



HAL
open science

Évolution des propriétés physico-chimiques des aérosols désertiques issus de l'outflow africain

Nelson Bègue

► **To cite this version:**

Nelson Bègue. Évolution des propriétés physico-chimiques des aérosols désertiques issus de l'outflow africain. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université de la Réunion, 2012. Français. NNT : 2012LARE0009 . tel-01139901

HAL Id: tel-01139901

<https://theses.hal.science/tel-01139901>

Submitted on 7 Apr 2015

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

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



UNIVERSITE DE LA REUNION

ECOLE DOCTORALE SCIENCES, TECHNOLOGIE ET SANTE

Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy, UMR 8105)

THESE DE DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'Université de La Réunion

Discipline : Physique

Spécialité : Physique de l'Atmosphère

présentée par

Nelson BEGUE

Evolution des propriétés physico-chimiques des aérosols désertiques issus de l'outflow africain

Soutenue publiquement le 27 novembre 2012 devant le jury composé de :

Directeur de thèse :	M. Pierre TULET
Rapporteur :	M. Jacques PELON
Rapporteur :	M. Laurent MENUT
Examinatrice :	Mme. Karine SELLEGRI
Examineur :	M. Jean-Luc BARAY
Examineur :	M. Hassan BENCHERIF

Remerciements

Le temps fait tourner la grande roue de la vie comme l'eau celui des moulins, et me voilà déjà à la fin de ces années de thèse. Ces trois années auront été riches en apprentissage, en problèmes divers et variés, mais aussi remplies de bon moment. Bien qu'étant une aventure personnelle, un travail de thèse ne peut être réalisé sans le soutien et la confiance d'un grand nombre de personnes. Leur support et leurs encouragements ont été grandement appréciés. Un merci, grand ou petit, me semble bien dérisoire en comparaison de tout ce que j'ai appris à leurs côtés. Néanmoins, je tiens à les rendre hommage au sein de ce chapitre important : les remerciements.

Ce travail de recherche a été réalisé grâce au support financier du conseil régional de la Réunion, que je remercie grandement. Cette thèse a été réalisée au sein du Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy, UMR 8105) de l'Université de la Réunion, dont je remercie l'ancien et le nouveau directeur, à savoir respectivement Robert Delmas et Pierre Tulet, de m'avoir accueilli. Je remercie également Jean-Luc BARAY, le responsable de l'équipe « Troposphère », et l'ensemble de l'équipe de m'avoir chaleureusement accueilli.

Ma reconnaissance et ma sincère gratitude vont à Pierre Tulet, mon directeur de thèse, qui m'a soutenu et encadré avec bienveillance tout au long de ce travail. Je le remercie également pour sa rigueur et ses connaissances scientifiques, qui m'ont été bénéfiques tout au long de ces trois années.

Je remercie Hassan Benchérif du LACy pour son encadrement lors de la réalisation de mon stage de Master sur la caractérisation et la variabilité de la tropopause tropicale et également pour m'avoir donné l'envie de poursuivre en thèse. Je le remercie également d'avoir accepté de présider mon jury de thèse. J'en profite également pour remercier les autres membres du jury : Jacques Pelon (rapporteur, LATMOS, Paris), Laurent Menut (rapporteur, LMD-Polytechnique, Palaiseau), Karine Sellegri (examinatrice, LaMP-OPGC, Clermont-Ferrand) et Jean-Luc Barray (examinateur, LACy, Réunion), pour leur

temps consacré à la lecture et à la critique du manuscrit, ainsi que pour les remarques et questions soulevées lors de la soutenance.

Je remercie Jean-Pierre Chaboureau du Laboratoire d'Aérodynamique (LA) de Toulouse pour son aide précieuse pour l'utilisation du simulateur LIDAR de Méso-NH. J'en profite également pour remercier Marc Mallet du LA pour son aide pour le calcul des indices de réfraction des aérosols désertiques utiles à la réalisation de mes simulations. A ce sujet, je remercie toute l'équipe de Méso-NH pour leur support. En particulier, je tiens à remercier Juan Escobar pour toute son aide technique pour l'utilisation de Méso-NH sur les calculateurs de l'IDRIS et du CINES. En ce qui concerne ce volet technique, je ne voudrais surtout pas oublier de remercier Delphine Ramalingom du Centre de Calcul de l'Université de la Réunion (CCUR), Christelle Barthe et David Barbary pour leur aide précieuse pour l'utilisation de Méso-NH sur le ordinateur TITAN. Par ailleurs, je remercie l'équipe informatique du LACy pour leur disponibilité lors des divers « bug » que j'ai rencontré sur ma machine.

Je tiens à remercier toutes les personnes du LACy que j'ai côtoyées durant ces trois années, pour leur soutien et leur chaleureuse compagnie. Il y a également certaines personnes qui méritent un remerciement spécial, en particulier toutes celles qui ont été à mes côtés dans les moments les plus difficiles, qui ont créé et partagé tant de si bons souvenirs avec moi :

Il y a bien sûr mes deux acolytes du midi, Jean-Marc Metzger (alias Bernard) et Jimmy Leclair de Bellevue. Je leur suis très reconnaissant pour leur soutien sans failles, leur bonne humeur et leurs conseils. Un grand merci à Jimmy pour m'avoir encadré et soutenu dans mes activités d'enseignant en physique. Je lui suis tout particulièrement reconnaissant de m'avoir permis d'enseigner l'optique, durant deux années consécutives, pour les PACES (Première Année du Cycle d'Etude Médicale).

J'adresse un grand merci à Joyce Poyen pour s'être bien occupé de moi durant ces trois années de thèse et qui a su toujours prendre le temps pour m'écouter et m'aider dans toutes mes démarches administratives.

Je remercie également les doctorants et les docteurs du LACy pour la bonne ambiance et leur aide : Chouaïbou Ibrahim, Nahoudha Mzé, Christophe Bovalo, Valentin Duflot, Dorothée Lesouëf, Marie-Dominique Leroux et Jonathan Durand.

Encore une fois merci à tous les membres du LACy.

Je ne pouvais pas conclure ce chapitre des remerciements sans émettre une pensée pour ma famille. En effet, ces trois années de thèse n'auraient pas été les mêmes sans la présence continue de la famille. Je remercie mes parents pour leur soutien sans faille durant ces longues années d'études. Je remercie également mon frère et sa petite famille pour leurs conseils et leurs encouragements.

Avant de laisser la place au mot de la fin, je tenais également à remercier le lecteur qui par essence justifie la rédaction de ce manuscrit.

En conclusion, je voudrais en un merci général et final remercier tous ceux dont l'émotion me fait omettre de citer dans ce chapitre, et qui ont participé de près comme de loin à la réalisation de ce travail de recherche : soyez en remercier

Table des matières

Introduction générale.....	11
Chapitre 1 : Notions sur les aérosols atmosphériques.....	23
1.1 Introduction.....	23
1.2 Caractéristiques générales	24
1.2.1 Les sources et les flux des particules d'aérosols à l'échelle globale	24
1.2.2 Composition chimique et mélange des particules d'aérosols.....	26
1.2.3 Distribution granulométrique et évolution des populations d'aérosols.....	28
1.3 Interaction des aérosols avec le rayonnement	31
1.3.1 Atténuation du rayonnement par l'atmosphère.....	31
1.3.2 Indice de réfraction complexe.....	34
1.3.3 Propriétés optiques	35
1.3.4 Dépendance spectrale	38
1.4 Impact radiatif des aérosols	39
1.4.1 L'effet radiatif direct.....	40
1.4.2 L'effet radiatif indirect.....	43
1.4.3 L'effet radiatif semi direct	44
1.5 Propriétés hygroscopiques.....	46
1.6 Caractéristiques des aérosols désertiques nord africains.....	48
1.6.1 Les principales zones sources à l'échelle globale	48
1.6.2 Zones sources et saisonnalité des émissions nord africaines	54
1.6.3 Le mode de production	59
1.6.4 Les mécanismes de soulèvement.....	63
1.6.5 Principales voies de transport du panache à grande échelle.....	67
1.6.6 Propriétés physico-chimiques et optiques	70
1.7 Conclusion	74
Chapitre 2 : Moyens d'observation et de modélisation des aérosols désertiques.....	77
2.1 La stratégie mise en œuvre	77
2.2 La télédétection photométrique	78
2.2.1 Description du photomètre solaire et du réseau AERONET.....	78
2.2.2 Caractérisation des propriétés optiques et microphysiques	80

2.3	Les données de la campagne EUCAARI	83
2.3.1	Description du projet européen EUCAARI.....	83
2.3.2	Instrumentations.....	84
2.4	Les observations spatiales.....	93
2.4.1	OMI.....	94
2.4.1	CALIOP	96
2.5	La modélisation numérique.....	97
2.5.1	Description du modèle atmosphérique Méso-NH	98
2.5.2	Le schéma de surface SurfEX.....	99
2.5.3	Le schéma de convection profonde	101
2.5.4	Le schéma microphysique	102
2.5.5	Le schéma de chimie gazeuse	102
2.5.6	Le schéma aérosols.....	103
2.5.7	Le simulateur LIDAR.....	111
Chapitre 3 : Transport d'aérosols désertiques vers l'Europe du Nord : l'épisode de mai 2008		113
3.1	Introduction.....	113
3.2	Description des conditions météorologiques.....	114
3.3	Formation et transport d'un panache d'aérosols désertiques au-dessus de l'Europe	118
3.3.1	La chronologie du transport d'un panache d'aérosols minéraux vers l'Europe du Nord ..	118
3.3.2	Mise en évidence d'un transport d'aérosols désertiques vers l'Europe du Nord.....	120
3.4	Analyse quantitative.....	128
3.4.1	Evaluation du flux net.....	128
3.4.2	Evaluation du dépôt humide	131
3.5	Discussion et conclusion.....	139
Chapitre 4 : Etude du vieillissement des aérosols désertiques de l'épisode de mai 2008		143
4.1	Introduction.....	143
4.2	La présence d'aérosols désertiques au-dessus des Pays-Bas.....	144
4.3	Evolution des propriétés optiques par lessivage.....	147
4.3.1	Les propriétés optiques du panache d'aérosols désertiques.....	147
4.3.2	Mise en évidence d'un filtrage dimensionnel	157
4.3	Influence possible du mélange sur l'évolution des propriétés hygroscopiques du panache d'aérosols désertiques	161
4.4	Discussion et conclusion.....	168
Conclusions générales et perspectives.....		173

Références bibliographiques	181
ANNEXE	217
Annexe A : Paramétrisation des aérosols désertiques par le modèle DEAD	217
Annexe B : Article Bègue et al (2012).....	221
Liste des figures.....	243
Liste des tableaux.....	251
Abstract	253
Résumé.....	254

Introduction générale

Le système climatique terrestre est un système complexe composé de cinq sphères : atmosphère, cryosphère, biosphère, lithosphère et hydrosphère. Chacune de ces sphères interagissent continuellement avec les autres à travers divers processus physiques, chimiques et biologiques. Ce système évolue dans le temps sous l'influence de sa propre dynamique interne mais aussi sous l'effet de perturbations externes qui sont appelées « forçages ». Ces perturbations externes sont soit naturelles ou anthropiques du fait de l'influence qu'exerce aujourd'hui l'homme sur le système climatique terrestre. L'impact des activités humaines sur le climat est devenu aujourd'hui l'un des enjeux scientifiques et de sociétés majeurs pour les prochaines décennies.

Parmi les différentes sphères composant le système climatique terrestre, l'atmosphère est l'un des milieux les plus rapidement affectés par ces perturbations. L'atmosphère se présente selon un découpage simple en couches successives en fonction du signe du gradient vertical de température (Fig. 0.1). Suivant ce critère, l'atmosphère terrestre se compose de quatre couches : la troposphère, la stratosphère, la mésosphère et la thermosphère. Ce découpage est complété par des couches séparatrices dont le nom est composé du suffixe « pause » : la tropopause, la stratopause et la mésopause. L'influence des perturbations anthropiques sur le système climatique est essentiellement suivie par la communauté scientifique au travers de la physico-chimie troposphérique. La troposphère est la première couche atmosphérique rencontrée au niveau du sol. Elle s'étend jusqu'à la tropopause, sa limite supérieure, dont l'altitude varie

selon la saison entre 7 et 9 km au-dessus des pôles et entre 15 et 18 km au niveau de l'équateur. La troposphère constitue la couche où ont lieu la plupart des phénomènes météorologiques et, étant en contact avec la surface terrestre, est plus rapidement affectée par les activités humaines.

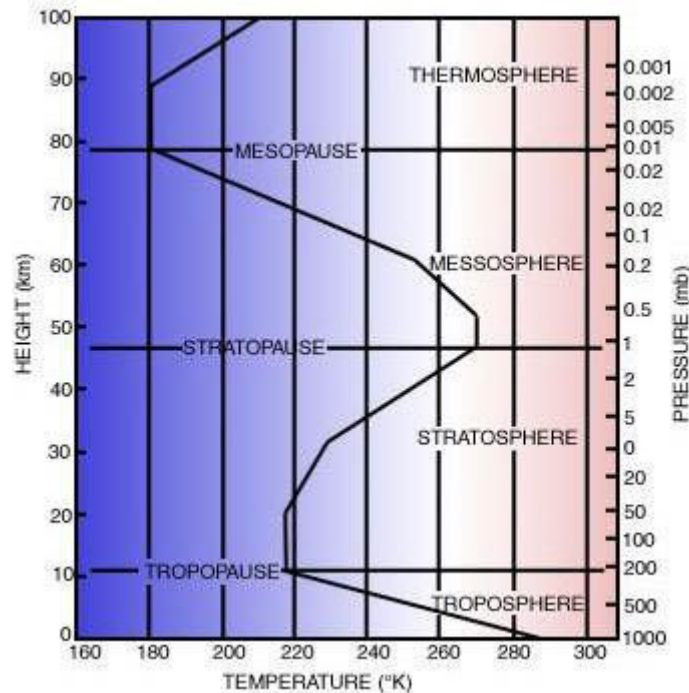


Figure 0.1 : Structure thermique des couches atmosphériques (source : <http://www.smha.btck.co.uk>).

