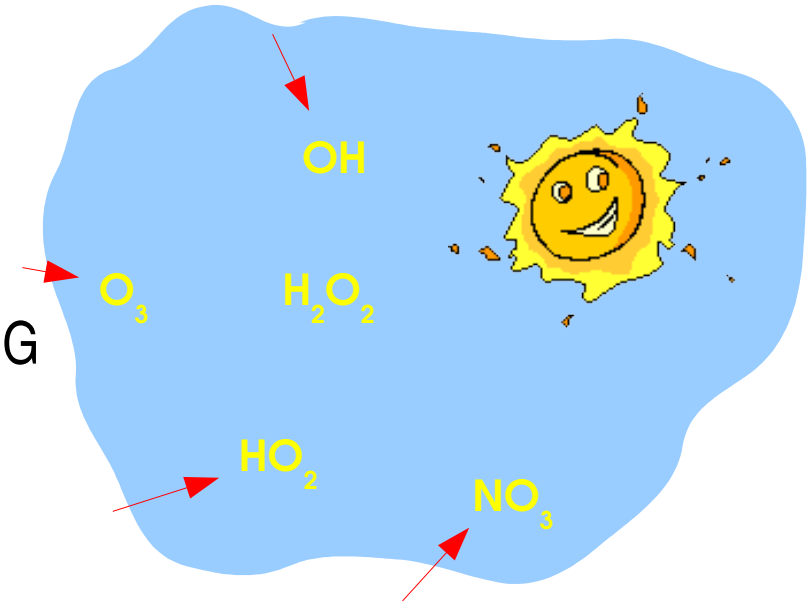
# 5. Le cycle du soufre au DMG

## Le cycle du soufre au Dernier Maximum Glaciaire




Des concentrations océaniques en DMS inchangées

Des concentrations en oxydants adaptées au climat du DMG



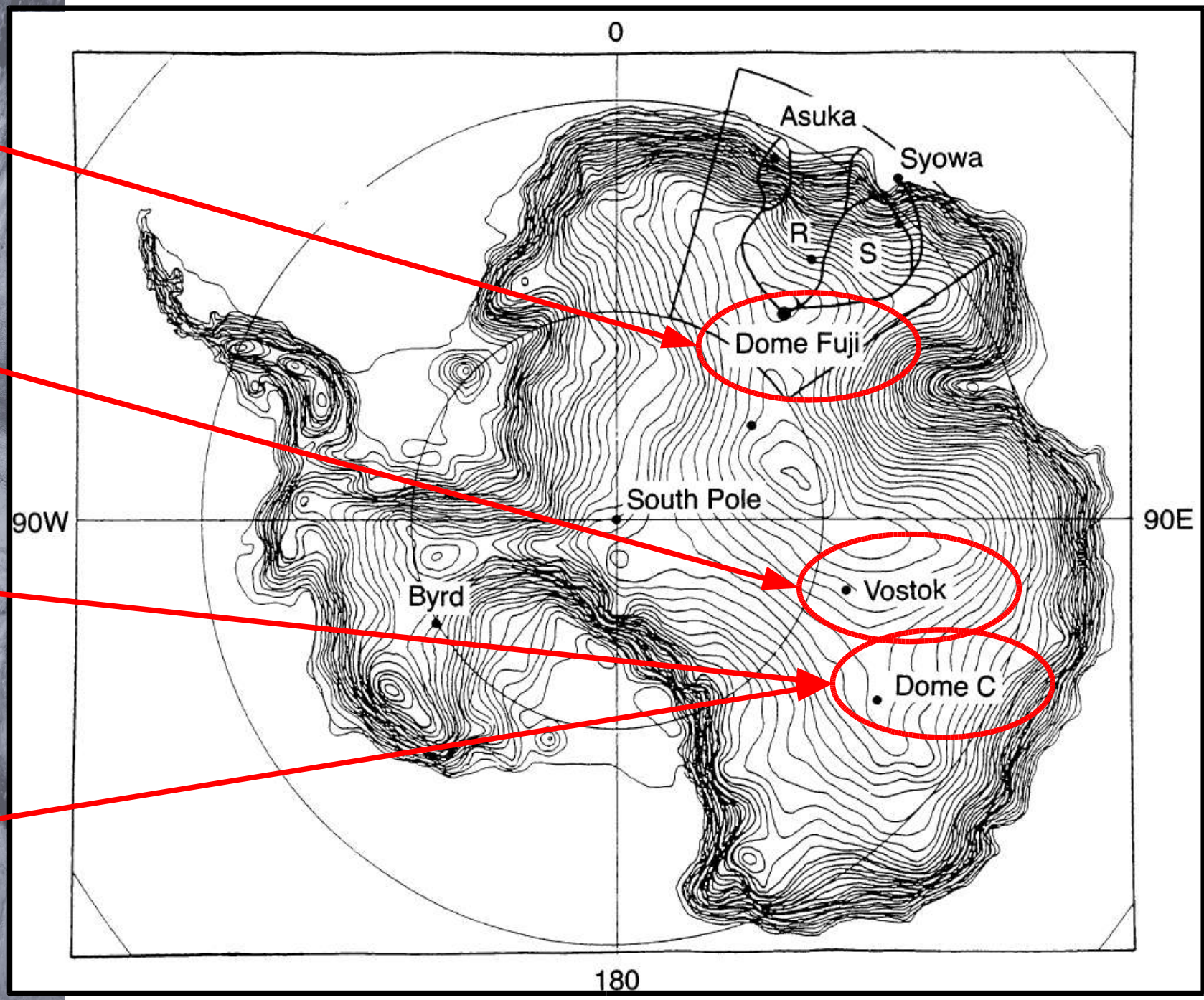
# 5. Le cycle du soufre au DMG : les observations