Depuis le début de l'ère industrielle, les activités humaines ont modifié significativement la composition chimique de l'atmosphère. Ainsi, en un peu moins de deux siècles, les rejets de certains gaz n'ont cessé d'augmenter, la concentration atmosphérique du dioxyde de carbone (CO_2) est passée de 270 à 350 ppm, celle du méthane (CH_4) de 700 à 1800 ppb et celle des oxydes nitreux (N_2O) de 270 à 320 ppm. Au cours de la même période, la température globale à la surface de la Terre a augmenté de $0.6 \pm 0.2^\circ\text{C}$ (Fig. 0.2), et le niveau moyen des mers est monté de 10 à 20 cm, laissant envisager une tendance au réchauffement global. En effet, les études réalisées jusqu'à ce jour sont unanimes quant à un changement climatique induit par les rejets de gaz anthropiques, mais également par l'injection de constituant non-gazeux, tel que les aérosols, dans l'atmosphère. Néanmoins l'étude du changement climatique est très complexe, car certains processus font encore l'objet de recherche et les propriétés physiques

de certains constituants de l'atmosphère, comme les aérosols, sont encore mal connues.

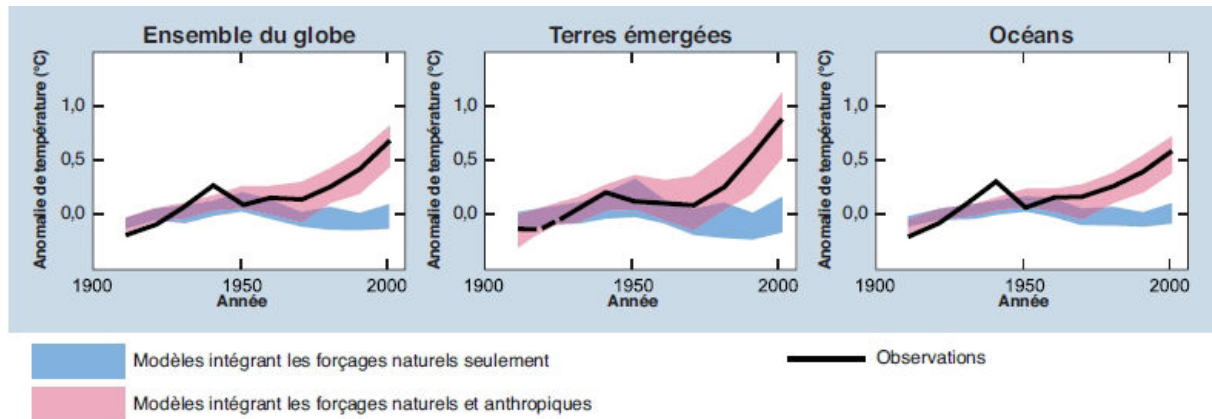


Figure 0.2 : Comparaison des variations de la température en surface observées (trait noir) à l'échelle du globe et des continents avec les résultats simulés par des modèles climatiques intégrant les forçages naturels seulement ou les forçages naturels et anthropiques pour la période de 1906 à 2005. Les bandes ombrées en bleu indiquent la fourchette comprise entre 5 et 95% des simulations qui ne considèrent que les forçages naturels produit par l'activité solaire et volcanique. Les bandes ombrées en rouge représentent la fourchette comprise entre 5 et 95% des simulations prenant en compte que les forçages naturels et anthropiques (d'après IPCC 2007).

Les aérosols peuvent influencer de nombreux processus qui déterminent le climat terrestre. Tout d'abord, ils peuvent exercer un **effet direct** par diffusion et absorption du rayonnement électromagnétique solaire et tellurique, agissant ainsi sur les échanges d'énergie dans l'atmosphère et en surface. Puisque l'énergie radiative est le moteur qui met en mouvement la machine thermique atmosphérique, l'effet radiatif direct des aérosols influence en cascade tous les processus de transfert d'énergie dans l'atmosphère. Ainsi l'atmosphère se comportera différemment en présence ou non d'aérosols. Une conséquence de l'effet direct est l'impact sur la formation et/ou le maintien des nuages en réponse aux changements thermodynamiques de l'atmosphère (**effet semi-direct**). Les aérosols peuvent ainsi également influencer le développement et le cycle des nuages au travers de la microphysique nuageuse (**effet indirect**).

L'attrait pour l'étude des aérosols n'est pas uniquement motivé par des raisons climatiques mais également par des raisons sanitaires et environnementales. En

effet, à l'échelle urbaine, les questions qui se posent concernant la pollution atmosphérique sont relative à la prévision des pics de pollution et aux facteurs les provoquant ainsi qu'à la dégradation de la qualité de l'air et à son impact sur la santé publique.

L'augmentation du nombre de personnes allergiques et asthmatiques liée à la pollution particulaire atmosphérique dans les zones urbaines, indique que les aérosols sont aussi impliqués dans un bon nombre d'affection pulmonaire (Donaldson et al., 2001). En effet, en respirant l'être humain entraîne des millions d'aérosols dans ces poumons qui se déposent, suivant leur taille, dans ses voies respiratoires (Fig. 0.3).

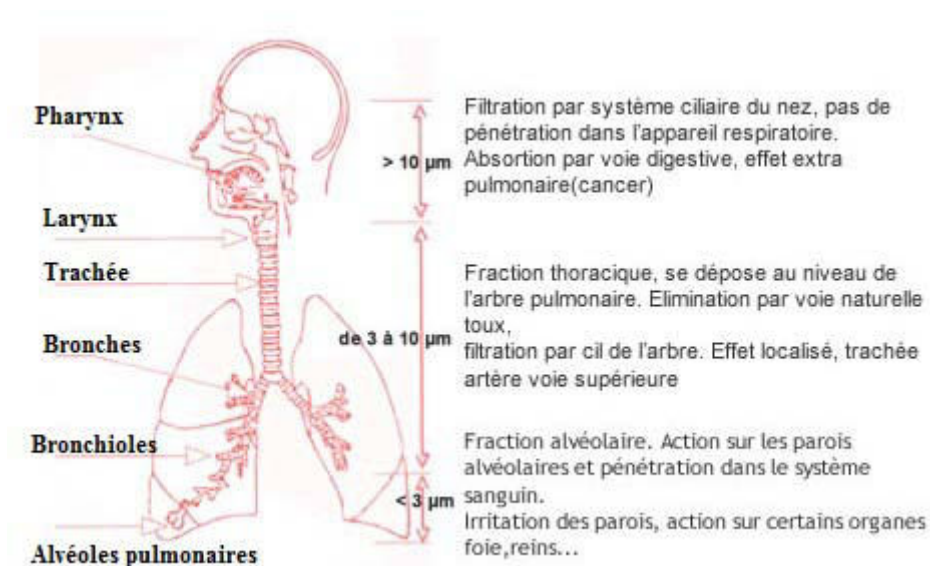


Figure 0.3 : Parcours des aérosols inhalés dans l'appareil respiratoire humain selon leur diamètre (source : <http://www.atmospacca.org>).

Ramgolam et al (2009) ont montré que les aérosols, dont le diamètre est inférieur à 3 µm, peuvent pénétrer profondément le système respiratoire pour atteindre les alvéoles pulmonaires (Fig. 0.3) ; on parle alors de pollution par les particules fines. D'autant plus que ces particules d'aérosols peuvent véhiculer des composés toxiques, cancérigènes comme les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Ainsi l'exposition à une concentration élevée de ces particules fines peut engendrer de nombreux effets néfastes sur la santé, tel qu'une inflammation pulmonaire et voire même une thrombose vasculaire qui

peut être mortelle (Nemmar et al., 2003). Les effets nuisibles des aérosols sur la santé dépendent ainsi de leur taille et de leur composition chimique.

Un groupe d'expert réuni par l'Agence Française de Sécurité Sanitaire de l'Environnement (AFSSE) a estimé pour l'année 2002 l'impact sur la santé d'une exposition chronique aux particules fines de diamètre inférieur à 2.5 μm ($\text{PM}_{2.5}$) dans 76 agglomérations françaises. Cette étude a mis en évidence que 600 à 1100 décès par cancer du poumon (6% à 11% de la mortalité par cancer du poumon) et 3000 à 5000 décès par maladie cardio-respiratoire (5% à 7% de la mortalité de cette nature), serait attribuable à une exposition chronique au $\text{PM}_{2.5}$ (AFSSE, 2005).

En 2004, une étude sur l'impact sanitaire de la pollution atmosphérique en terme de diminution d'espérance de vie a été réalisée dans les 26 villes du programme APHEIS (Air Pollution and Health : European Information System) par l'AFSSE. Cette étude a estimée à 11 375 le nombre de décès prématurés qui pourraient être prévenus chaque année si, toutes choses égales par ailleurs, l'exposition à long terme aux $\text{PM}_{2.5}$ était ramenée à 20 $\mu\text{g.m}^{-3}$ dans chaque ville. De plus, sa réduction à 15 $\mu\text{g.m}^{-3}$ entraînerait la prévention de quelques 16 926 décès prématurés. Une moyenne annuelle qui n'excéderait pas 15 $\mu\text{g.m}^{-3}$ se traduirait par un gain de 2 à 13 mois d'espérance de vie pour une personne de 30 ans (AFSSE, 2005). La figure 0.4 montre l'estimation de la diminution de l'espérance de vie (en mois) en Europe attribuable à l'exposition à long terme aux $\text{PM}_{2.5}$ pour l'année 2000.

Les aérosols agissent également sur l'environnement, et notamment par le biais de dépôt de particules sur les sols et la végétation. Ces dépôts d'aérosols en surface peuvent être bénéfiques dans le cas d'apport en nitrate et phosphate (Tyson et al., 2002), mais également néfastes dans le cas des dépôts acides, tels que les pluies acides (principalement des aérosols sulfatés). Les dépôts acides peuvent ralentir la croissance des végétaux en acidifiant le sol à partir duquel les racines obtiennent leurs éléments nutritifs. De plus, Steiner et Chameides (2005) ont mis en évidence que la baisse des rendements des cultures peut être causée par une altération de l'activité photosynthétique des végétaux par les aérosols. Par ailleurs, les aérosols contribuent également au développement de

l'écosystème marin. En effet, les dépôts d'éléments de type ferreux (principalement des aérosols minéraux) dans les régions océaniques, contribuent à la croissance des phytoplanctons (Martin et al., 1988).

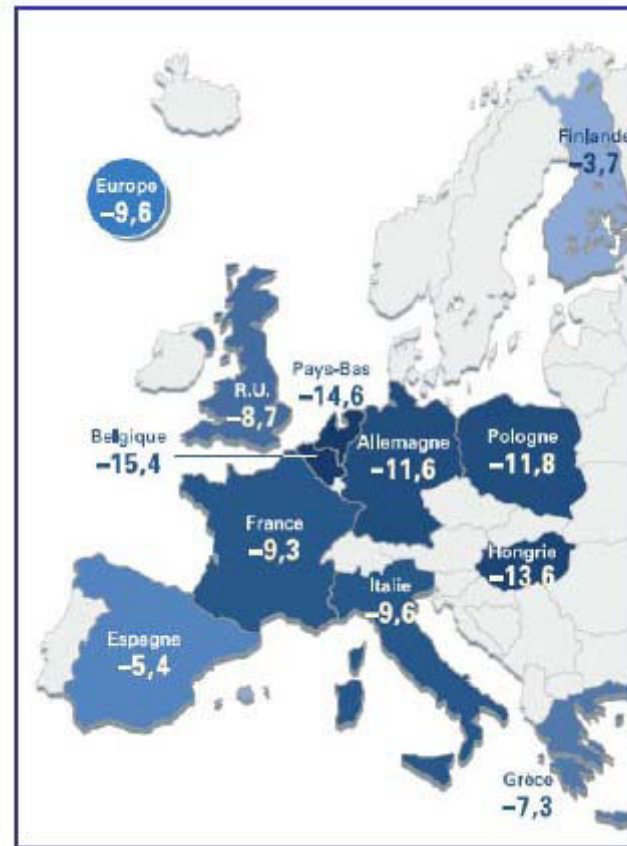


Figure 0.4 : Estimation de la diminution de l'espérance de vie (en mois) en Europe imputable aux aérosols dont le diamètre est inférieur à $2.5 \mu\text{m}$; Situation 2000 (D'après AFSSE, 2005)

Enjeux et Objectifs de la thèse

Les aérosols influencent significativement le bilan radiatif et la qualité de l'air (Anderson et al., 2003). L'étude des propriétés optiques et radiatives des aérosols devient donc un enjeu majeur tant du point de vue du questionnement scientifique sur le climat futur, que du point de vue public et des décideurs politiques vis-à-vis des questions environnementales et de la santé publique. Malgré les progrès scientifiques accomplis dans ces domaines de recherche, les sources d'incertitude concernant le rôle des aérosols sur la pollution atmosphérique et le bilan radiatif terrestre sont encore importantes. Selon Foster et al (2007), notre compréhension

du forçage radiatif induit par les aérosols reste partielle, interdisant ainsi aujourd'hui de formuler une conclusion définitive sur l'impact des aérosols.

Les incertitudes qui accompagnent la quantification de l'effet radiatif des aérosols proviennent avant tout des incertitudes qui résultent de l'estimation de leurs propriétés optiques. Les propriétés optiques des aérosols définissent la manière dont ils vont interagir avec le rayonnement solaire et tellurique. Ces propriétés optiques sont néanmoins difficiles à déterminer car elles dépendent des propriétés microphysiques et chimiques de l'aérosol. Sous le terme générique d'« aérosols », c'est en fait une multitude de particules aux caractéristiques différentes que l'on regroupe. C'est de cette grande variabilité que naissent les difficultés de l'étude des aérosols mais aussi tout le défi scientifique.

Une fois que les aérosols sont émis dans l'atmosphère, de nombreux processus affectent leur évolution. Les aérosols peuvent subir des changements relatifs à leur taille et/ou leur composition chimique, on parle de vieillissement. Cette évolution se produit au travers de divers processus tels que la condensation ou l'évaporation d'espèces gazeuses en surface des particules, des réactions chimiques, la coagulation avec d'autres particules, ou bien encore par l'activation en noyaux de condensation pour former des gouttelettes de nuages, ou des particules de glace. Une fois en suspension, tous les aérosols sont susceptibles de retourner à la surface, par les processus de dépôt sec et humide. La figure 0.5 illustre schématiquement l'ensemble des processus de croissance et de vieillissement intervenant dans le cycle de vie des aérosols, de la formation au dépôt des aérosols.

Les incertitudes accompagnant l'estimation des propriétés optiques des aérosols proviennent ainsi essentiellement des difficultés d'appréhension du comportement physico-chimique de ces derniers depuis leur formation jusqu'à leur dépôt.

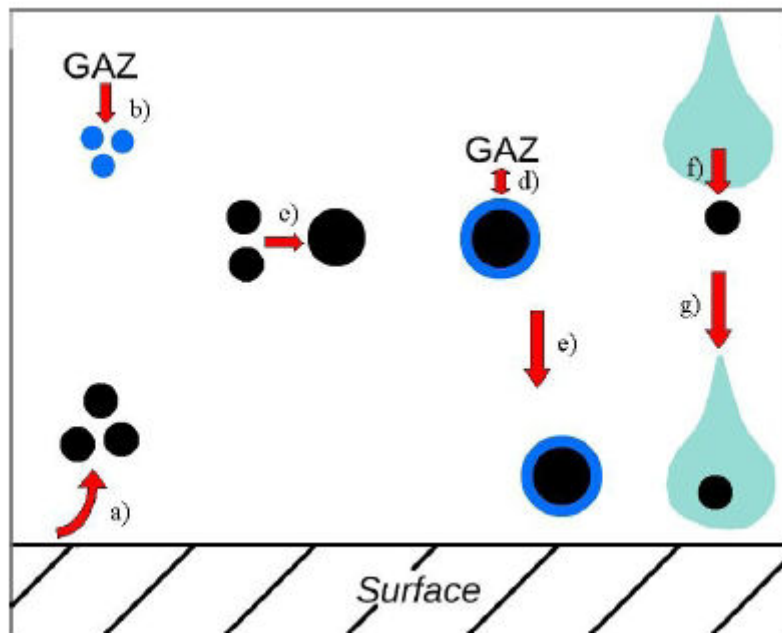


Figure 0.5 : Illustration schématique des processus de croissance et de vieillissement intervenant dans le cycle de vie des aérosols, de la formation au dépôt des aérosols. Les divers processus sont indiqués par les lettres suivantes : a) l'émission, b) la nucléation, c) la coagulation, d) la condensation, e) la sédimentation/le dépôt sec, f) la collection, g) le dépôt humide (source : Aouizerats, 2010).

Il apparaît donc primordial de réduire les incertitudes associées aux aérosols en améliorant la qualité des ensembles de données d'observation tout en couplant celles-ci à des modèles numériques. Parallèlement aux campagnes de mesure, les modèles numériques sont devenus des outils indispensables pour estimer l'impact des aérosols sur la pollution atmosphérique et sur le bilan radiatif terrestre (Todd et al., 2008). La prise en compte des aérosols dans les modèles numériques reste cependant encore un problème ardu. En effet, les processus affectant les aérosols s'effectuent à des échelles spatiales et temporelles qu'il n'est toujours évident à paramétrer au sein des modèles. Représenter de façon réaliste l'évolution des aérosols ainsi que leurs interactions apparaît comme un enjeu évident. D'autant plus crucial, étant donné que les modèles numériques sont utiles à la compréhension de processus clés, mais aussi déterminant pour la projection du climat futur, ou encore dans la prévision des épisodes de pollution intense. Il existe ainsi un réel intérêt à étudier les aérosols, avec pour finalité la

caractérisation de leurs propriétés « macrophysiques » (localisation des sources, processus d'émission, transport...) et microphysiques.

L'objectif de cette thèse est d'étudier le vieillissement d'un panache d'aérosols désertiques dans le temps et dans l'espace. Compte tenu de la nature de cet objectif, il a été nécessaire de rechercher un cas d'étude permettant d'y répondre. Ainsi, les travaux menés durant cette thèse s'appuient sur l'analyse d'un important épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains vers l'Europe. Du 25 au 31 mai 2008, un important panache d'aérosols désertiques nord africains a atteint les rives de la mer du Nord, dans des conditions météorologiques perturbées par le passage d'un système dépressionnaire au-dessus de la région méditerranéenne. Selon Klein et al (2010), cet épisode est considéré comme l'évènement de transport d'aérosols désertiques nord africains le plus important de ces cinq dernières années observé au-dessus du continent européen. Malgré son caractère inhabituel en terme d'intensité, cet évènement a fait l'objet de très peu d'étude (Bangart et al., 2012 ; Klein et al., 2010 ; Pappalardo et al., 2010) jusqu'à présent. Ainsi de ce cas d'étude, il émane l'objectif d'étudier l'évolution des propriétés physico-chimiques de ce panache d'aérosols désertiques au cours de son transport vers l'Europe. En particulier, il en ressort deux questions scientifiques qui vont définir les deux grands axes de recherche de ce travail. D'une part, quelle va être l'influence de cette perturbation météorologique sur la granulométrie du panache d'aérosols désertiques, et d'une autre part comment vont évoluer les propriétés physico-chimiques de ces aérosols désertiques par mélange avec les aérosols de pollution d'origine anthropique.

La méthodologie mise en place pour répondre à ces questions s'appuie sur une approche combinant les observations et la modélisation. Le modèle utilisé pour ce travail est un modèle de recherche atmosphérique non-hydrostatique : Méso-NH (Lafore et al., 1998). L'aptitude de ce modèle pour l'étude des aérosols désertiques, et des aérosols en général, a été démontrée par le biais de plusieurs études (BouKaram et al., 2009 ; Chaboureau et al., 2010 ; Crumeyrolle et al., 2008 ; Mari et al., 2001 ; Tulet et al., 2008, 2010). L'originalité de cette étude est la disponibilité et l'utilisation de données d'observation localisées le long de

la trajectoire du panache, permettant ainsi le suivi de l'évolution des propriétés du panache d'aérosols désertiques dans l'espace et dans le temps. Les données utilisées dans cette étude ont été collectées durant la campagne EUCAARI 2008 (European Integrated Project on Aerosol-Cloud-Climate and Air Quality Interactions), mais également par le réseau mondial AERONET (AERosol RObotic NETwork). Afin de compléter les observations dans le temps et dans l'espace, il a été utile d'associer à ces jeux de données des observations spatiales de CALIPSO et de OMI

Plan du manuscrit

La thèse présentée ici s'articule autour de quatre chapitres, qui tentent de répondre chacun à un objectif précis.

Le **chapitre 1** sera consacré à l'introduction des notions générales sur les aérosols atmosphériques utiles à notre étude. Plus particulièrement, il sera présenté au sein de ce chapitre un état des connaissances sur les caractéristiques des aérosols désertiques de l'Afrique du Nord.

Le **chapitre 2** s'attachera à décrire les instruments dont les données seront utilisées dans cette étude. Il sera également exposé au sein de ce chapitre une description du modèle numérique utilisé à travers une présentation des schémas numériques des processus impliqués.

Le **chapitre 3** sera dédié à l'étude qualitative et quantitative de l'épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains vers le nord de l'Europe. Après une brève présentation des conditions météorologiques, il sera présenté l'influence de l'activité convective présente en Europe central et le bassin méditerranéen sur les propriétés macroscopiques du panache d'aérosols désertiques.

Le **chapitre 4** s'attachera à exposer les résultats de l'étude de l'évolution des propriétés du panache d'aérosols désertiques. Il sera d'une part abordé dans ce chapitre, l'influence de l'activité convective sur l'évolution des caractéristiques optiques des aérosols désertiques, et d'une autre part l'influence du mélange avec

INTRODUCTION GENERALE

les aérosols de pollution d'origine anthropique sur les capacités hygroscopiques des aérosols désertiques.

.

Chapitre 1 : Notions sur les aérosols atmosphériques

1.1 Introduction

Bien que l'atmosphère terrestre se compose principalement de gaz, les aérosols jouent un rôle significatif sur celle-ci. Les aérosols sont par définition, toutes les particules liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux qui forment les nuages. Selon leur taille et leur composition très variables, ils peuvent interagir avec le rayonnement visible et tellurique. Ainsi ils diffusent et/ou absorbent le rayonnement, influençant donc directement le climat de la Terre. Cependant, en raison de leur courte durée de vie et des nombreuses interactions qu'ils subissent dans la troposphère, leurs concentrations et leurs propriétés (physiques, chimiques...) à l'échelle globale sont encore mal connues. Compte tenu du rôle qu'ils occupent dans l'atmosphère, il est nécessaire aujourd'hui de mieux caractériser les concentrations et les propriétés des aérosols atmosphériques.

Dans ce chapitre il sera présenté les notions fondamentales liées aux aérosols atmosphériques. Tout particulièrement, il sera présenté uniquement les notions qui nous seront utiles pour notre étude. Au sein de ce chapitre une attention particulière sera accordée aux caractéristiques des aérosols désertiques, et plus particulièrement ceux de l'Afrique du Nord, qui concernent notre étude.

1.2 Caractéristiques générales

1.2.1 Les sources et les flux des particules d'aérosols à l'échelle globale

Selon leur origine, les aérosols sont classés en deux familles principales, les aérosols d'origine naturelle et ceux d'origine anthropique. Dans les deux cas on peut séparer les aérosols primaires formés directement, de l'émission des aérosols secondaires qui eux se forment dans l'atmosphère à posteriori de l'émission par le biais de processus de transformation de gaz en particule.

Les estimations des émissions des particules d'aérosols en fonction de leur origine (anthropique ou naturelle) ou leur mode de formation (primaire ou secondaire) sont résumées dans le tableau 1.1. Les émissions naturelles représentent 90 à 95% de la masse des aérosols émis alors que les émissions anthropiques uniquement 5 à 10%. L'information issue de ces estimations est une faible contribution des activités anthropiques au cycle des aérosols. Pourtant cette vision est trompeuse. En effet, les activités anthropiques sont responsables de 70 à 90% de la concentration en nombre d'aérosols émis dans l'atmosphère (Delmas et al., 2005).

Les aérosols primaires représentent une fraction importante de ces aérosols d'origine naturelle (Table 1.1). Les principales sources sont les aérosols désertiques (Prospero et al., 2002 ; Ginoux and Middleton, 2001), les sources biogéniques, les embruns marins (DeLeew et al., 2011), les cendres issus de l'activité volcanique (Stohl et al., 2011) et des feux de forêts (Andreae, 1991 ; Liousse et al., 2004). Les aérosols primaires sont produits principalement des processus mécaniques, tels que l'abrasion, l'érosion liée à des phénomènes éoliens ou encore les frottements. Les aérosols primaires d'origine anthropique tels que le carbone suie, le carbone organique ou les poussières organiques résultent principalement de combustion (industrielle, domestique, feux de biomasse), du transport, ou des chantiers de construction.

Les aérosols secondaires inorganiques (sulfates, nitrates, ammonium) ou organiques sont formés à partir de processus de conversion gaz-particules au

travers des phénomènes de nucléation, condensation ou adsorption ou par réaction en phase aqueuse par l'intermédiaire des gouttes d'eau nuageuses. Les gaz précurseurs peuvent provenir d'émission par le sol (par suite à l'utilisation d'engrais), par la végétation (Composés Organiques Volatiles biogéniques comme le terpène et l'isoprène), par les écosystèmes océaniques (le diméthyle sulfate émis par les phytoplanctons) ou par les activités humaines (combustions de combustibles fossiles au travers de la production d'énergie, du transport, des activités industrielles...).

Source	Estimation annuelle (Tg/an)
Aérosols primaires	
Carbone suie	
Issus des combustibles fossiles	2-8
Issus des feux de biomasse	3-14
Carbone organique	
Issus des combustibles fossiles	1-5
Issus des feux de biomasse	16-72
aérosols désertiques	1000-3000
Poussières industrielles	40-130
Sels marins	1000-6000
Aérosols secondaires	
Sulfates	
Issus de SO ₂ anthropiques	66-90
Issus du dimethylsulfide	17-24
Issus des volcans	6-9
Nitrates	
Issus des NO _x anthropiques	10-19
Issus des NO _x biogéniques	2-8
Carbone organique	
Issus des COV anthropiques	0.3-1.8
Issus des COV biogéniques	8-40
Pourcentage des sources anthropiques	5-10%
Pourcentage des sources naturelles	90-95%

Table 1.1 : Estimation des émissions annuelles (en Tg/an) des principaux types d'aérosols (sources IPCC 2001, 2007). D'après Péré (2010)

La multiplicité des sources, à la fois naturelles et anthropiques, induit une très grande diversité de leurs compositions chimiques et par extension de leurs propriétés microphysiques et optiques.

1.2.2 Composition chimique et mélange des particules d'aérosols

La composition chimique des aérosols dépend à la fois des sources d'émission mais aussi des transformations qu'ils subissent dans l'atmosphère. Les travaux de Clain et al (1995) illustre bien la difficulté de connaître la composition chimique de l'aérosol puisque des milliers d'espèces peuvent être identifiées, chacune d'entre elles ne représentant qu'une fraction limitée de la masse totale de l'aérosol. Les principales espèces chimiques constitutives de l'aérosol sont le carbone suie, les carbones organiques primaires et secondaires, les sels marins, l'ammonium, les sulfates, les nitrates, l'eau et les poussières.