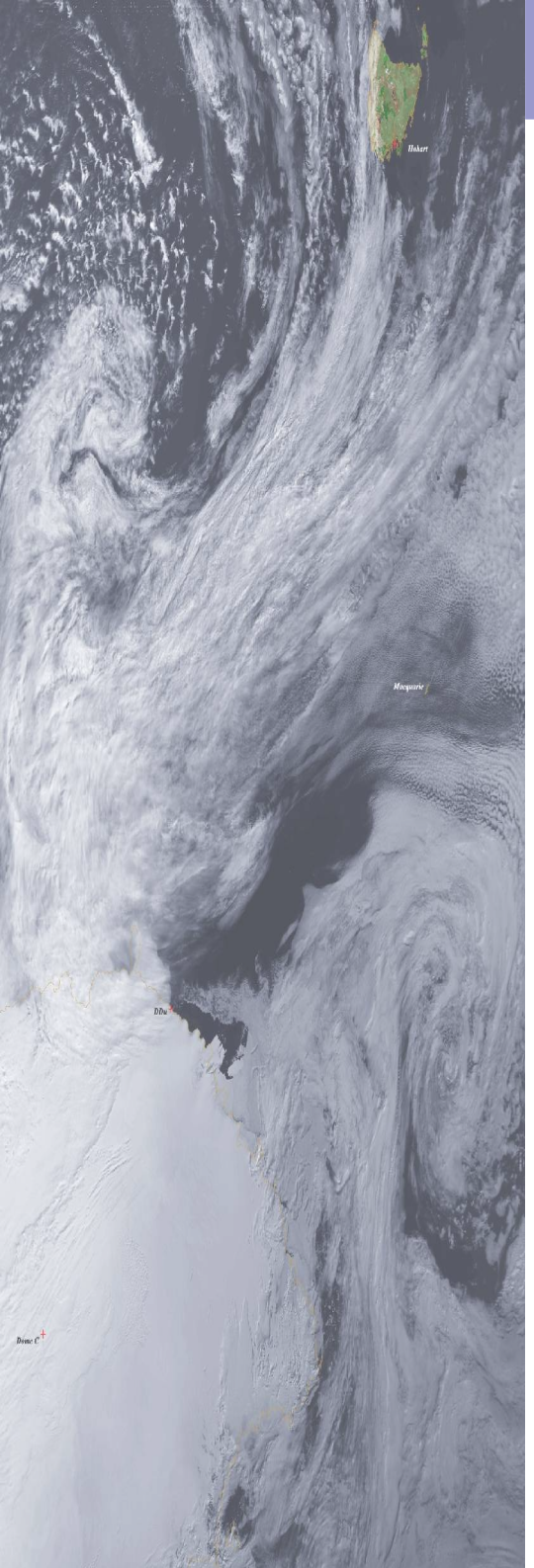
**Dome F**
39°4 E, 77°2 S

**Vostok**
106°5 E, 78°3 S

**Dome C-EPICA**
123°2 E, 75° S

**Dome C - 1978**
**124° E, 74°4 S**





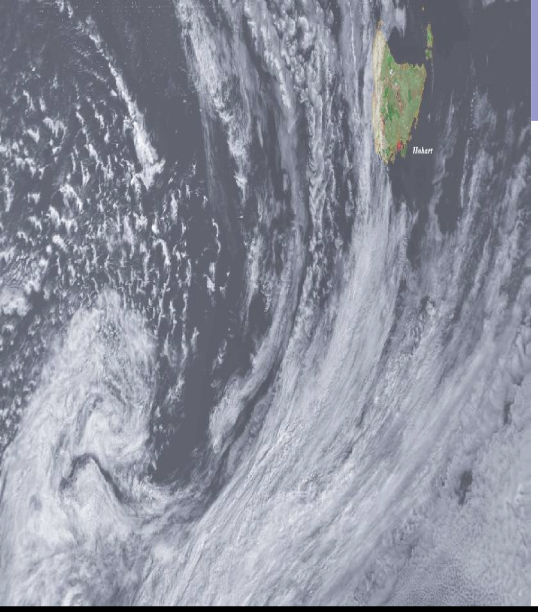

# 5. Le cycle du soufre au DMG : les observations

**Les flux de dépôt sont de meilleurs analogues des concentrations atmosphériques sur le plateau Antarctique ...**

Flux de dépôt → $F = C \times A$

Accumulation → A

Concentration dans la neige → C

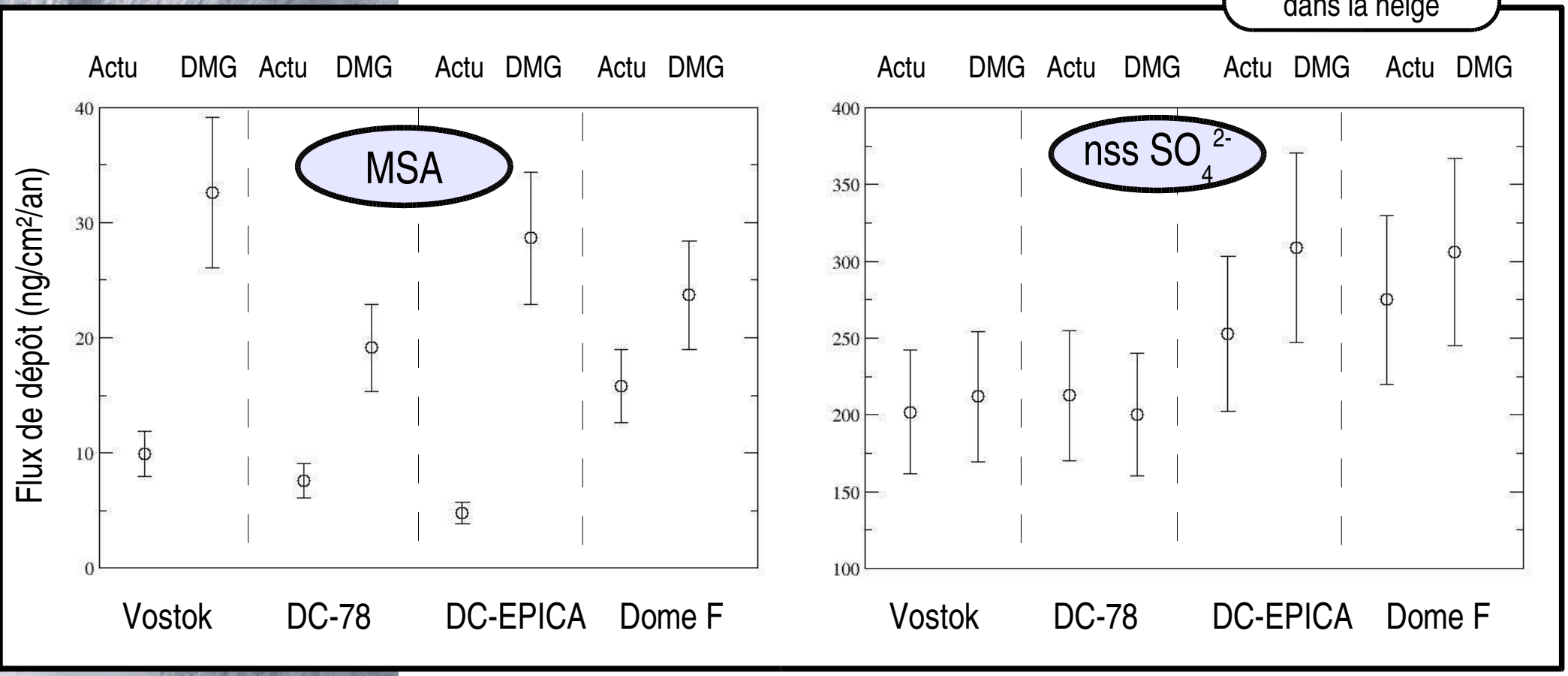


# 5. Le cycle du soufre au DMG : les observations

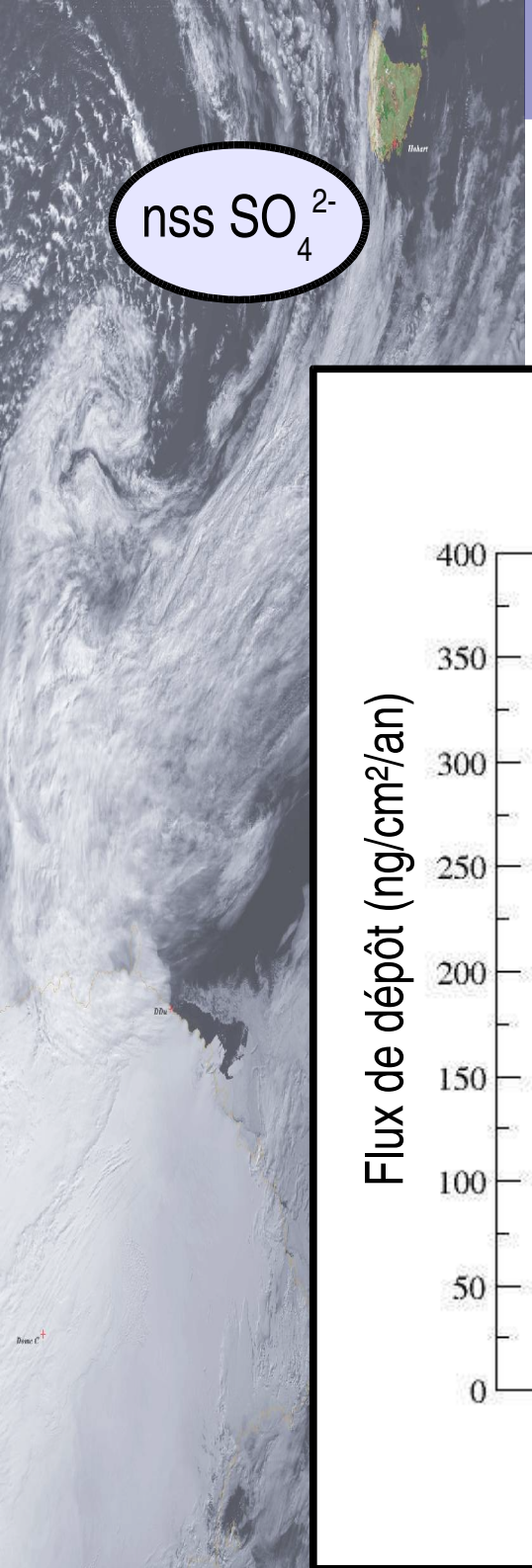
**Les flux de dépôt sont des meilleurs analogues des concentrations atmosphériques sur le plateau Antarctique ...**

Flux de dépôt → $F = C \times A$ ← Accumulation

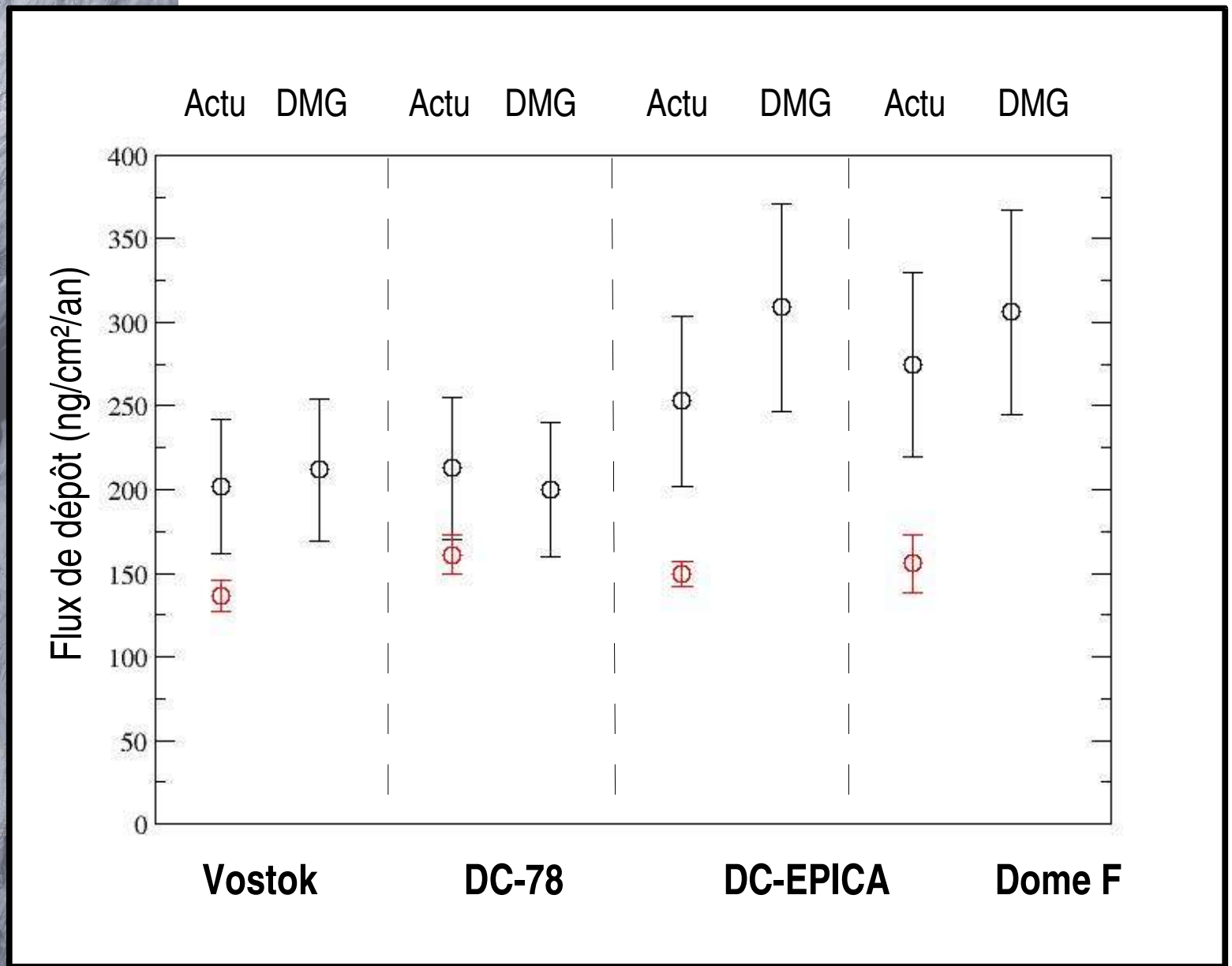
Concentration dans la neige



# 5. Le cycle du soufre au DMG : simulation de référence



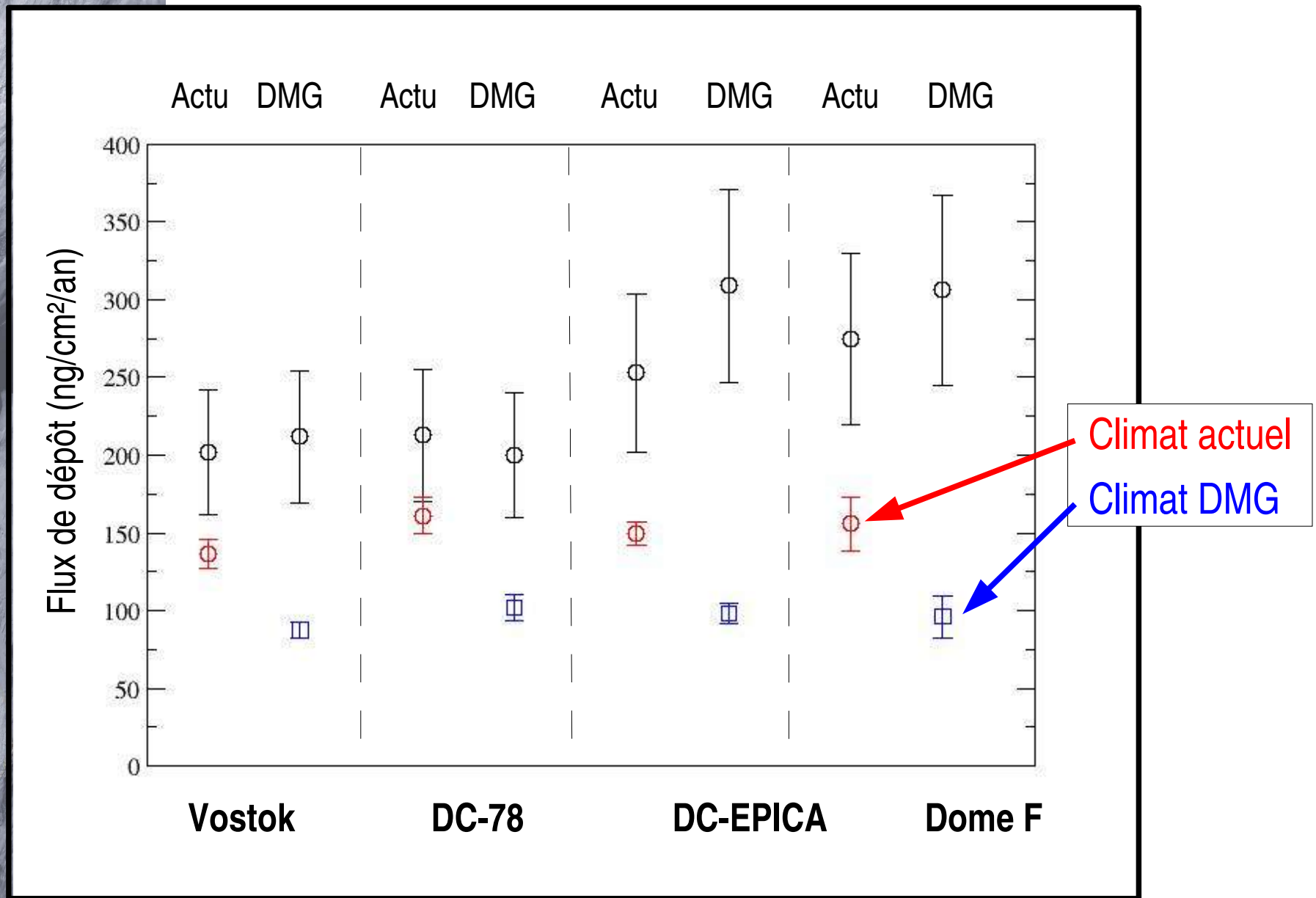

**Pour le climat actuel :** sous-estimation des flux de nss $SO_4$



# 5. Le cycle du soufre au DMG : avec CLIMAP

nss $SO_4^{2-}$

- ✓ Forte sous-estimation des flux pour le DMG
- ✓ Variations glaciaire-interglaciaire mal représentées