Le carbone suie (BC) est une substance noirâtre particulièrement riche en carbone peu réactive chimiquement, résultant de processus de combustion (de fuel fossiles et de biomasse). Le carbone organique peut être émis directement dans l'atmosphère (OC) par des sources d'origines anthropiques (combustion incomplète des dérivés du pétrole, de bois, d'ordure ménagères...) ou naturelle. Il peut aussi être formé par nucléation ou condensation des produits de dégradation photochimique des composés organiques volatils (COV). On parle d'aérosols organiques secondaires (SOA). Ces COV peuvent provenir de la végétation (terpène, limonène, isoprène...) ou être issus de sources anthropiques (benzène, toluène...).

Les poussières peuvent être naturelles (érosion des sols, aérosols désertiques) ou anthropiques (usures des pneus, cimenterie, agriculture...). Les émissions des sels marins sont quant à eux fonction du vent à la surface des océans. L'ammonium est issu de la condensation de l'ammoniaque émis principalement par les activités agricoles. Les sulfates sont des particules formées essentiellement en phase aqueuse par condensation de l'acide sulfurique émis principalement par les activités industrielles. Cette espèce peut également apparaître sous forme de particule lorsque les gouttelettes s'évaporent sans précipiter. Les nitrates se forment à partir de l'acide nitrique. L'acide nitrique à

deux voies de formation privilégiées. D'une part, il apparaît en phase gazeuse et d'autre part en phase hétérogène sur les particules ou les gouttelettes d'eau nuageuse. La présence d'eau dans la particule dépend de la température ambiante, de l'humidité relative et de la composition chimique des particules. Certains sels comme le nitrate d'ammonium ou le sulfate d'ammonium ont une hygroscopicité élevée et peuvent fixer une quantité d'eau importante.

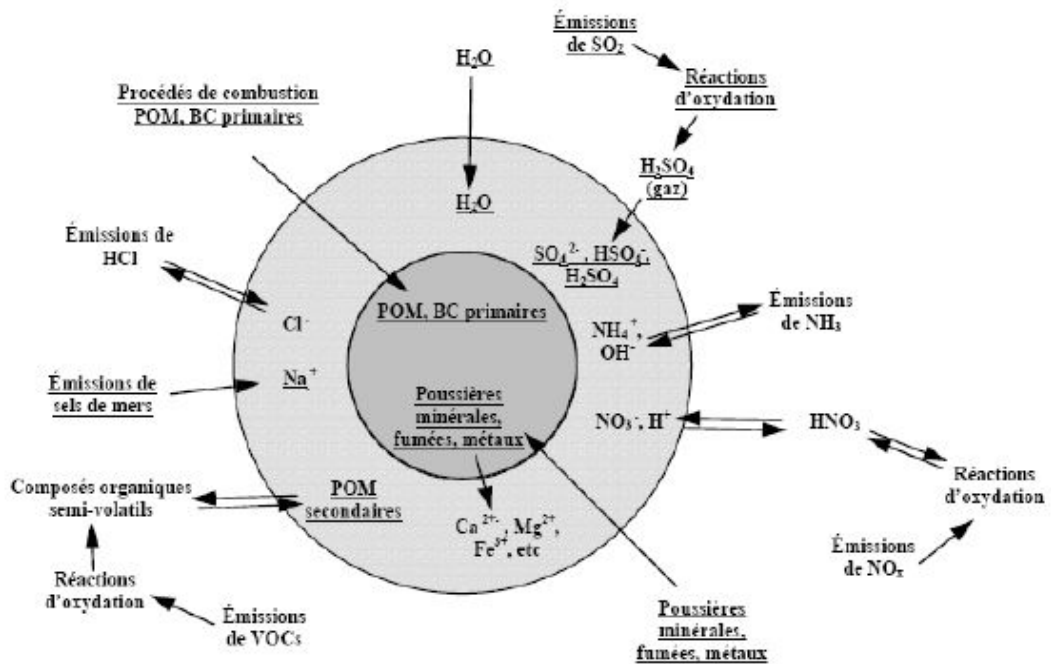


Figure 1.1 : Illustration d'un aérosol en mélange interne hétérogène. Le carbone organique, le carbone-suie et les aérosols minéraux constituent préférentiellement les noyaux des aérosols en mélange interne hétérogène, alors que les espèces comme le sulfate, le nitrate et les sels marins se trouvent préférentiellement à la surface des aérosols (D'après IPCC 2001).

La nature du mélange d'un aérosol représente la manière dont les différents composés formant la particule sont mélangés entre eux. Au cours de leur transport, les aérosols vieillissent et peuvent se retrouver sous forme de mélanges complexes de différents composés chimiques. Près des sources, les études montrent que les espèces chimiques sont généralement séparées les unes des autres, formant un mélange externe (Chow et al., 2004 ; Mallet et al., 2004). Au cours de leur transport cette configuration évolue, les particules peuvent interagir entre elles et se mélanger pour former une seule particule, on parle alors de mélange interne (Lesins, 2002 ; Péré et al., 2010). Le mélange interne peut être

homogène lorsque les différentes espèces sont bien mélangées entre elles. Cependant le mélange interne homogène est peu observé dans l'atmosphère. A la différence du mélange interne hétérogène qui correspond à ce qui est le plus fréquemment rencontré dans la réalité, et représente l'inclusion d'une espèce insoluble (noyau) à l'intérieur d'une enveloppe d'espèces condensées (Fig. 1.1). Par exemple, on peut observer des particules formées d'un cœur de carbone suie, d'aérosols désertiques, enrobées de carbone organique, de sulfates ou de nitrates.

1.2.3 Distribution granulométrique et évolution des populations d'aérosols

La diversité des sources et des processus mécaniques et chimiques intervenant lors de la production des particules à pour conséquence une multitude de morphologie et de taille d'aérosols. Pour caractériser cette population complexe, on utilise le concept de distribution granulométrique. Celle-ci donne, de façon continue, la concentration en particules d'aérosols en fonction du diamètre, et présente généralement un ou plusieurs maxima, constituant les modes de la distribution. La distribution granulométrique d'une population de particules d'aérosols peut s'exprimer en nombre, en surface ou en masse. La figure 1.2 montre les modes de population d'aérosols fréquemment observés, ainsi que les mécanismes d'évolution des particules auxquelles elles appartiennent. Les populations d'aérosols communément rencontrées se répartissent en mode ultra fin, en mode d'accumulation et en mode grossier.

Le mode ultra fin est constitué de particules d'aérosols dont le diamètre est inférieur à $0.1 \mu\text{m}$. Ce mode ultra fin peut se décomposer en deux modes distincts : le mode de nucléation dont le diamètre des aérosols est compris entre 0.001 et $0.01 \mu\text{m}$, et le mode d'Aitken correspondant aux aérosols dont le diamètre est compris entre 0.01 et $0.05 \mu\text{m}$. Les aérosols de ce mode ultra fin résultent des processus de conversion gaz-particule, tel que la nucléation et la condensation. Dans des conditions thermodynamiques spécifiques de sursaturation, les molécules de gaz subissent un changement de phase. Les embryons ainsi formés dépassant une taille critique deviennent stables et continuent d'évoluer vers des diamètres plus grands. Il est également possible de

trouver dans la partie supérieure de ce mode des particules de carbone suie ultra fines directement émises par les processus de combustion. Ce mode domine la distribution en nombre mais leur petite taille ne leur permet d'avoir qu'une contribution massique et optique assez faible. Ces aérosols peuvent croître en s'agglomérant les unes aux autres pour former une nouvelle particule, on parle alors de coagulation homogène. Elles peuvent également tendre vers des diamètres plus grands en entrant en contact avec des particules de taille supérieure. Ce dernier processus est appelé coagulation hétérogène. Dans certains cas, la nouvelle particule formée par coagulation peut appartenir au mode intermédiaire supérieur, c'est-à-dire le mode d'accumulation.

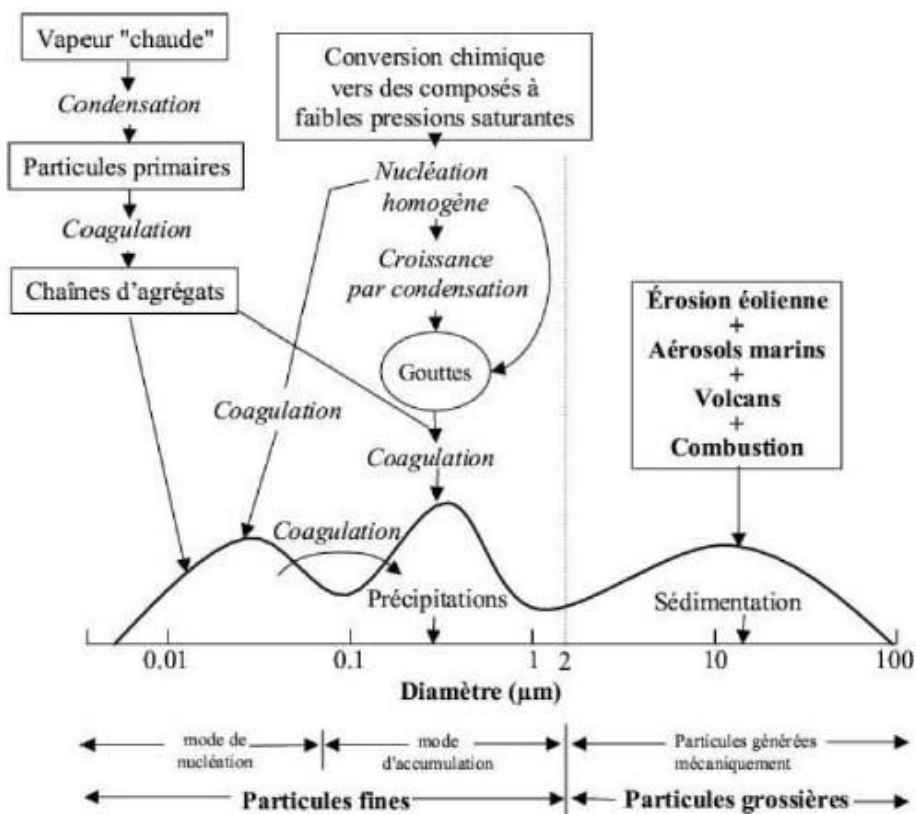


Figure 1.2 : Description granulométrique d'une population d'aérosols et de leurs processus de formation et de dépôt. Adaptée de Whitby (1978).

Le mode d'accumulation contient des aérosols dont le diamètre est compris entre 0.1 et 2 μm . Les aérosols composant ce mode proviennent essentiellement du processus de coagulation des particules du mode ultra fin, ainsi que la condensation de gaz sur des particules préexistantes faisant alors grossir le rayon de la particule.

Le mode grossier est composé des aérosols dont le diamètre est supérieur à 2 μm . Ce mode contient essentiellement des aérosols primaires comme les aérosols désertiques, les sels marins. Du fait de leur taille les aérosols du mode grossier participent de manière importante à la masse totale des aérosols. Ces aérosols ont une durée de vie relativement courte, de quelques heures à quelques jours, avant de se déposer en surface sur l'effet de la force de gravité (dépôt sec).

Afin de représenter la distribution granulométrique, différentes lois statistiques ont été proposées et testées (Lenoble, 1993). Néanmoins celle qui est largement utilisée, du fait qu'elle s'ajuste au sens des moindres carrés de manière satisfaisante aux distributions observées dans la nature est la distribution lognormale (Giorgi, 1993 ; Jaenicke, 1993) (Eq. 1.1). La variation du nombre de particule n en fonction du logarithme népérien du rayon r s'écrit de la manière suivante :

$$\frac{dn(r)}{dr} = \frac{N}{\sigma_g r} \exp\left[-\frac{(\ln(r/r_g))^2}{2\sigma_g^2}\right]$$

où $n(r)$ est le nombre de particules dont le logarithme népérien du rayon est compris entre $\ln(r)$ et $\ln(r) + d\ln(r)$, r le rayon des aérosols, r_g est le rayon modal et σ_g l'écart type géométrique de la distribution lognormale (la largeur de la distribution), et N est le nombre de particules se trouvant dans le mode considéré.

Au cours de leur transport, les aérosols subissent de multiples interactions. La distribution granulométrique apporte ainsi des informations importantes sur l'évolution d'une population d'aérosols. La distribution granulométrique des

populations d'aérosols constitue donc un paramètre majeur (Chou et al., 2008 ; Patterson, 1981 ; Tegen and Lacis, 1996).

1.3 Interaction des aérosols avec le rayonnement

1.3.1 Atténuation du rayonnement par l'atmosphère

Dans l'atmosphère, les particules d'aérosols et les molécules des différents composés gazeux sont responsables de l'atténuation du rayonnement solaire incident. On parle ainsi de l'extinction atmosphérique qui résulte de la superposition de deux processus physiques que sont l'absorption et la diffusion. Ainsi chaque particule d'aérosols absorbe et/ou diffuse une quantité plus ou moins importante d'énergie à chaque longueur d'onde du spectre solaire. Pour chaque aérosol, il est commun de quantifier ces processus physiques par la section efficace de diffusion σ_{diff} , la section efficace d'absorption σ_{abs} et la section efficace d'extinction σ_{ext} (Eq 1.2). La section efficace représente la surface effective d'interaction couverte par une particule de telle sorte que le rapport de cette surface sur une surface de référence de 1m^2 est égale à la probabilité d'interaction entre la radiation lumineuse et la particule.

L'extinction, la diffusion et l'absorption peuvent également être évaluée par rapport à la surface de la particule S (celle-ci étant donnée par πr^2 pour une particule sphérique), on parle alors de l'efficacité d'extinction Q_{ext} , l'efficacité de diffusion Q_{diff} et l'efficacité d'absorption Q_{abs} (Eq. 1.3).

— —

A partir de ces sections efficaces, on peut en déduire, pour une longueur d'onde λ , les expressions des coefficients de diffusion b_{diff} , d'absorption b_{abs} et d'extinction b_{ext} d'une population d'aérosols caractérisée par une distribution en taille $f(r)$ comprise entre R_{min} et R_{max} (Eq. 1.4/ Eq. 1.5).

Ce qui revient à écrire que :

Le coefficient d'extinction caractérise ainsi la quantité de rayonnement absorbé ou diffusé par l'aérosol.

L'absorption est la transformation du rayonnement incident en d'autres formes d'énergie telle que la chaleur. La capacité d'une particule à absorber un rayonnement dépend essentiellement de sa composition chimique alors que l'absorption du rayonnement par les molécules atmosphériques est principalement liée à leurs propriétés spectroscopiques. Une molécule possède des niveaux énergétiques discrets ou quantifiés associés à des états de rotation, de vibration ou de configuration électronique. Une molécule absorbe un photon lorsque son énergie correspond à une transition entre le niveau fondamental et le niveau excité, ou entre niveau excités. L'absorption moléculaire se traduit par une transmission spectrale de l'atmosphère présentant des zones transparentes, appelées « fenêtre atmosphérique » et des zones plus propices à l'absorption. En effet, les fenêtres atmosphériques correspondent aux régions spectrales sans ou avec peu d'absorption. Ainsi, afin de s'affranchir de l'absorption gazeuse du flux solaire, il suffit de se positionner dans les fenêtres atmosphériques. C'est le cas de la plupart des bandes spectrales utilisées par des instruments de télédétection des aérosols, où les effets de l'absorption gazeuse apparaissent faiblement.

En ce qui concerne les aérosols, la diffusion correspond à un changement de la direction de la propagation des photons par rapport à la direction du rayonnement incident. On parle de diffusion simple si le rayonnement n'est diffusé qu'une seule fois et de diffusion multiple lorsque le rayonnement est diffusé plus d'une fois. La diffusion dépend de la taille des particules par rapport à la longueur d'onde. La figure 1.3 met en évidence la dépendance de la diffusion de la particule en fonction de sa taille.

Lorsque la particule est relativement petite par rapport à la longueur d'onde du rayonnement incident, on parle de diffusion Rayleigh. La diffusion Rayleigh s'applique en particulier dans le cas de la diffusion moléculaire. La diffusion moléculaire est l'interaction entre le rayonnement électromagnétique et le dipôle électrique des molécules. La caractéristique essentielle de ce mode de diffusion est une dépendance spectrale du processus en λ^{-4} .

Lorsque la taille de la particule est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde du rayonnement incident, on parle alors de diffusion de Mie. Ce mode de diffusion proposé par Mie s'applique dans le cas de la diffusion du rayonnement solaire par les particules d'aérosols. Dans le cas de ce mode de diffusion, les particules d'aérosols sont considérées comme des particules isotropes, sphériques et homogènes. La diffusion de la lumière est dite non sélective ou géométrique, lorsque la taille de la particule est très grande devant la longueur d'onde incidente.

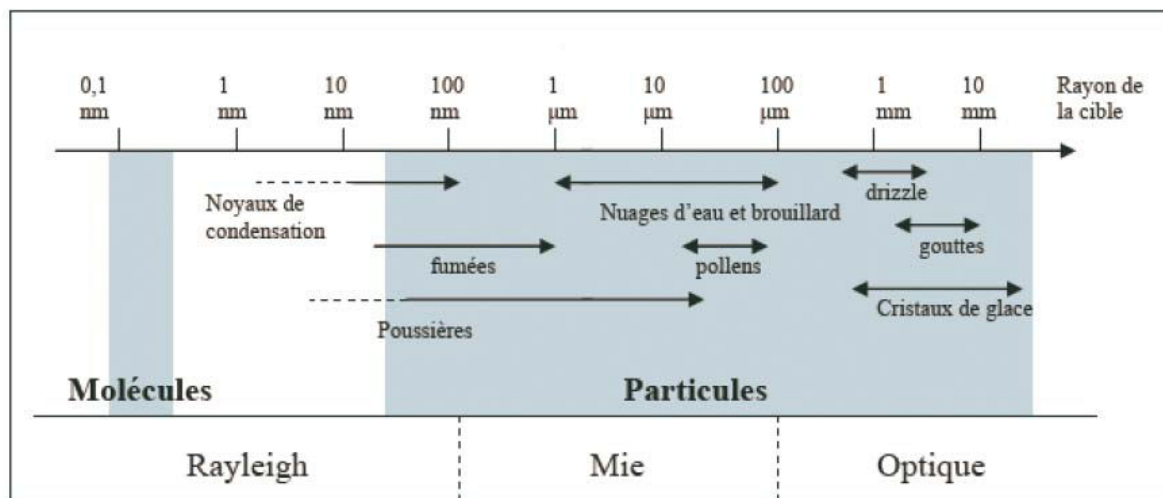


Figure 1.3 : Représentation du régime de diffusion associé à la taille des particules, d'après Measures, 1984.

Ainsi, étant donné les tailles caractéristiques des particules d'aérosols, l'interaction avec le rayonnement visible et tellurique peut se formaliser par la théorie de la diffusion de Mie si l'on fait l'hypothèse de particules sphériques, permettant de calculer les coefficients de diffusion, d'absorption et la fonction de phase. En pratique, l'hypothèse de sphéricité des particules n'est pas toujours justifiée, notamment pour les particules d'aérosols désertiques qui présentent des

formes variées, souvent hétérogènes (Chou et al., 2008 ; Haywood et al., 2003a). Cela peut induire une erreur sur le paramètre d'asymétrie, c'est-à-dire la direction de la diffusion. Cependant Miller and Tegen (1998) ont montré que l'erreur faite sur le paramètre d'asymétrie reste raisonnable pour des applications de modélisation climatique. De plus, Otto et al (2011) ont évalué que la prise en compte de la non sphéricité n'affecte pas significativement le calcul de l'albédo de simple diffusion et du paramètre d'asymétrie mais peut cependant renforcer le coefficient d'extinction de 10%. Il existe d'autres théories plus élaborées que la théorie de diffusion de Mie telle que la méthode de T-Matrix (Mischenko et al., 1996) qui prend en compte la non sphéricité pour des particules présentant une symétrie de rotation comme les sphéroïdes ou les cylindres. Néanmoins, ce type de code numérique est très couteux en temps de calcul (Feng et al., 2009 ; Hoyningen-Huene et al., 2009).

1.3.2 Indice de réfraction complexe

Selon leur taille et leur composition chimique (état de mélange interne et externe), les particules vont soit absorber ou, soit diffuser une quantité du rayonnement incident. L'influence de la composition chimique sur l'effet radiatif exercé par les aérosols est représentée par leur indice de réfraction (n) qui s'exprime de la manière suivante :

La partie réelle n_r (renseigne sur les propriétés diffusantes de l'aérosol, alors que la partie la partie imaginaire n_i est) (reliée aux propriétés d'absorption de ce dernier. La partie imaginaire n_i varie dans le domaine du visible de $2 \cdot 10^{-8}$ pour des aérosols très diffusant (comme les sels marins) à 0.66 pour les aérosols les plus absorbants comme le carbone suie (Bond and Bergström, 2006 ; Marley et al., 2001). Il a été mis en évidence que le pouvoir absorbant dans le visible-proche UV de certains carbones organiques, notamment ceux que l'on retrouve dans les aérosols de feux de biomasse était loin d'être nul (Andreae and Gelencsér, 2006 ; Sun et al., 2007 ; Chen and Bond, 2010 ; Arola et al., 2011). Ces composés organiques sont généralement connus sous l'appellation de Brown

Carbon dans la littérature. Une large gamme de valeur de la partie imaginaire de l'indice de réfraction du Brown Carbon variant entre 0.002 et 0.27 (à 550 nm) a été reportée dans la littérature (Alexander et al., 2008 ; Bond and Bergstrom, 2006).

L'humidité relative de l'atmosphère peut faire varier l'indice de réfraction d'un aérosol via les processus de condensation et d'évaporation à sa surface. Cette variation peut être prise en compte à l'aide de lois empiriques comme la relation de Hänel qui permet de calculer l'indice de réfraction en fonction de l'humidité ambiante (η_w) à partir de la valeur de l'indice à l'état sec. Cette variation de l'indice de réfraction avec l'humidité relative selon Hänel (1976) est représentée de la manière suivante :

—

Où η_w et r_w représentent respectivement l'indice de réfraction et le rayon de l'aérosol humide.

1.3.3 Propriétés optiques

1.3.3.1 Epaisseur optique

Lorsque le profil vertical des particules d'aérosols est connu, il est possible d'obtenir l'épaisseur optique d'extinction des particules d'aérosols τ_{ext} (AOT pour « Aerosol Optical Thickness », sans unité). Cette grandeur optique représente l'extinction du rayonnement par la couche d'aérosol intégrée le long de la colonne atmosphérique ΔZ (Eq. 1.8). Comme l'extinction est la somme de la diffusion et de l'absorption, on peut définir une épaisseur optique de diffusion τ_{diff} et une épaisseur optique d'absorption τ_{abs} ($\tau_{\text{ext}} = \tau_{\text{diff}} + \tau_{\text{abs}}$).

L'épaisseur optique d'extinction des particules d'aérosols est ainsi le résultat de l'extinction due aux particules d'aérosols présentes sur toute la colonne atmosphérique. Cette grandeur renseigne à la fois sur la charge en aérosols, et également sur le pouvoir d'extinction de la population d'aérosols. En Europe, les valeurs moyennes d'épaisseur optique sont généralement comprise entre 0.1 et 0.5 (à 550 nm) (Schaap et al., 2009). Lors d'évènements très important, comme les tempêtes de sables, les valeurs d'épaisseur optique peuvent dépasser 5. Généralement les épaisseurs optiques des aérosols de pollution dépassent rarement les 0.5.

1.3.3.2 Albédo de simple diffusion

La part de la diffusion dans l'extinction du rayonnement peut être donnée par l'albédo de simple diffusion (SSA pour « Single Scattering Albedo », sans unité). Cette grandeur correspond au rapport entre le coefficient de diffusion b_{diff} et le coefficient d'extinction b_{ext} (Eq. 1.9).

Le calcul de l'albédo de simple diffusion donne la probabilité que le rayonnement soit diffusé plutôt qu'absorbé lors de son interaction avec une particule. Ainsi, la valeur de l'albédo de simple diffusion est nulle pour une particule purement absorbante, et égale à l'unité pour une particule purement diffusante.

Le tableau 1.2 présente des exemples de valeur de SSA des principaux composés particulaires atmosphériques (Malavelle et al., 2011). Les composés les plus absorbants sont les carbones suies avec des valeurs à 550 nm comprises entre 0.5 et 0.35 (Hess et al. 1998 ; Mallet et al., 2003). Les autres composés sont essentiellement diffusants avec des albédos de simple diffusion proche de l'unité à l'exception des aérosols désertiques dont les valeurs présentent un large éventail (0.75-0.99), contribuant fortement à augmenter l'incertitude dans la quantification de leurs impacts climatiques (Solmon et al., 2008).

Bien que le SSA soit beaucoup utilisé dans les études sur les aérosols, aujourd'hui encore, il n'est pas aisé d'évaluer avec précision ce paramètre (Mossmüeller et al., 2009). De nombreuses méthodes ont été développées pour déterminer ce paramètre. Parmi elles, il y a les approches numériques basées sur les théories de la diffusion (Ackermann et Toon, 1981, Martins et al., 1998), les inversions des mesures de télédétection (Dubovik et al., 2000 ; Eck et al., 2010) ou satellitaire (Dubovik et al., 2011 ; Hsu et al., 2004 ; Kaufmann et al., 2001) et des mesures in situ avec des instruments capables de mesurer le rayonnement atténué, diffusé et absorbé (Bond et al., 1999 ; Martins et al., 2009 ; Reid et al., 1998).

Espèce	SSA (550 nm)	Références
Aérosols désertiques	0.75-0.99	D'Almeida et al., 1991 ; Hess et al., 1998 ; Tanré et al., 2001 ; Dubovik et al., 2002 ; Osborne et al., 2008 ; Johnson et al., 2011 ; Müller et al., 2011
Carbone suie	0.15-0.35	Hess et al., 1998 ; Mallet et al., 2003
Carbone organique	0.98-0.99	Cooke et al., 1999 ; Mallet et al., 2003
Brown Carbon	0.6-0.8	Dinar et al., 2008
Sels marins	0.99	Krekov 1993 ; Hess et al., 1998
Sulfate	0.97-1	Krekov 1993 ; Kiehl et al., 2000 ; Mallet et al., 2003
Nitrate	0.93	Krekov 1993 ; Mallet et al., 2003

Table 1.2 : Albédo de simple diffusion pour les principaux composés particuliers atmosphériques. D'après Malavelle, 2011.

1.3.3.3 Le paramètre d'asymétrie

Le paramètre d'asymétrie permet de caractériser la direction préférentielle de la diffusion. Les valeurs du paramètre d'asymétrie sont comprises entre -1 (rétrodiffusion totale) et 1 (dans le prolongement de la direction incidente). Les

valeurs du paramètre d'asymétrie des principaux composés ont reportées dans le tableau 1.3. Une information issue de cette table est que la diffusion de ces principaux composés se fait majoritairement dans le prolongement de la direction d'incidence. Pour les aérosols présentant généralement les plus gros diamètres (sel marins, aérosols désertiques), on constate que les valeurs du paramètre d'asymétrie sont les plus élevées (Table 1.3).