# 5. Le cycle du soufre au DMG : la glace de mer

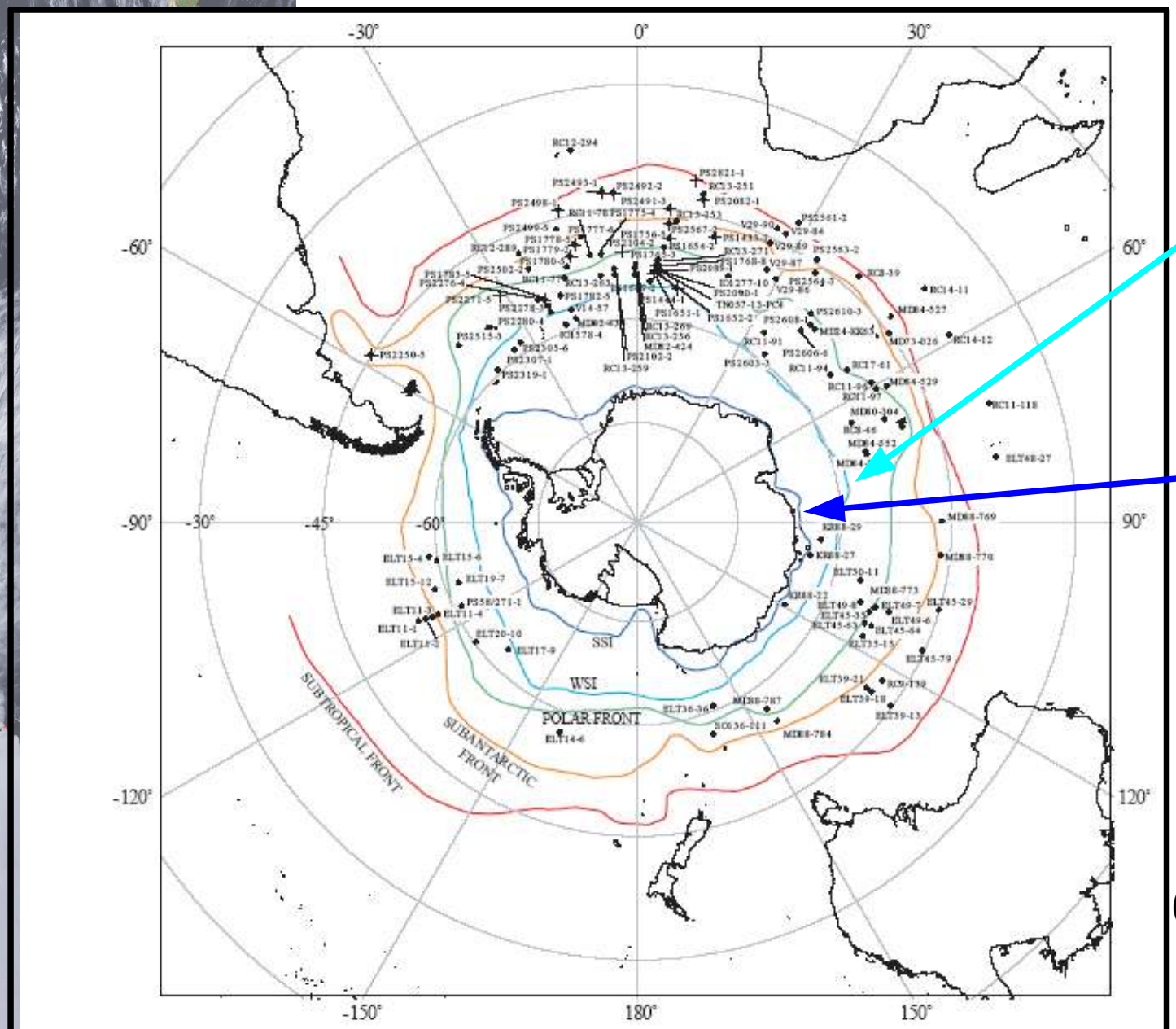



Fig. 1. Distribution of cores used for E-LGM reconstruction. Closed points indicate locations with diatom-based reconstruction, crosses indicate location with radiolarian-based reconstruction. For core location information see Table 3. Location of oceanic fronts according to Belkin and Gordon (1996). The sea ice distribution is from data of Comiso (2003), WSI indicates > 15% September sea ice concentration average (1979–1999), summer sea ice (SSI) > 15% February concentration average (1979–1999).

Extension de la glace de mer en hiver

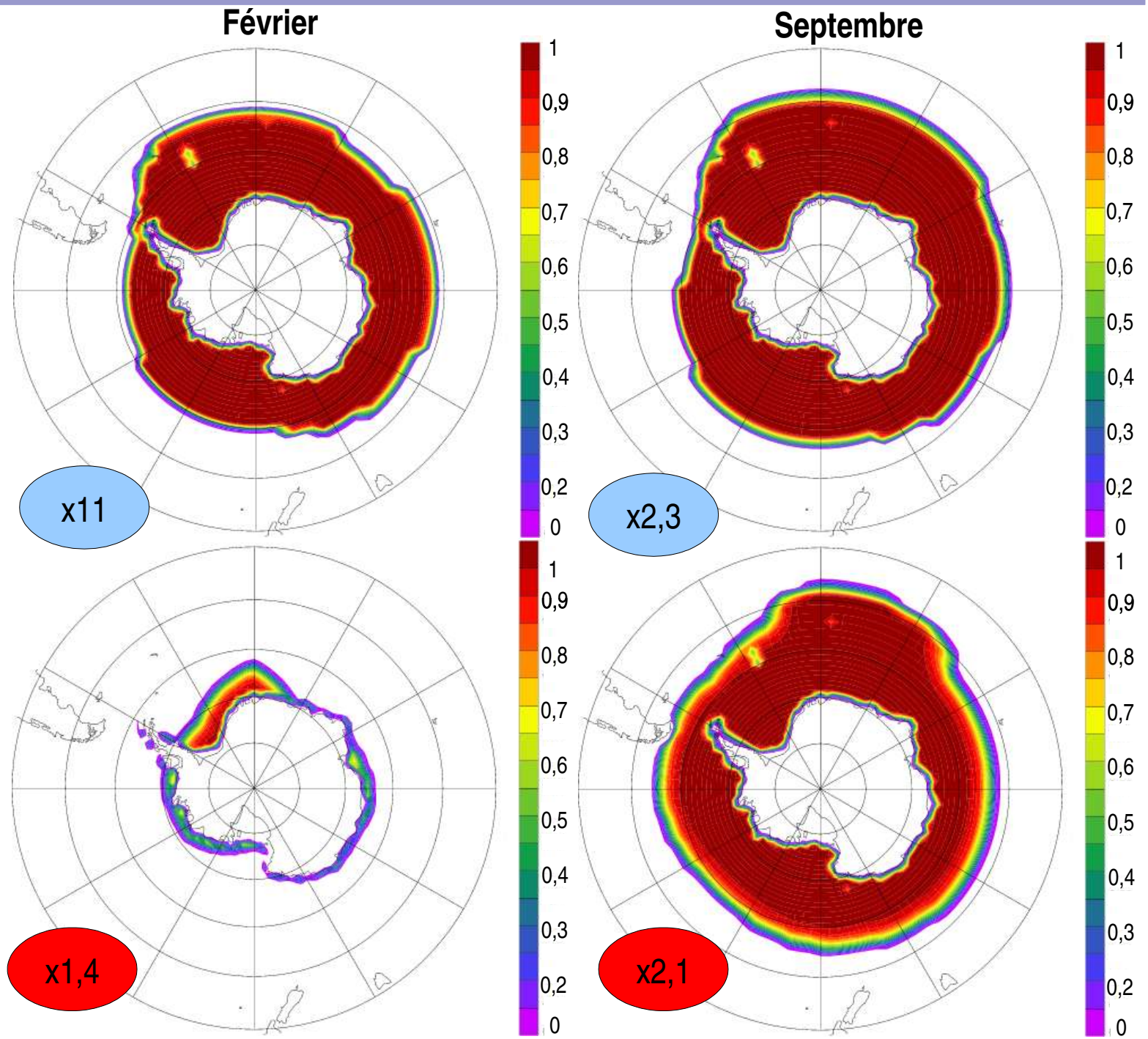
Extension de la glace de mer en été

(Gersonde et al., *QSR*, 2005)

# 5. Le cycle du soufre au DMG : la glace de mer

Fractions de glace de mer CLIMAP

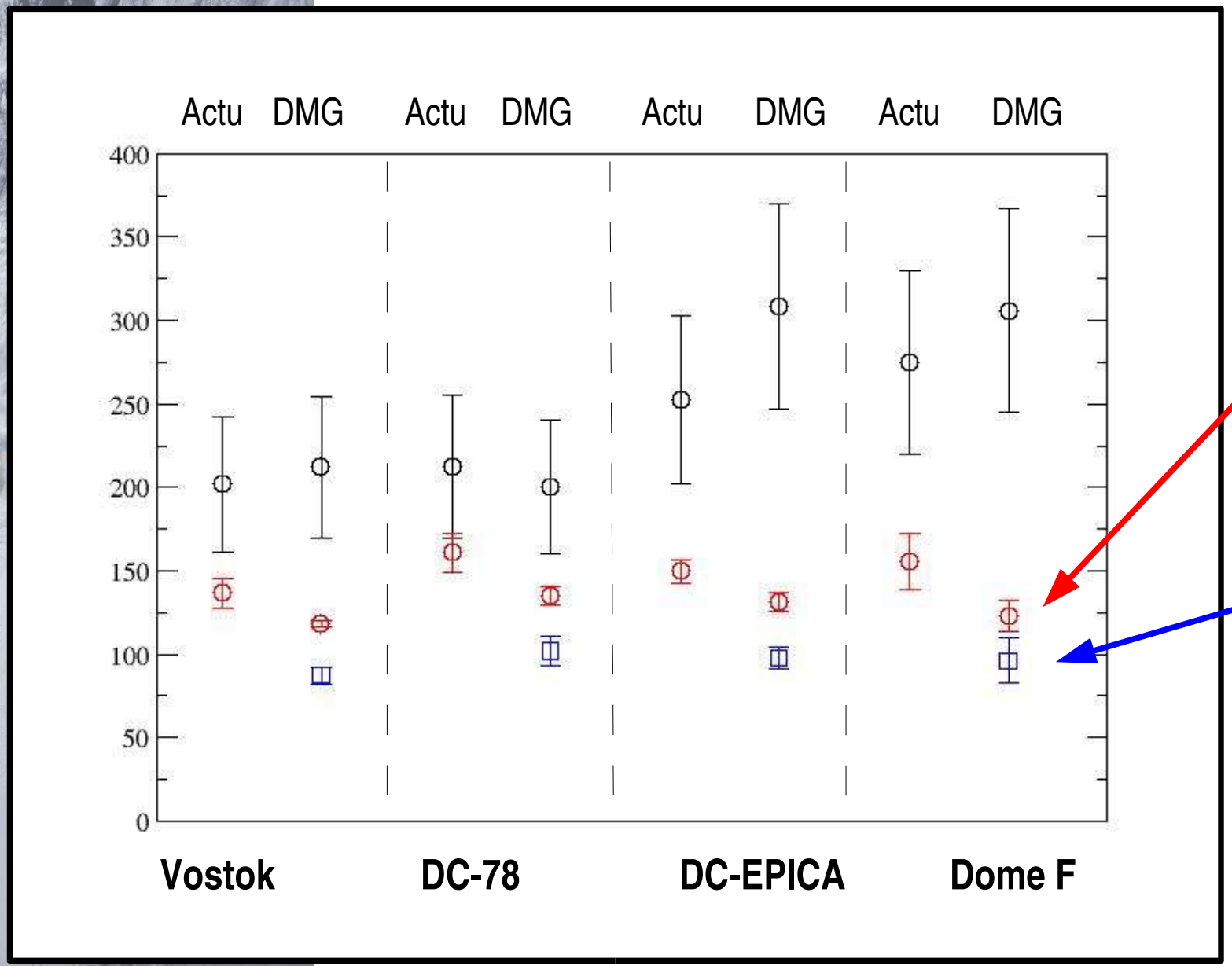
Fractions de glace de mer Gersonde/Krinner



# 5. Le cycle du soufre au DMG : la glace de mer

nss $SO_4^{2-}$

- Augmentation des flux de dépôt
- Bonne représentation des variations glaciaire-interglaciaire

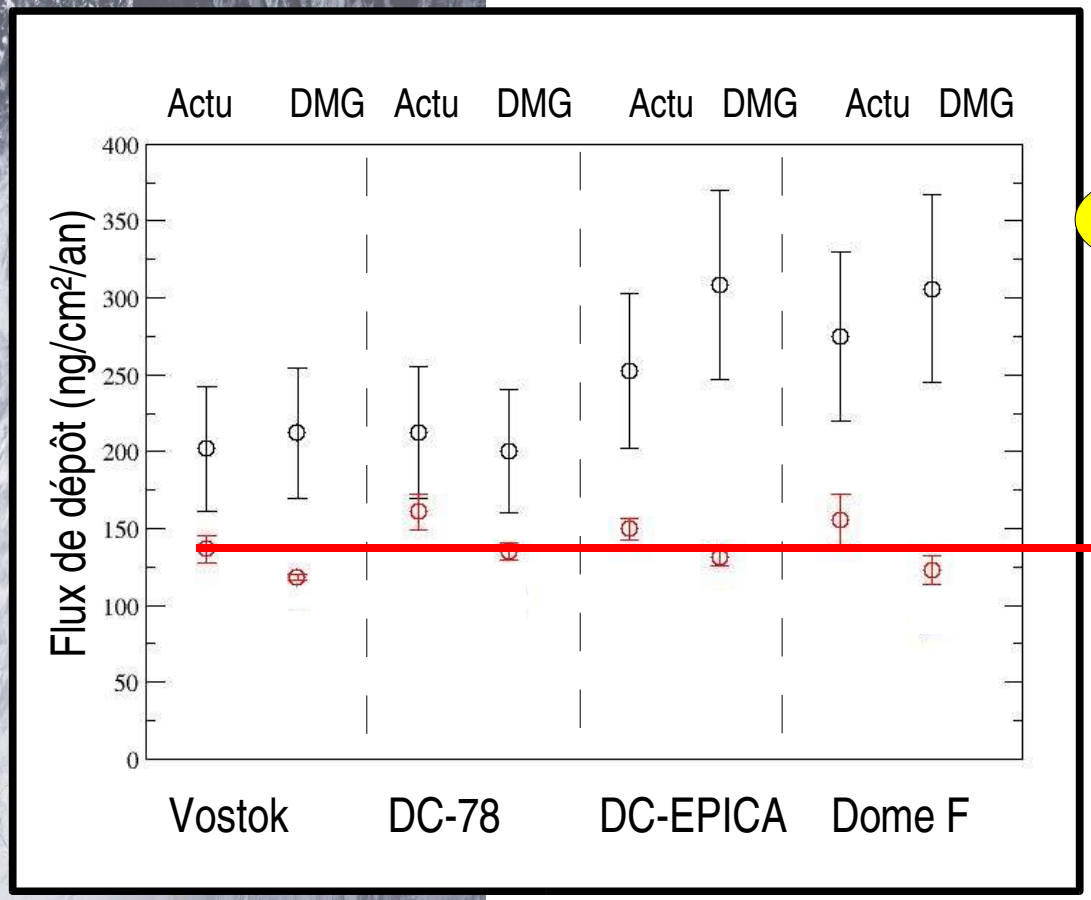


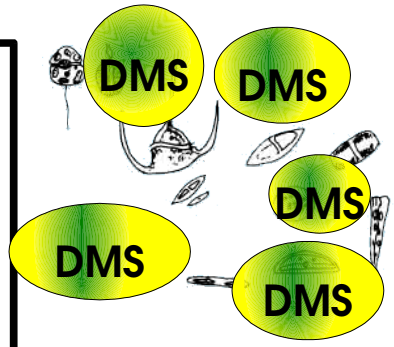

Climat actuel

Climat DMG
Gers/Krinner

Climat DMG
Climap

# 5. Le cycle du soufre au DMG : l'hypothèse CLAW




Concentrations océaniques de DMS inchangées

Quasi stabilité des flux de dépôt de nss $SO_4$

**Le climat influe t-il réellement sur la production de DMS ??**

# 5. Le cycle du soufre au DMG : processus dominants

nss $SO_4^{2-}$

**Tests de sensibilité :**

- ✓ Oxydants
- ✓ Circulation atmosphérique
- ✓ Flux de DMS

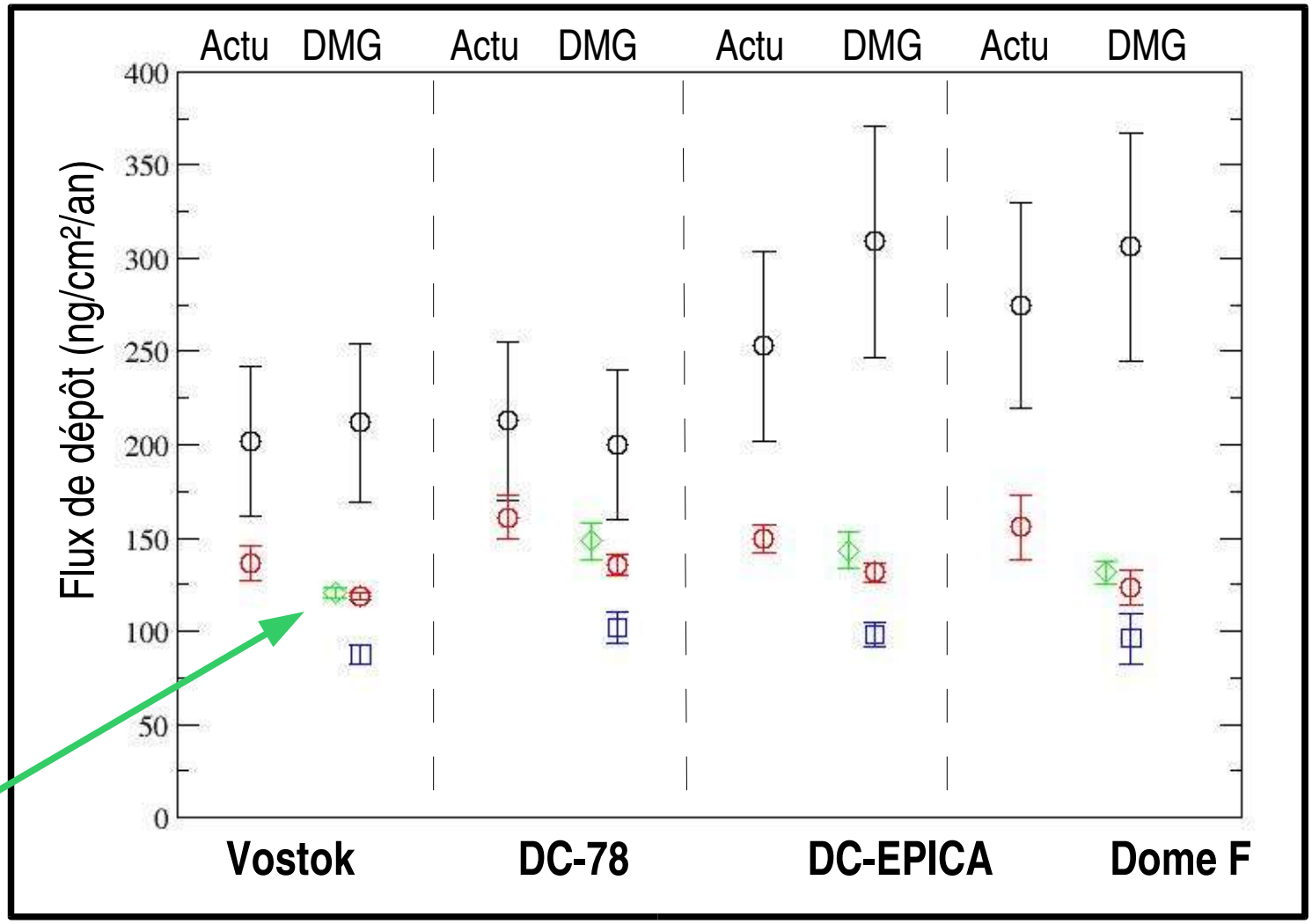
Importance de la glace de mer **estivale**

Climat actuel

Climat DMG Gers/Krinner

Climat DMG Climap

Climat DMG glace de mer actuelle



# 5. Le cycle du soufre au DMG : processus dominants

nss $SO_4^{2-}$

**Tests de sensibilité :**

- ✓ Oxydants
- ✓ Circulation atmosphérique
- ✓ Flux de DMS

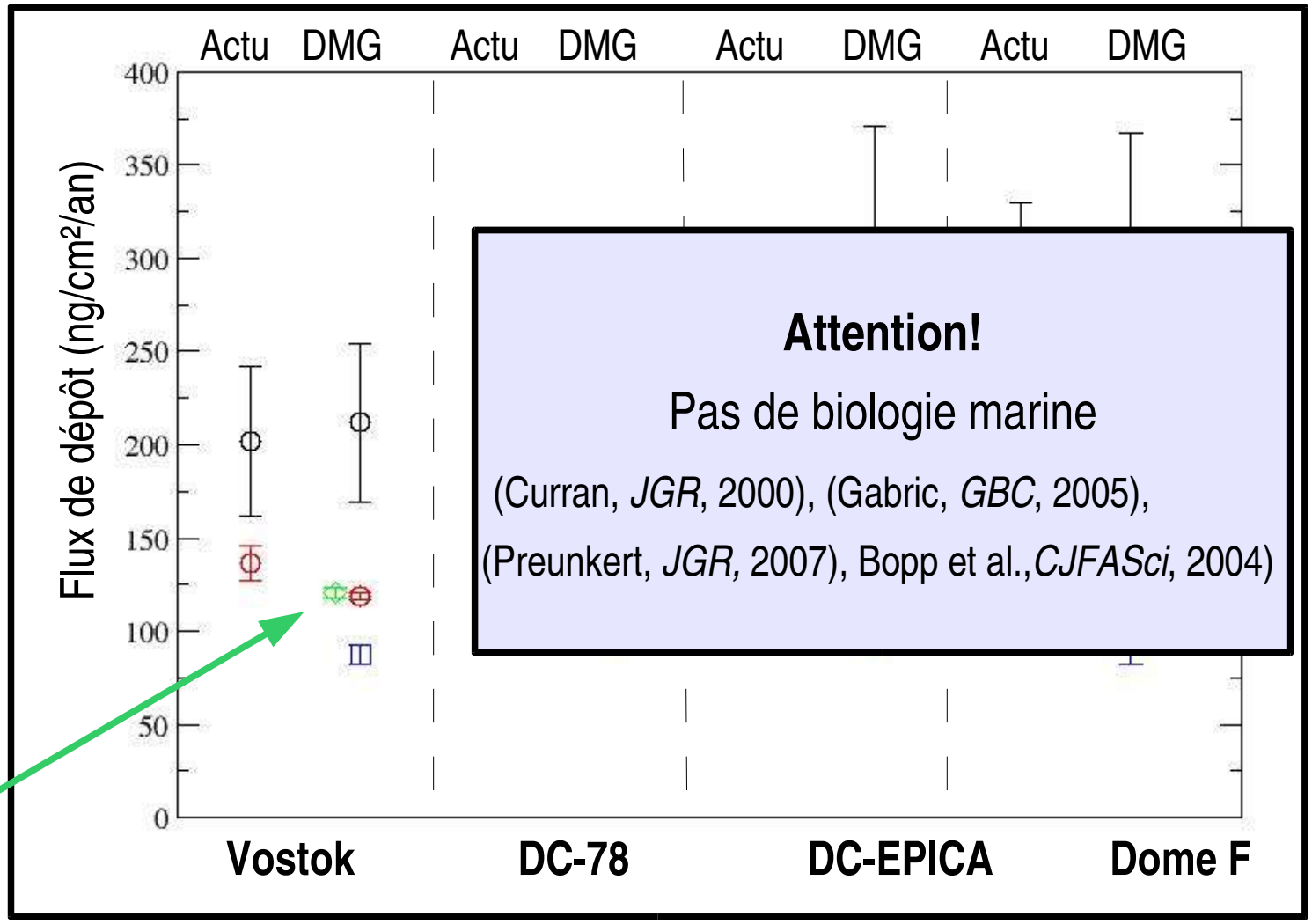
Importance de la glace de mer **estivale**