Espèce	Paramètre d'asymétrie (550 nm)	Références
Aérosols désertiques	0.70-0.77	Pandithurai et al., 2008 ; McConnell et al., 2010
Carbone suie	0.33	D'Almeida et al., 1991
Carbone organique	0.70	Barnard et al., 2008
Sels marins	0.84	Osborne et Haywood, 2005
Sulfate	0.66	Kiehl et al., 2000
Nitrate	0.70	Mallet et al., 2003

Table 1.3 : Paramètre d'asymétrie pour les principaux composés particuliers atmosphériques. D'après Malavelle, 2011 et Péré 2010

1.3.4 Dépendance spectrale

Les propriétés optiques des aérosols sont fonction de la longueur d'onde du rayonnement, de la taille des particules et de leur indice de réfraction. La mesure de l'atténuation du rayonnement à plusieurs longueurs d'onde va permettre de définir un indicateur sur la taille moyenne d'une population d'aérosols. On parle alors du coefficient d'Angström d'extinction α (généralement noté EAE, pour Extinction Angström Exponent) qui traduit la dépendance spectrale de l'extinction du rayonnement par une particule (Eq. 1.10).

$$\alpha = \frac{b_{ext}(\lambda_1) - b_{ext}(\lambda_2)}{\lambda_1 - \lambda_2}$$

Où λ_1 et λ_2 sont des longueurs d'onde choisies en générale suffisamment éloignées l'une de l'autre, et $b_{ext}(\lambda_1)$ et $b_{ext}(\lambda_2)$ les coefficients d'extinction déterminés respectivement à λ_1 et λ_2 .

Le coefficient d'Angström d'extinction peut être considéré comme un indicateur de la taille moyenne de la population d'aérosols. Plus la dépendance spectrale du coefficient d'extinction est grande, plus le coefficient d'Angström d'extinction est grand et plus les particules sont petites. A contrario, plus la dépendance spectrale du coefficient d'extinction est faible, plus le coefficient d'Angström d'extinction est proche de zéro et plus les particules sont grosses.

1.4 Impact radiatif des aérosols

L'influence des aérosols sur le bilan radiatif terrestre peut s'exprimer par le biais de son forçage radiatif. Le GIEC (Groupe d'expert Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat, en anglais IPCC) au sein de son rapport de 2007, définit le terme de forçage radiatif comme un changement du bilan radiatif évalué au sommet de la troposphère. Un forçage radiatif positif implique un réchauffement global de la troposphère contrairement à un forçage radiatif négatif qui la refroidit.

La figure 1.4 montre l'état actuel des connaissances sur la quantification des forçages radiatifs de chacun des constituants atmosphériques. La dernière colonne indique le niveau de connaissance scientifique pour chaque composante identifiée du forçage (en lien direct avec la barre d'erreur de chaque forçage). Cette figure met en évidence que le forçage radiatif négatif exercé par les aérosols peut compenser en partie le réchauffement lié à l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre à l'échelle globale. Cependant à l'échelle régionale, l'effet radiatif des aérosols devient nettement plus important que celui dû aux gaz à effet de serre (Foster et al., 2007). Comme en témoigne les barres d'erreur de la figure 1.4, les aérosols constituent une source majeure d'incertitude pour la quantification du forçage radiatif terrestre et également pour les prévisions décennales de changement climatique. Les effets radiatifs des aérosols sont difficiles à quantifier du fait que les processus d'interaction entre les aérosols et le rayonnement (solaire et tellurique) sont complexes. L'état des connaissances actuelles révèle que les aérosols affectent le bilan radiatif de plusieurs manières : directe, indirecte et semi-directe.

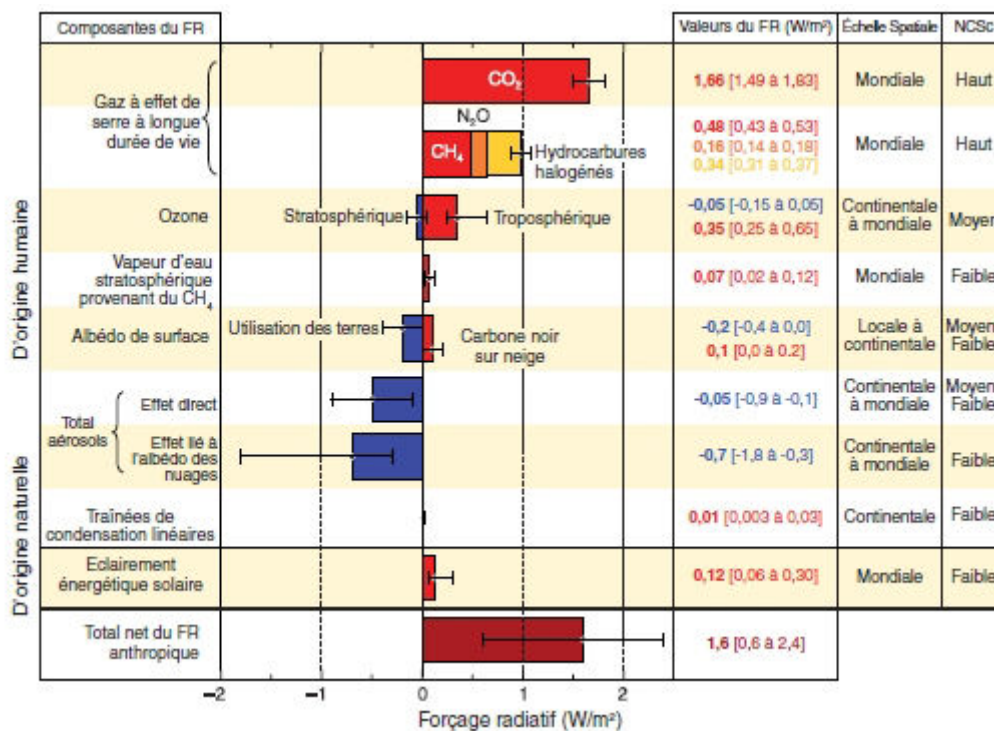


Figure 1.4 : Estimation du forçage radiatif moyen à l'échelle globale en 2005 (valeur les plus probables et intervalles d'incertitude de 5 à 95%) par rapport à 1750 pour le CO₂, le CH₄, le N₂O et les autres agents et mécanismes important, ainsi l'étendue géographique type (échelle spatiale) du forçage et le niveau de compréhension scientifique (NCS). La fourchette correspondant aux trainées de condensation linéaire ne tient pas compte des effets éventuels de l'aviation sur la nébulosité (d'après IPCC 2007).

1.4.1 L'effet radiatif direct

L'effet radiatif direct est dû à l'interaction des aérosols avec le rayonnement solaire et tellurique selon deux modes : la diffusion et l'absorption (Fig. 1.5). L'intensité de la diffusion et de l'absorption dépend des caractéristiques physiques et chimiques des aérosols, mais aussi de la longueur d'onde du rayonnement incident.

Dans le domaine du rayonnement solaire (0.1-3 μm), les aérosols peuvent diffuser une partie du rayonnement incident ayant pour conséquence de diminuer la quantité d'énergie atteignant le sol, engendrant ainsi un refroidissement de la surface, ce qui se traduit par un forçage radiatif négatif. Les aérosols peuvent également absorber l'énergie solaire interceptée, provoquant ainsi un

réchauffement de la couche atmosphérique où ils se trouvent, ce qui se traduit par un forçage radiatif positif. Néanmoins, ce forçage est variable et peut changer de signe en fonction des propriétés d'absorption de l'aérosol mais aussi en fonction de l'albédo de la surface. En effet, dans le cas des aérosols fortement absorbant (comme le carbone-suie), des études montrent que ces derniers exercent un forçage radiatif positif au-dessus des surfaces fortement réfléchissantes (désert, neige), et un forçage radiatif négatif au-dessus des surfaces faiblement réfléchissantes (océan, forêt) (Chylek and wong, 1995 ; Haywood and Boucher, 2000).

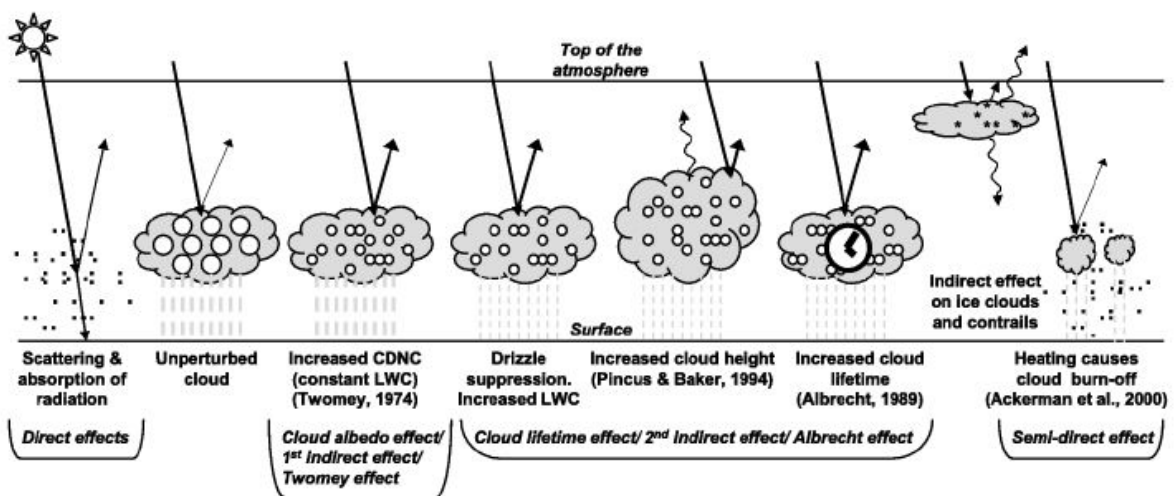


Figure 1.5 : Schéma présentant les divers effets radiatifs des aérosols. Les points noirs représentent les aérosols, et les cercles blancs correspondent aux nombres de gouttelettes nuageuses. Les traits noirs représentent le rayonnement solaire incident et réfléchi, et les traits ondulés le rayonnement infrarouge émis. Les cercles blancs indiquent la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses (CDNC). Un nuage non perturbé contient de plus large gouttes nuageuses car seuls les aérosols naturels sont disponibles pour servir de noyaux de condensation (CCN), tandis qu'un nuage perturbé contient davantage de petites gouttes nuageuses étant donné que les aérosols naturels et anthropiques sont disponibles pour servir de CCN. Les traits gris verticaux représentent les précipitations, et le LWC se rapporte au contenu en eau liquide. (d'après Foster et al., 2007).

Les aérosols peuvent également interagir avec le rayonnement tellurique (3-100 μm) en absorbant et en réémettant une partie du rayonnement vers la surface terrestre, accentuant ainsi l'effet de serre. Le forçage radiatif direct dans le domaine de l'infrarouge thermique est faible pour les aérosols de petites tailles

($r_p < 1 \mu\text{m}$), mais peut devenir non-négligeable dans le cas de particule d'aérosol dont le rayon est supérieur à $1 \mu\text{m}$ (Mallet et al., 2009 ; Slingo et al., 2006).

A l'échelle globale, le forçage radiatif direct des aérosols à en moyenne un effet de refroidissement au sommet de l'atmosphère estimé à $0.5 \pm 0.4 \text{ W.m}^{-2}$, avec un niveau « moyen-faible » de compréhension scientifique (Fig. 1.4). Cependant Foster et al (2007) soulignent le fait que l'estimation de l'effet direct total des aérosols est actuellement plus précise qu'auparavant car elle s'appuie sur une combinaison de simulation de modèle et d'observations.

A l'échelle régionale, l'effet radiatif direct des aérosols peut devenir plus important qu'il ne l'est à l'échelle globale, et cela particulièrement au-dessus des régions où la concentration en particules est importante. Le tableau 1.4 présente les valeurs de forçage radiatif direct obtenues au cours de campagnes de mesures récentes au-dessus des régions très polluées (Péré et al., 2010). Ce tableau met en évidence que les forçages radiatifs directs au sommet de l'atmosphère obtenus au-dessus de ces régions très polluées sont 4 à 30 fois supérieur aux forçages radiatifs directs estimés à l'échelle globale. De plus, les résultats de ces diverses campagnes montrent un forçage radiatif direct des aérosols plus important au niveau de la surface traduisant ainsi un échauffement important de la couche atmosphérique $\Delta F_{\text{atm}} = +(10-29) \text{ W.m}^{-2}$.

Campagne	ΔF_{TOA}	ΔF_{BOA}	ΔF_{atm}
INDOEX (1999) (Ramanathan, 2001)	-7 ± 1	-23 ± 2	$+ 16 \pm 1$
ESCOMPTE (2001) (Roger et al., 2006)	-7 ± 2	-36 ± 12	$+ 29 \pm 10$
Ace-Asia (2000-2003) Nakajima et al., 2003)	-7 ± 1	-17 ± 7	$+ 10 \pm 6$
East-AIRE (2004-2005) (Li et al., 2007)	-2 ± 1	-20 ± 10	$+ 18 \pm 9$
AMMA (2006-2010) (Mallet et al., 2008)	-18 ± 3	-45 ± 14	$+ 27 \pm 10$
MILAGRO (2006) (Schmidt et al., 2010)	-6 ± 1	-25 ± 3	$+19 \pm 2$

Table 1.4 : Estimation du forçage radiatif direct des aérosols (en W.m^{-2}) au sommet de l'atmosphère (ΔF_{TOA}), en surface (ΔF_{BOA}) et atmosphérique (ΔF_{atm}) réalisée lors de campagnes de mesures récentes et pour différents types d'aérosols. La compilation est faite à partir des études de Péré et al (2010).

1.4.2 L'effet radiatif indirect

L'effet radiatif indirect est lié à la capacité de l'aérosol à pouvoir modifier la microphysique, la structure et la durée de vie des nuages. L'effet radiatif indirect des aérosols se présente sous deux aspects distincts : l'effet Twomey (Twomey, 1974) et l'effet d'Albrecht (Albrecht, 1989) (Fig. 1.5).