Climat actuel

Climat DMG Gers/Krinner

Climat DMG Climap

Climat DMG glace de mer actuelle




**Attention!**

Pas de biologie marine

(Curran, *JGR*, 2000), (Gabric, *GBC*, 2005), (Preunkert, *JGR*, 2007), Bopp et al.,*CJFASci*, 2004)

# 5. Le cycle du soufre au DMG : conclusion

- ✓ Bonne représentation de la stabilité des flux de dépôt de nss $SO_4^{2-}$
- ✓ Processus dominant dans le modèle : glace de mer estivale

Mais sous-estimation des flux de dépôt

**Incertitudes**

- processus de dépôt
- représentativité du MSA dans la glace
- relations glace de mer - phytoplancton
- températures de surface des océans

# 6. Conclusions - Perspectives

**Un modèle 3D de chimie du soufre**
**validé pour les moyennes et hautes latitudes Sud ...**

- mise à jour du schéma chimique
- bonne cohérence globale avec les observations

# 6. Conclusions - Perspectives

**Un modèle 3D de chimie du soufre**
**validé pour les moyennes et hautes latitudes Sud ...**

- mise à jour du schéma chimique
- bonne cohérence ch

**Première simulation**
**du cycle du soufre au**
**Dernier Maximum Glaciaire**

- nouvelle représentation de la couverture de glace de mer
- processus dominant : glace de mer estivale
- bonne représentation de la stabilité des flux de dépôt des aérosols de nss $SO_4^{2-}$

# 6. Perspectives

**LMD-Z 4 – INCA :** modèle de chimie-aérosols

Antarctique-Soufre

réactions connues manquantes (hétérogène, BrO, $O_3$, interactions air-neige)

# 6. Perspectives

**LMD-Z 4 – INCA :** modèle de chimie-aérosols

Antarctique-Soufre

réactions connues manquantes (hétérogène, BrO, $O_3$, interactions air-neige)

**Données expérimentales :**

- ✓ Cinétique chimique (mécanismes, vitesses de réactions ...)
- ✓ Observations antarctiques

# 6. Perspectives

**LMD-Z 4 – INCA :** modèle de chimie-aérosols

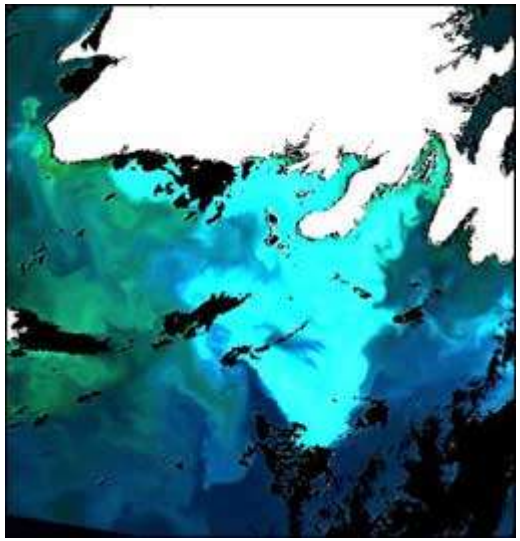
Antarctique-Soufre

réactions connues manquantes (hétérogène, BrO, $O_3$, interactions air-neige)

**Données expérimentales :**

- ✓ Cinétique chimique (mécanismes, vitesses de réactions ...)
- ✓ Observations antarctiques

**Climatologie de Belviso et al. (2004) :** vérifier son impact sur les cycles saisonniers et sur les flux de dépôt en aérosols sur le plateau Est.



# 6. Perspectives

**LMD-Z 4 – INCA :** modèle de chimie-aérosols

Antarctique-Soufre

réactions connues manquantes (hétérogène, BrO, $O_3$, interactions air-neige)

**Données expérimentales :**

- ✓ Cinétique chimique (mécanismes, vitesses de réactions ...)
- ✓ Observations antarctiques

**Climatologie de Belviso et al. (2004) :** vérifier son impact sur les cycles saisonniers et sur les flux de dépôt en aérosols sur le plateau Est.

**Le Dernier Maximum Glaciaire**

- évaluer les dépôts sur le continent
- mise à jour des conditions aux limites

# 6. Perspectives

**LMD-Z 4 – INCA :** modèle de chimie-aérosols

Antarctique-Soufre

réactions connues manquantes (hétérogène, BrO, $O_3$, interactions air-neige)

**Données expérimentales :**

- ✓ Cinétique chimique (mécanismes, vitesses de réactions ...)
- ✓ Observations antarctiques

**Climatologie de Belviso et al. (2004) :** vérifier son impact sur les cycles saisonniers et sur les flux de dépôt en aérosols sur le plateau Est.

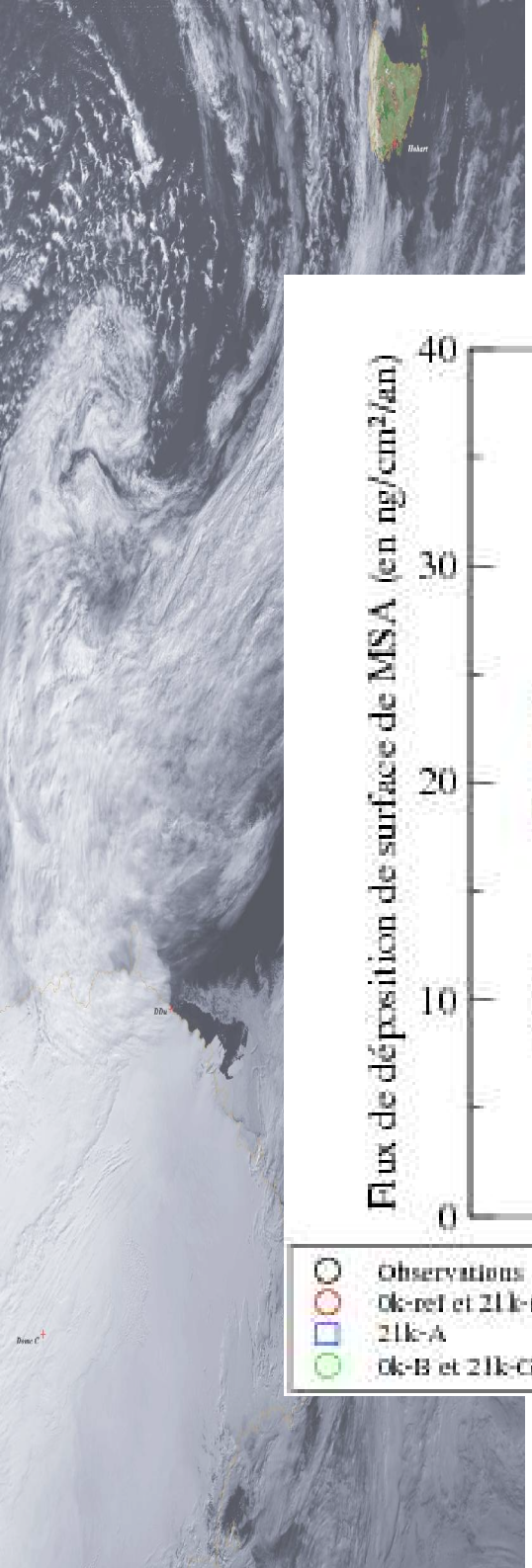
**Le Dernier Maximum Glaciaire**

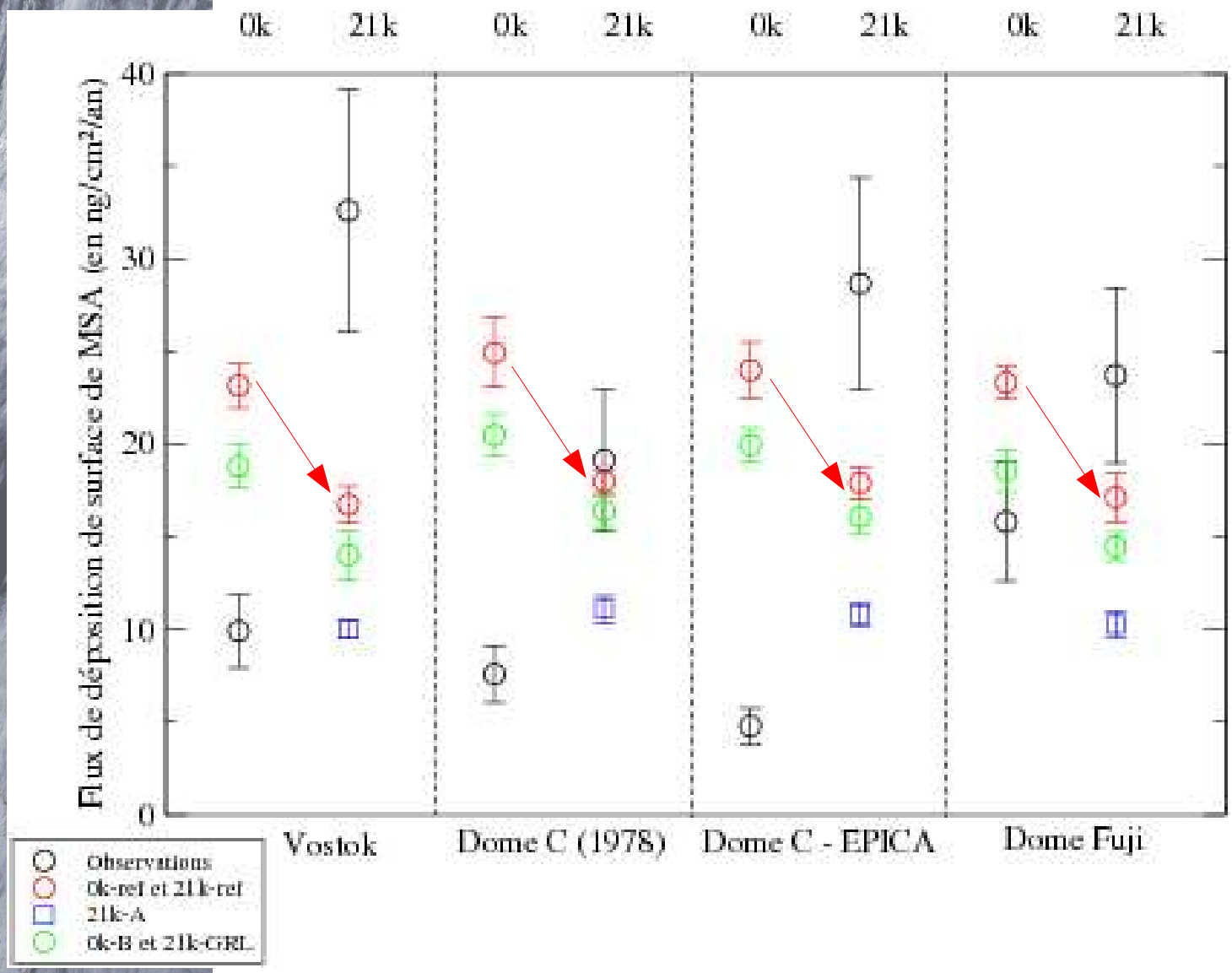
- évaluer les dépôts sur le continent
- mise à jour des conditions aux limites

**LMDZ 4 – INCA pour prévoir l'évolution du climat dans le futur ?**

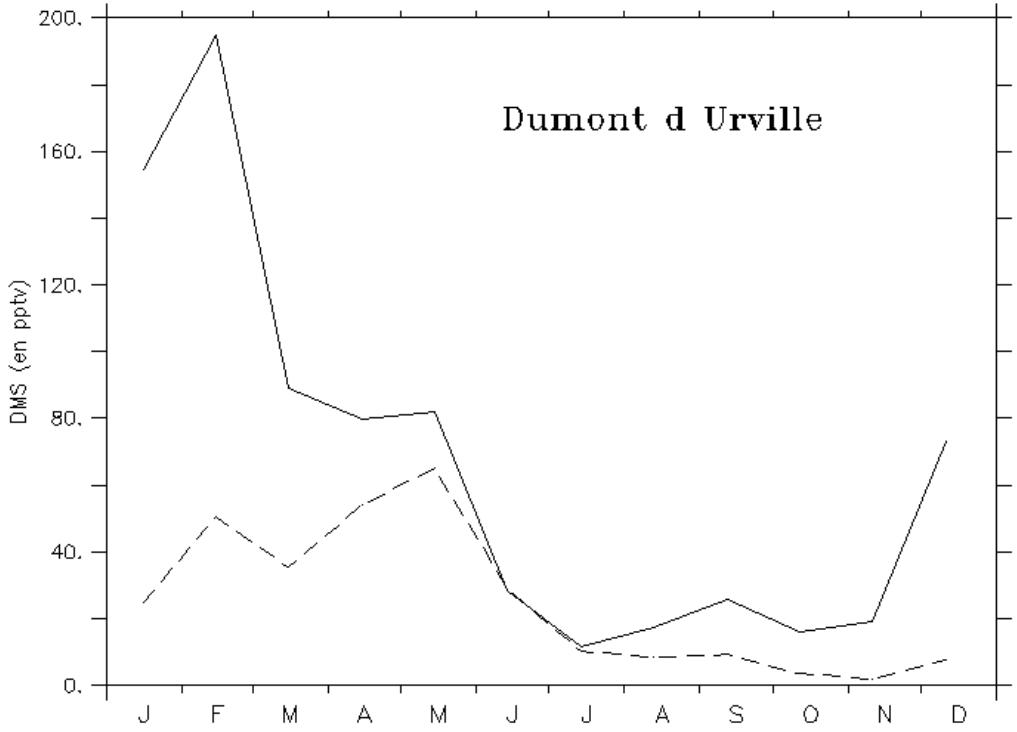
Intégrer l'effet radiatif des aérosols

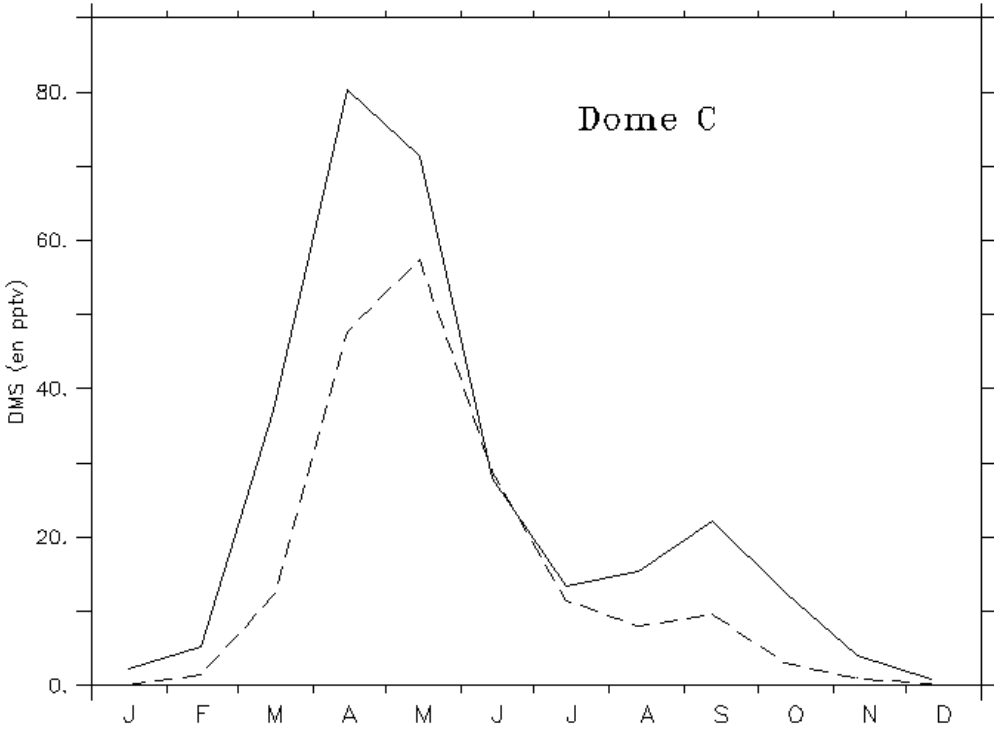
Merci de votre attention!

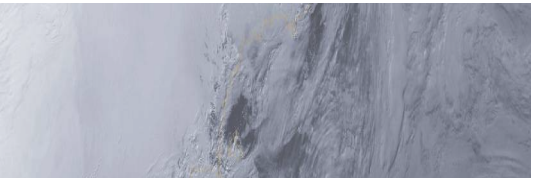



0k
21k
0k
21k
0k
21k
0k
21k
Flux de déposition de surface de MSA (en ng/cm²/an)
40
30
20
10
0
Vostok
Dome C (1978)
Dome C - EPICA
Dome Fuji
Observations
0k-ref et 21k-ref
21k-A
0k-B et 21k-GRL