L'effet Twomey est également dénommé le premier effet radiatif indirect mais également l'effet d'albédo nuageux. L'effet Twomey résulte d'une modification de l'albédo du nuage induit par le nombre et la taille des gouttelettes d'eau nuageuse. En effet, pour une même quantité d'eau nuageuse disponible, la taille des gouttelettes diminue quand la concentration en particule augmente (Lohmann et Feitcher, 2005). Andreae et al (2004) ont observé une diminution de la taille des gouttes d'eau nuageuse liée à d'importants feux de forêt dans le bassin amazonien. Le premier effet radiatif indirect des aérosols exerce un forçage radiatif négatif par augmentation de la rétrodiffusion du rayonnement solaire au sommet du nuage. Le deuxième effet radiatif indirect est souvent appelé l'effet d'Albrecht. Albrecht (1989) avançait que l'augmentation de la concentration des gouttelettes nuageuses, devait aussi réduire l'efficacité du nuage à former des précipitations et modifier ainsi indirectement la dynamique du système nuageux. Une diminution de la quantité de précipitations impliquerait une augmentation de la durée de vie moyenne du nuage. Ces deux mécanismes sont illustrés sur la figure 1.6.

Récemment, ces hypothèses ont été remises en cause. Twohy et al (2005) ont observé une anti-corrélation entre le nombre de particules et la taille des gouttelettes d'eau de stratocumulus dans le nord-est du pacifique mais aucun impact de la charge sur son albédo n'a pu être clairement mis en évidence. En ce qui concerne le second effet indirect, Ackerman et al (2004) et Sandu et al (2008) ont montré que dans le cas de stratocumulus marins, une augmentation de la concentration en CCN induit une diminution du contenu en eau intégré sur la colonne atmosphérique, ce qui diffère de l'hypothèse d'Albrecht. Ces récentes études mettent en évidence que les interactions dynamiques-microphysiques-rayonnements sont fortement couplées entre elles et que l'on ne peut à priori pas isoler les effets indirects (premier et deuxième) des autres effets résultants.

L'effet indirect des aérosols est très dépendant du régime de nuage considéré (Stevens and Feingold, 2009) et il est aujourd'hui encore difficile d'établir des relations significatives à des échelles climatiques entre aérosols, nuages et précipitations.

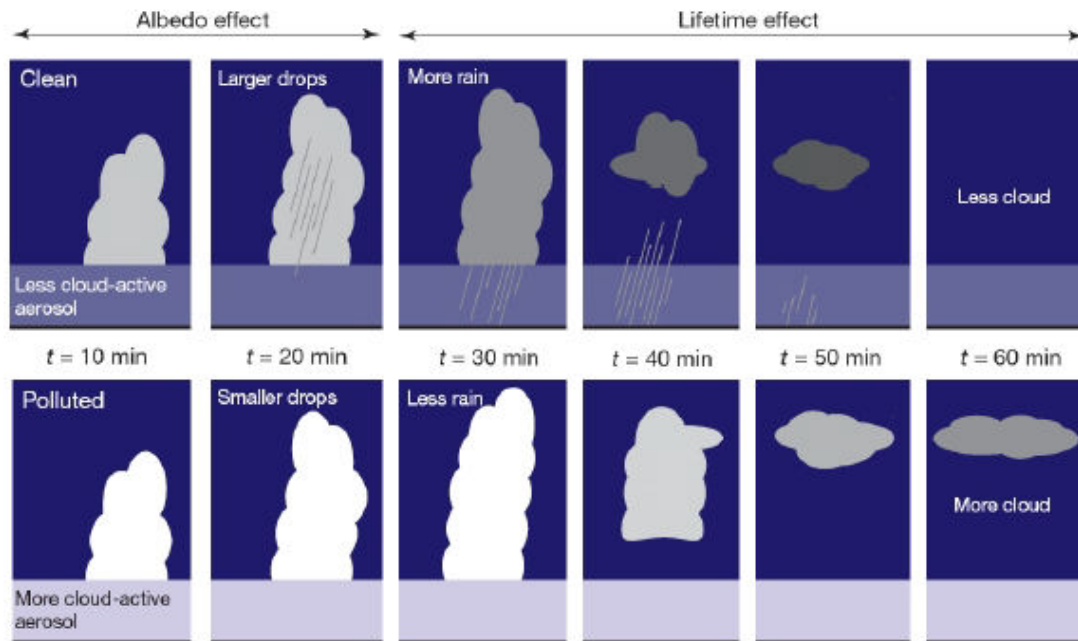


Figure 1.6 : Schématisation du premier et du second effet indirect comme proposé initialement par Twomey (1977) et Albrecht (1989) (adapté de Stevens et Feingold, 2009). La situation du haut correspond à des conditions de faible concentration en aérosols tandis que les conditions de fortes concentration en aérosols est représentée en bas. D'après Malavelle, 2011).

1.4.3 L'effet radiatif semi direct

L'effet radiatif semi-direct est encore mal connu à l'heure actuelle, et les études réalisées jusqu'à ce jour le présente comme une rétroaction de l'effet radiatif direct sur les propriétés nuageuses (IPCC, 2007). Cet effet fait référence aux modifications des profils verticaux de température et d'humidité relative dues à l'échauffement causé par l'absorption du rayonnement solaire par les aérosols (Grini et al., 2006, Tulet et al., 2008). Les modifications ainsi engendrées peuvent influencer de manière significative la couverture nuage (Fig. 1.5). Koch et Genio (2010) ont proposé une revue complète de cet effet radiatif en distinguant l'augmentation ou la réduction du couvert nuageux en fonction du

type de nuage considéré (cumulus et stratocumulus) et de l'altitude de la couche d'aérosols par rapport à l'altitude du nuage. La figure 1.7 résume schématiquement les principaux résultats présentés dans cette revue complète de l'effet semi-direct proposée par Koch and Genio (2010).

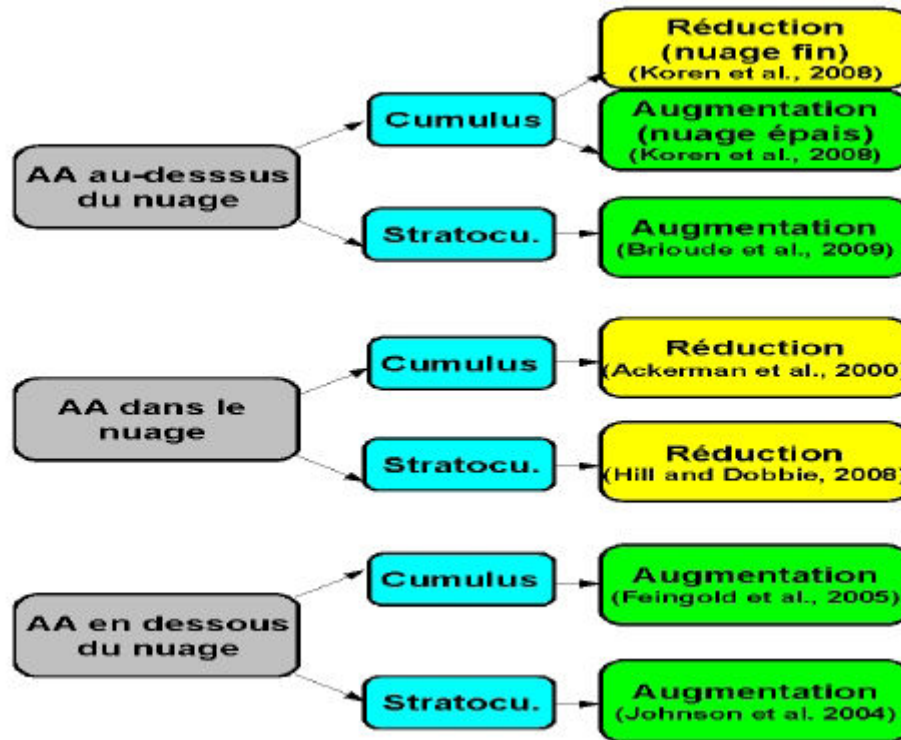


Figure 1.7 : Forçage radiatif semi-direct en fonction du type de nuage (cumulus ou stratocumulus) et de sa position par rapport à la couche d'aérosol (AA : Absorption du rayonnement solaire par la couche d'aérosol). D'après Péré, 2010.

Lorsque l'absorption du rayonnement solaire par les aérosols se produit à l'intérieur du nuage, l'échauffement au sein du nuage favorise la diminution de l'humidité relative et du contenu en eau. Dans cette configuration, le couvert nuageux formé par les cumulus et les stratocumulus est ainsi réduit (Ackermann et al., 2000 ; Hill and Dobbie, 2008).

Lors d'une absorption en dessous du nuage, les études montrent que l'échauffement produit renforce les mouvements convectifs et la condensation de l'eau. Ces conditions sont favorables au développement de nuages cumuliformes et stratiformes (Feingold et al., 2005 ; Johnson et al., 2004).

Dans le cas où la couche d'aérosols est située au-dessus du nuage, les conséquences de l'échauffement produit par l'absorption du rayonnement solaire ne sont pas les mêmes selon la nature du nuage. Lorsque le nuage considéré est un stratocumulus, Brioude et al (2009) ont mis en évidence que cette configuration est favorable au développement du couvert nuageux. Lorsque le nuage est un cumulus, Koren et al (2008) ont montré que lorsque l'épaisseur du cumulus est importante, l'échauffement au-dessus de celui-ci favorise son développement. A contrario, lorsque l'épaisseur du cumulus est faible, l'échauffement au sommet de ce dernier tend à inhiber son développement (Koren et al., 2008).

La réduction ou l'augmentation de la couverture nuageuse de la basse et moyenne altitude a ainsi un forçage positif ou négatif sur le climat, et peut provoquer un réchauffement ou un refroidissement.

1.5 Propriétés hygroscopiques

La formation de gouttelettes d'eau nuageuse dans l'atmosphère peut se faire par nucléation homogène. Ce processus implique une sursaturation satisfaisante pour que la phase gaz puisse se condenser en eau liquide. Néanmoins, les sursaturations requises pour un tel processus dépassent de plusieurs ordres de grandeurs celles observées dans l'atmosphère (Pruppacher and Klett, 1997). En réalité, les gouttelettes qui composent un nuage sont formées grâce à l'intervention de corps étrangers comme support de nucléation. Les aérosols sont capables d'offrir à la vapeur d'eau atmosphérique une surface solide pour condenser. Ces aérosols sont alors appelés noyaux de condensation (CCN).

Tous les aérosols ne possèdent pas la même aptitude pour s'activer en gouttelettes, car cela dépend essentiellement des caractéristiques physico-chimiques de l'aérosol. Le paramètre d'hygroscopicité d'un aérosol permet alors de définir le pouvoir de celui-ci à servir de CCN, et à déterminer ainsi son caractère hydrophile ou hydrophobe. Ce processus d'activation est décrit par la théorie de Köhler (1936). Cette théorie permet ainsi de décrire la sursaturation S (en %) nécessaire à l'aérosol pour s'activer en CCN, en tenant en compte de l'effet Kelvin (terme A de l'équation 1.11) et de l'effet de Raoult (terme B de l'équation 1.11).

Avec M_s la masse molaire du soluté en $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$; M_w la masse molaire de l'eau en $\text{g}\cdot\text{mol}^{-1}$; ν la viscosité ; σ la tension de surface ; ρ_s est la densité du soluté et r le rayon de la gouttelette.

Le premier terme de l'équation de Köhler (Eq. 1.11), représente l'influence de l'effet Kelvin, qui est lié à la tension de surface de la particule. En effet, plus la particule est petite (grande), plus la tension de surface est importante (faible), et plus il faut appliquer une forte (faible) saturation pour condenser la vapeur d'eau. Le deuxième terme de l'équation de Köhler (Eq. 1.11), représente l'influence de l'effet Raoult, qui lui mesure la solubilité des éléments composant la particule. L'effet Raoult permet ainsi de connaître la pression partielle d'équilibre lorsque l'eau n'est pas pure.

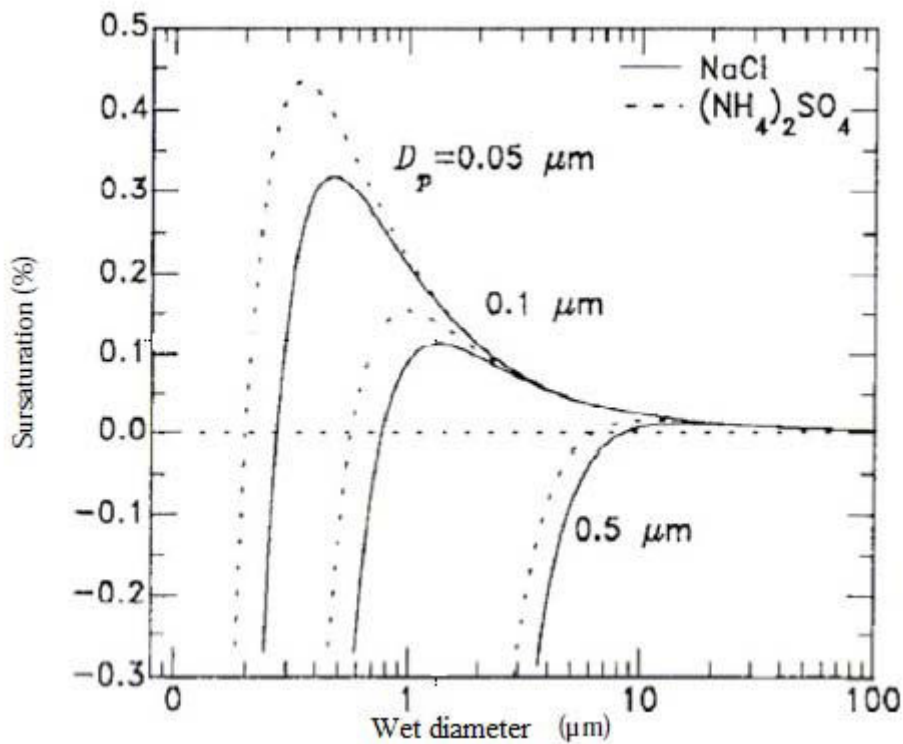
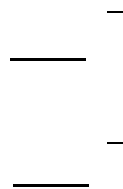


Figure 1.8 : Evolution de la sursaturation (à $T=293\text{K}$) en fonction du diamètre pour le chlorure de sodium (NaCl) et sulfate d'ammonium $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, d'après Seinfeld and Pandis, 1998.