# Le cycle du soufre au DMG : saisonnalité du cycle du soufre



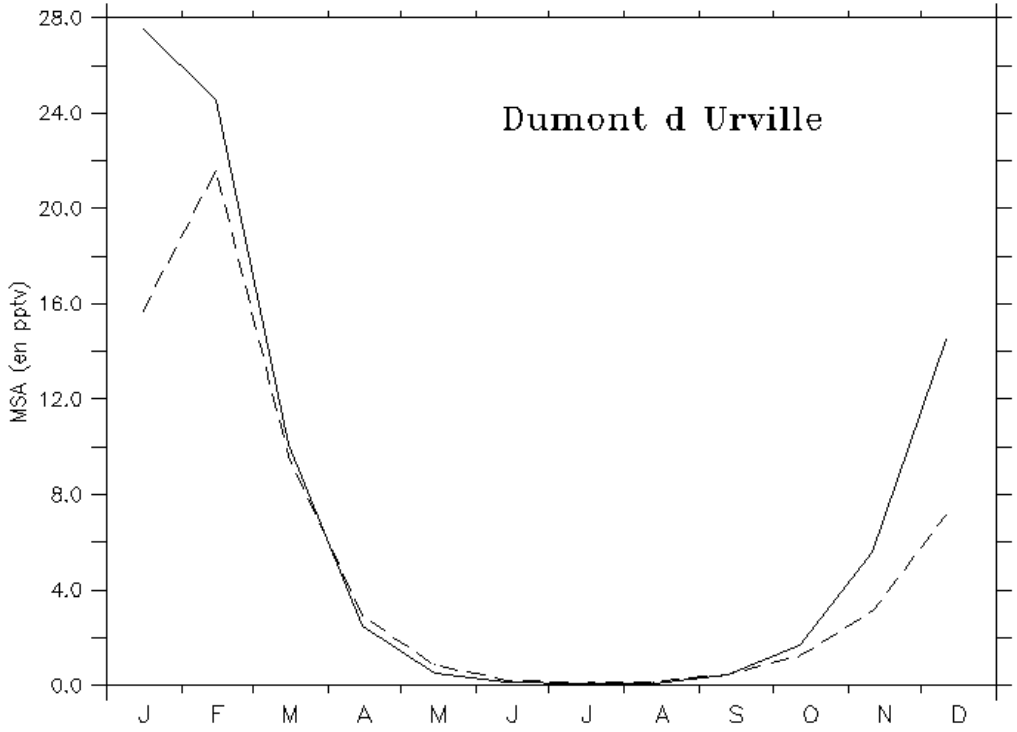



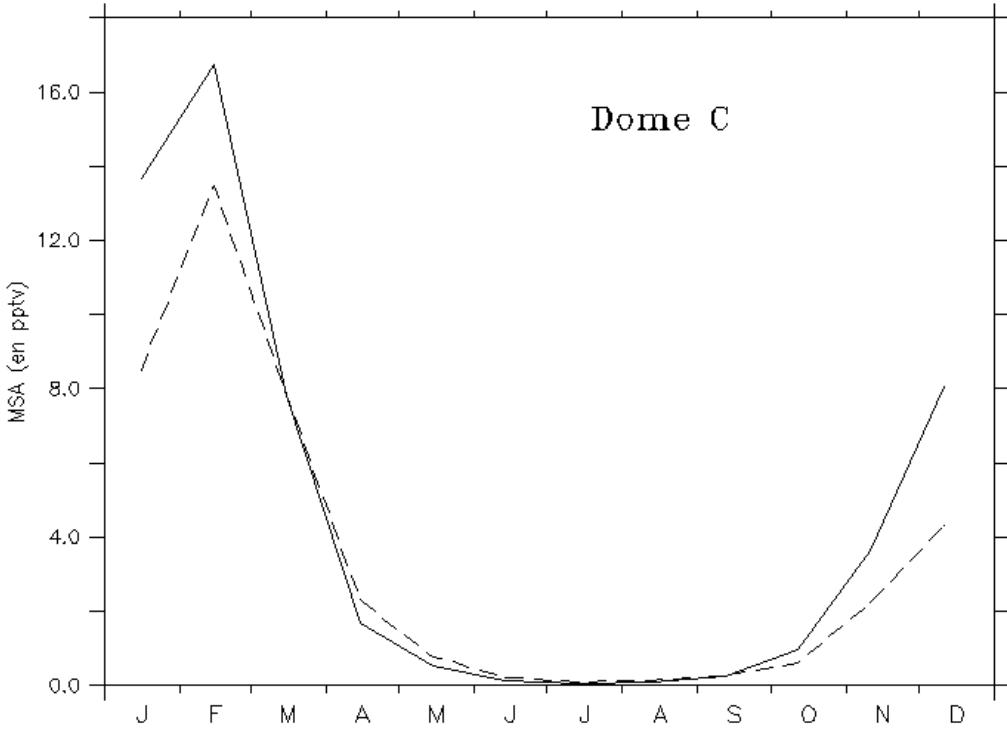



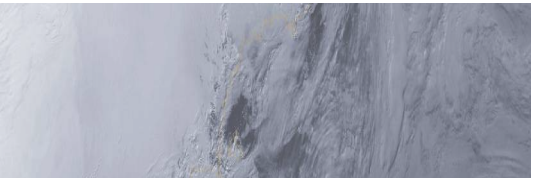
Climat actuel

Dernier Maximum Glaciaire

# Le cycle du soufre au DMG : saisonnalité du cycle du soufre



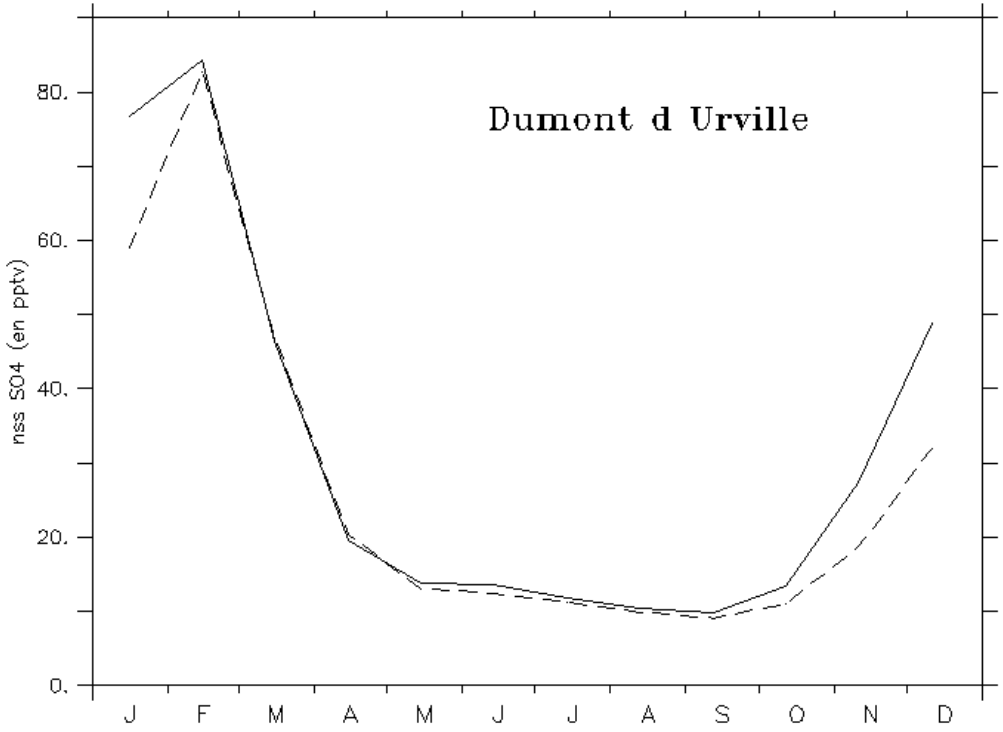



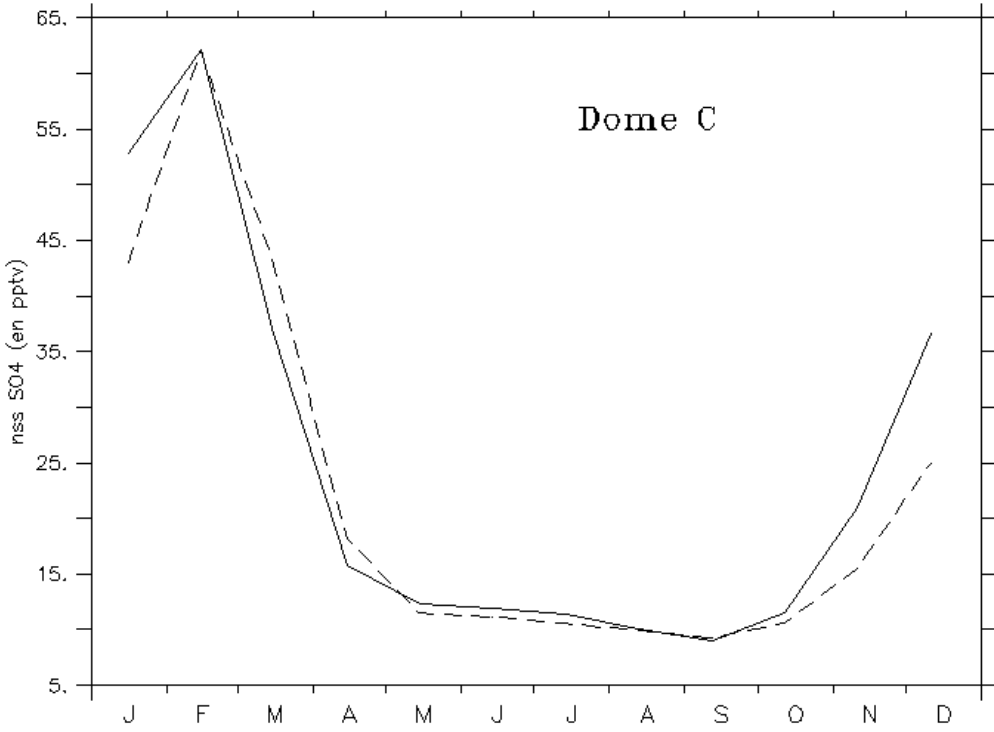



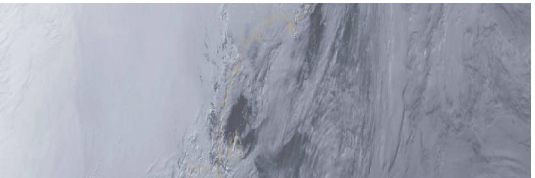
Climat actuel

Dernier Maximum Glaciaire

# Le cycle du soufre au DMG : saisonnalité du cycle du soufre



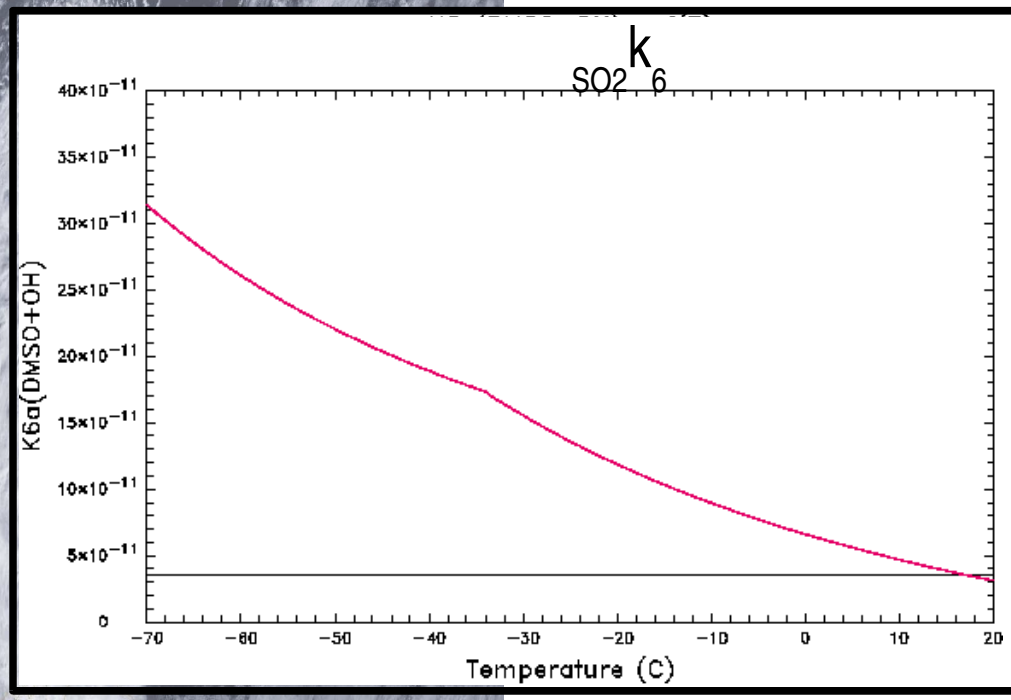



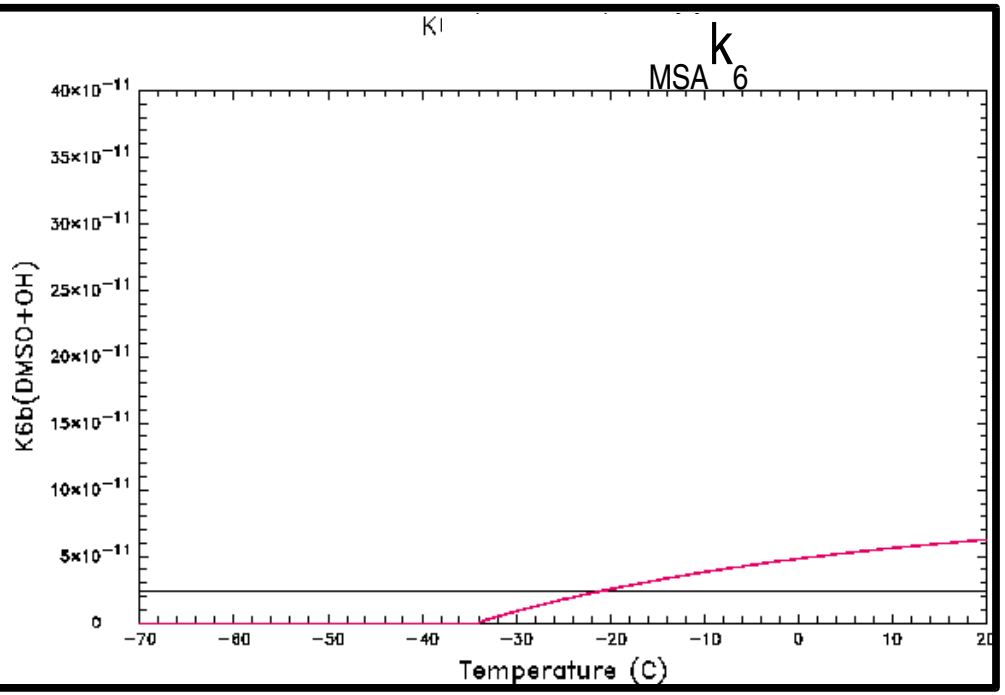



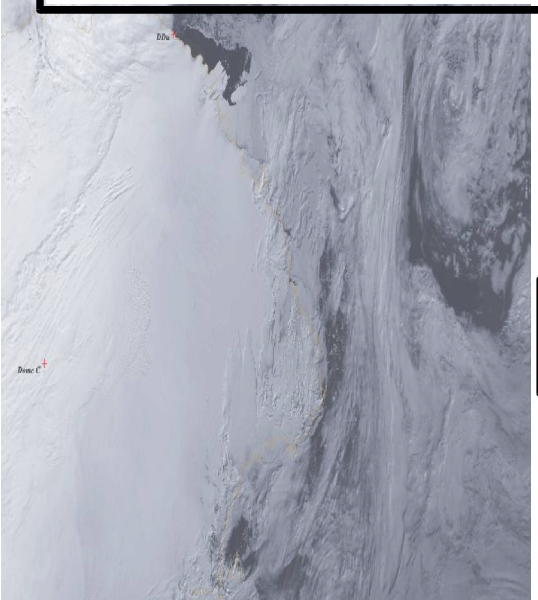
Climat actuel

Dernier Maximum Glaciaire

# La mise à jour du modèle : évaluation



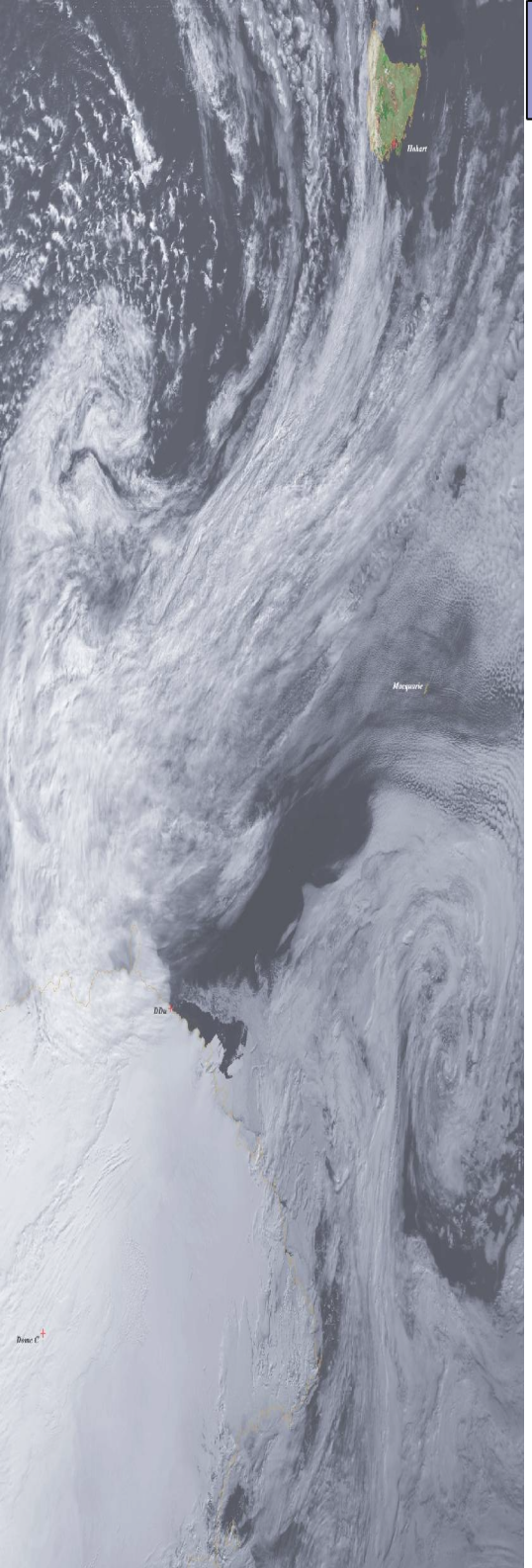



DMSO+OH $\xrightarrow{k_6}$

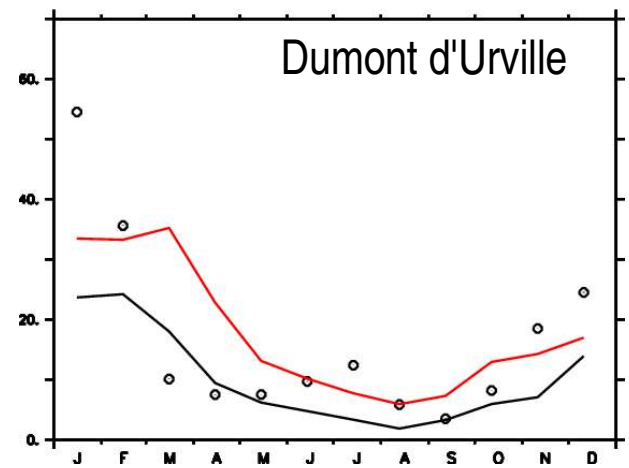
- $0{,}6\ SO_2 + 0{,}4\ MSA$ (chimie «originale»)
- $\beta_{SO2} SO2 + \beta_{MSA} MSA$ (chimie «2007»)

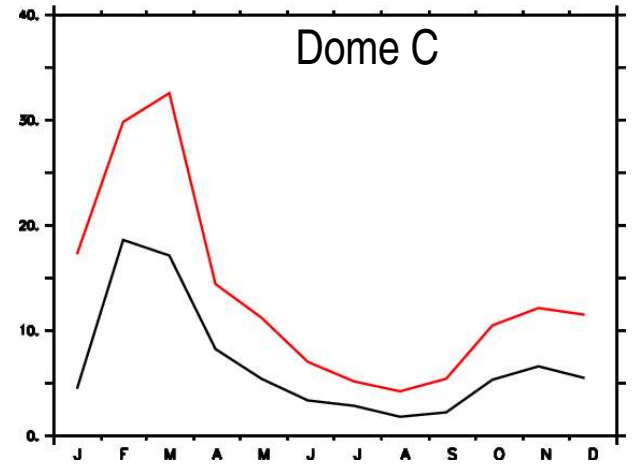
$\beta_{SO2}$=-0,0123(T-320) et $\beta_{MSA}$=1-$\beta_{SO2}$

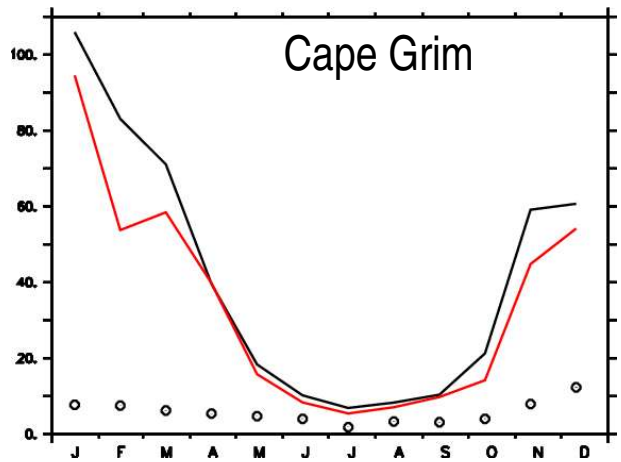


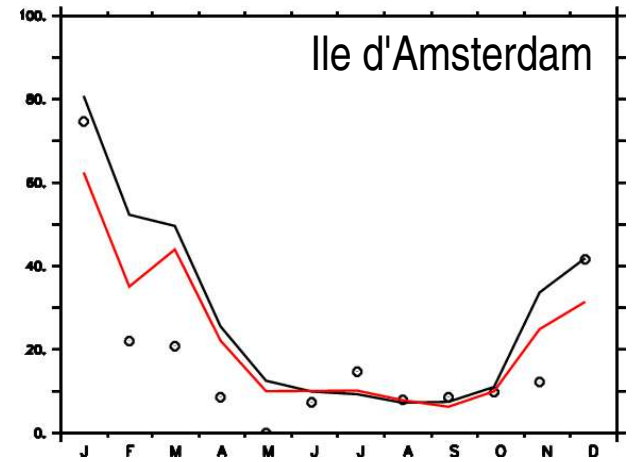
# La mise à jour du modèle : évaluation

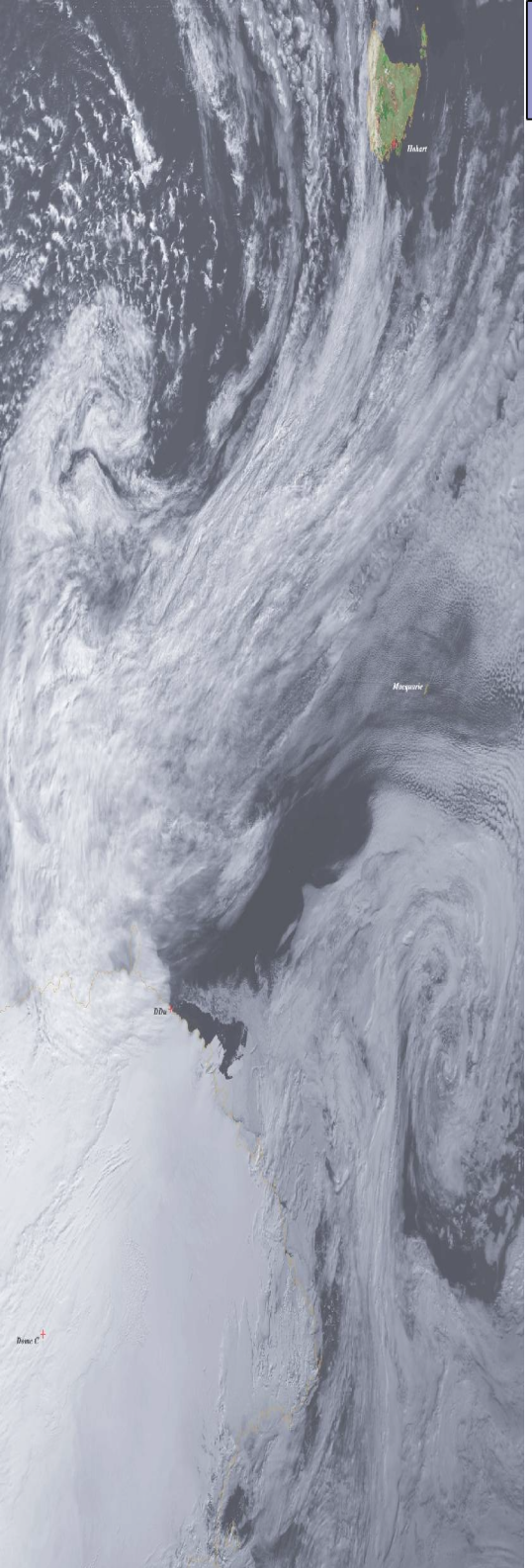
$SO_2$



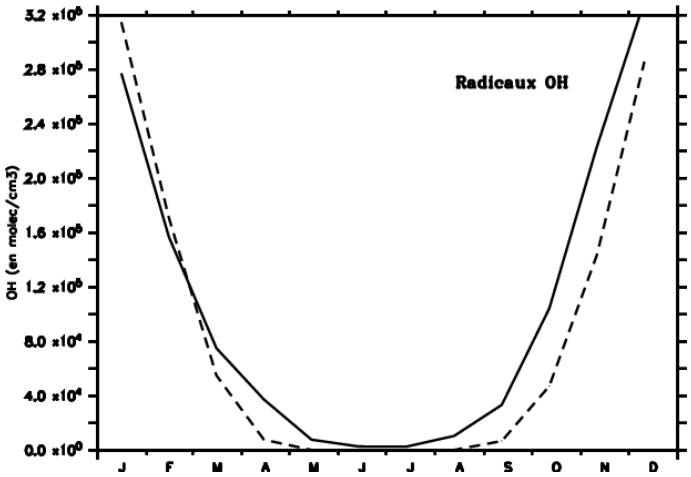



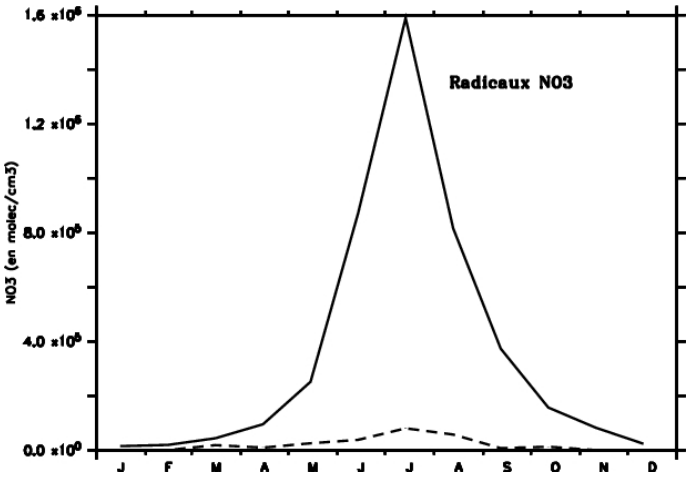





# Les oxydants

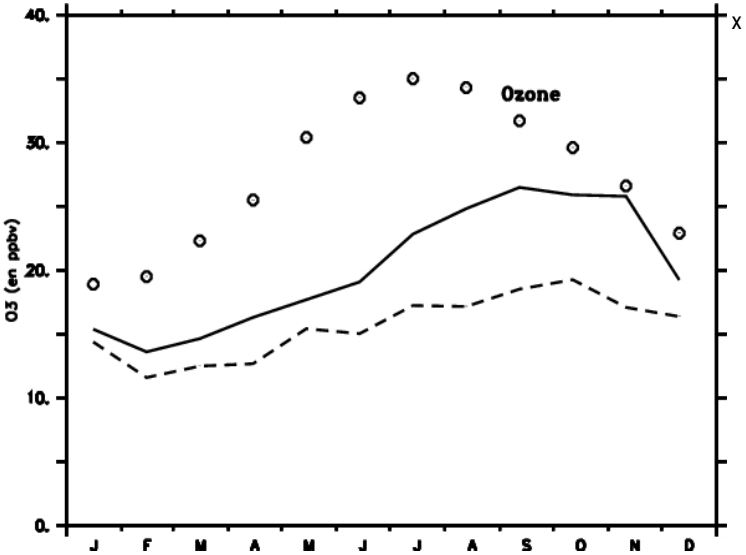



DDU

Dome C

x




x