La figure 1.8 illustre la sursaturation à la surface d'une gouttelette en fonction de son diamètre pour deux aérosols, qui sont le chlorure de sodium (NaCl) et le sulfate d'ammonium $(\text{NH}_4)_2 \text{SO}_4$. Cette figure met en évidence l'existence d'un point critique qu'il est nécessaire d'atteindre pour que l'aérosol puisse servir de CCN. En effet, l'aérosol est considéré activé quand son diamètre devient supérieur au diamètre pour lequel la sursaturation est maximale. Ainsi la valeur du maximum de sursaturation est définie comme la sursaturation critique (S_c , Eq. 1.12), et le diamètre-seuil du processus d'activation qui correspond à cette sursaturation critique, s'appelle le diamètre critique (D_c , Eq. 1.12).



La figure 1.8 montre également que deux aérosols de même taille et de nature chimique différente n'auront pas le même taux de sursaturation critique (effet Raoult). Pour un même composé chimique ayant des diamètres secs différents, l'aérosol le plus gros nécessitera un taux de sursaturation plus faible pour s'activer (effet Kelvin). L'effet du soluté prédomine lorsque le diamètre de l'aérosol est petit, alors que lorsque le diamètre augmente, c'est l'effet Kelvin qui prédomine (Seinfeld and Pandis, 1998). Ces deux effets (relatifs à la taille et à la composition chimique) constituent les propriétés de l'activation d'un aérosol en CCN, ce sont eux qui déterminent la rapidité avec laquelle seront nucléées les gouttelettes pour une atmosphère donnée, et en quelle quantité.

1.6 Caractéristiques des aérosols désertiques nord africains

1.6.1 Les principales zones sources à l'échelle globale

Les aérosols désertiques font partie de la famille des aérosols minéraux. Ils sont qualifiés de primaire au même titre que les embruns marins, car ils sont émis directement sous forme de particule sous l'action du vent. Les aérosols

désertiques obéissent à un cycle qui comporte trois phases qui sont : l'émission depuis les régions sources, le transport et le dépôt (par voies sèches et/ou humides).

La quantité d'aérosols désertiques émis dans l'atmosphère est comprise entre 1000 et 3000 Tg par an (Table 1.5), ce qui représente environ 40% des émissions annuelles totales des aérosols. Cependant comme l'illustre la grande dispersion des estimations résumées dans le tableau 1.5, il existe encore des incertitudes sur ces estimations à l'échelle globale. L'estimation du flux annuel global d'aérosols désertiques par les modèles reste aujourd'hui quelque chose de relativement complexe. Ainsi dans le but d'évaluer et d'améliorer les performances des modèles, de nombreuses études sont réalisées en s'appuyant sur des données récoltées lors des campagnes de mesure (Bouet et al., 2007 ; Grini et al., 2005 ; Kinne et al., 2003 ; Todd et al., 2008 ; Zender et al., 2003).

Les aérosols désertiques sont issus des régions arides et semi-arides du globe dont la surface est la moins protégée de l'érosion éolienne par une couverture végétale presque inexistante et par une humidité du sol très réduite (Seinfeld and al., 1998 ; Goudie, 2009). D'une manière générale, les zones semi-arides et arides sont définies en fonction de la quantité de précipitation qu'elles reçoivent. Les régions arides sont caractérisées par un taux annuel de précipitation inférieur à 200 mm.

Au-delà de l'existence de conditions météorologiques et climatiques propices à l'érosion éolienne, la nature des sols joue un rôle important dans le processus d'émission d'aérosols désertiques. La disponibilité de matériel fin à la surface des sols est un facteur déterminant pour les émissions d'aérosols désertiques (Webb et al., 2006). Des facteurs géologiques, topologiques, biologiques et climatiques contribuent à la formation de particules fines à la surface des sols faisant intervenir divers processus tels que l'érosion hydrique (Eckardt et Kuring, 2005), l'abrasion éolienne (Dietrich, 1977), la désagrégation des roches (Wellman and Wilson, 1965). La désagrégation des roches est un processus qui se produit particulièrement dans des régions arides et très chaudes où des cristaux de sel se développent dans les interstices de la roche exerçant ainsi des pressions capables de la fissurer. L'impact de particules soulevées par le vent sur une

surface est une source potentielle de fines particules, qui redéposées conduisent à la formation de sols fins plus facilement érodables : c'est le processus de l'abrasion éolienne.

Référence	Emission globale annuelle d'aérosols désertiques (Tg/an)
Schütz (1980)	5000
D'Almeida (1986)	1800-2000
Tegen et Fung (1994)	3000
Duce (1995)	1000-2000
Andreae (1996)	1500
Mahowald et al. (1999)	3000
Penner et al. (2001)	2150
Ginoux et al. (2001)	1814
Chin et al. (2002)	1650
Werner et al. (2002)	1060 ± 194
Tegen et al. (2002)	1100
Zender et al. (2003)	1490 ± 160
Luo et al. (2003)	1654
Mahowald et Luo (2003)	1654
Ginoux et al. (2004)	2073
Miller et al. (2004)	1018
Tegen et al. (2004)	1921
Jickells et al. (2005)	1790

***Table 1.5 :** Récapitulatif des émissions globales annuelles d'aérosols désertiques (en Tg/an) estimées à partir de différents modèles globaux. La compilation est faite à partir des études de Mahowald et al. (2005) ; Zender et al. (2004) et Engelstaedter et al. (2006)*

Selon l'étude menée par Prospero et al., (2002), les régions constituant les principales zones sources d'aérosols désertiques à l'échelle du globe sont réparties géographiquement suivant 9 régions qui sont : l'Afrique du Nord, l'Afrique du Sud, la péninsule Arabique, l'Asie Centrale, la Chine de l'Est, la Chine de l'Ouest, l'Amérique du Nord, l'Amérique du Sud et l'Australie (Fig.1.9). Plus de 85% de la quantité d'aérosols désertiques présents dans

l'atmosphère sont émis depuis l'hémisphère Nord, du fait que la majorité des sources sont localisées au sein de cet hémisphère. Parmi ces régions sources, la région nord africaine représente la première source mondiale d'aérosols désertiques avec en moyenne une production annuelle égale à la moitié de quantité globale émise annuellement (~1000 Tg) (Zender et al., 2003 ; Ginoux et al., 2004 ; Engelstaedter et al., 2006 ; Cakmur et al., 2006).

Le continent Asiatique contribue également pour beaucoup à la production d'aérosols désertiques, avec notamment les régions Ouest et Est de la Chine qui constituent des sources mondialement importantes (Tanaka and Chiba, 2006). La quantité d'aérosols désertiques émis par l'ensemble des ces deux régions représentent 18% de la quantité globale émise annuellement. La quantité annuelle d'aérosols désertiques ainsi émis par l'ensemble de ces deux régions est estimée à 214-800 Tg (Zhang et al., 2008 ; Tanakan and Chiba., 2006 ; Laurent et al., 2008). Les aérosols désertiques émis depuis la Chine proviennent essentiellement des déserts de Gobbi et du Taklamakan (Shao et al., 2003 ; Xuan et al., 2004).

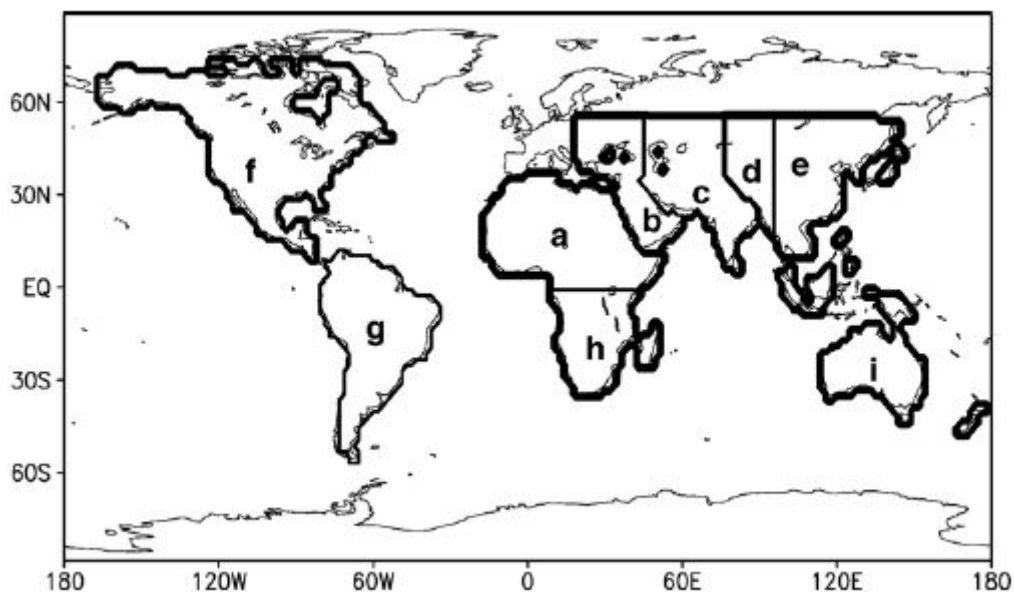


Figure 1.9 : La distribution géographique des principales régions sources d'aérosols désertiques à l'échelle globale : (a) L'Afrique du Nord, (b) La péninsule Arabique, (c) L'Asie Centrale, (d) La Chine de l'Ouest, (e) La chine de l'Est, (f) L'Amérique du Nord, (g) L'Amérique du Sud, (h) L'Afrique du Sud, (i) L'Australie, d'après Prospero et al., (2002) et Tanaka et al., (2006).

Les émissions de la péninsule Arabique contribuent également de manière significative à la production annuelle d'aérosols désertique à l'échelle globale. La majeure partie de cette péninsule est occupée par le désert d'Arabie, avec une superficie de 2.3 million de km². En son centre se situe la région désertique du Rub al-Khali, un vaste bassin sédimentaire considéré comme l'un des plus grands corps continus de sable dans le monde. Ces deux déserts constituent les principales zones émettrices de la péninsule Arabique (Prospero et al., 2002 ; Grini et al., 2005). La quantité d'aérosols désertiques émis annuellement par la péninsule Arabique est estimée à 221-496 Tg, ce qui représente 14% de la quantité globale émis annuellement (Tanaka and Chiba., 2006 ; Goudie et al., 2009).

L'Amérique du Nord constitue la région source la moins importante à l'échelle du globe avec une production annuelle qui varie entre 2 et 9 Tg (Tanaka and Chiba., 2006 ; Zender et al., 2003 ; Ginoux et al., 2004). La quantité produite par les sources nord américaines représente ainsi seulement 1% de la quantité globale émis annuellement.

L'Australie représente la première source d'aérosols désertiques de l'hémisphère Sud avec une émission annuelle estimée à 37-148 Tg (Werner et al., 2002 ; Luo et al., 2003 ; Zender et al., 2003 ; Ginoux et al., 2004; De Deckker et al., 2010). La région émettrice la plus importante de l'hémisphère Sud représente uniquement que 5% de la quantité globale émis annuellement. Les observations spatiales de TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) indiquent que cette quantité d'aérosols désertiques produites résultent de l'intensité de l'érosion éolienne présente dans le grand désert de sable australien (The Great Sandy desert, en anglais) et dans le lac Eyre (Grini et al., 2005 ; Prospero et al., 2002 ; Revel-Rolland et al., 2006). Le grand désert de sable est une vaste plaine désertique de 360 000 km² situé au nord-ouest de l'Australie, et qui se prolonge au sud-est par le désert de Gibson et à l'est par le désert de Tanami. Le lac Eyre est situé dans les déserts du centre de l'Australie, et celui-ci constitue le plus grand lac salé asséché de l'Océanie. Les travaux de Mitchell et al., (2010) ont montré une augmentation de l'émission d'aérosols désertiques au sein du lac Eyre durant la période 2003-2007. Le grand désert de sable australien et le lac Eyre

constituent les zones sources les plus importantes de l'Australie mais également de l'hémisphère Sud (Grini et al., 2005 ; Tanaka and Chiba., 2006).

A part l'Australie, la quantité d'aérosols désertiques émis par les différentes régions sources de l'hémisphère Sud représente moins de 4% de la quantité globale émise annuellement. Ainsi avec une production annuelle estimée à 44-55 Tg (Tanaka and Chiba., 2006 ; Ginoux et al., 2004 ; Zender et al., 2003), la quantité produite par la région sud américaine représente que 2% de la quantité globale émise annuellement. De récentes études révèlent l'Afrique du Sud comme une source en aérosols désertiques d'importance similaire à l'Amérique du Sud (Ashkenazy et al., 2011; Bhattachan et al., 2012). En effet, la quantité d'aérosols désertiques émis annuellement par l'Afrique du Sud est de 63 Tg (Tanaka and Chiba., 2006), ce qui représente que 3% de la quantité globale émise annuellement. Le désert de Namibie et le désert du Kalahari constituent les principales zones émettrices d'aérosols désertiques de l'Afrique du Sud (Bhattachan et al., 2012 ; Prospero et al., 2002).

Au sein de ces régions sources les émissions les plus importantes se font à partir de zones très localisées et particulièrement actives appelées « hot spot » (Herman et al., 1997a). Ces « hot spot » possèdent des caractéristiques (dynamiques, topographiques...) bien spécifiques qui favorise une émission plus importante.

La figure 1.10 montre la distribution géographique de 131 « hot spot » identifiés à partir de l'analyse de six années de données issues des observation de TOMS (Aerosol Index, AI (Herman et al., 1997b), décrit au chapitre 2). Cette distribution géographique des « hot spot » montre qu'ils sont majoritairement situés sur le continent africain et asiatique. L'analyse des observations spatiales et des mesures de terrain révèlent l'existence de dépressions topographiques fermées qui peuvent être des sources d'aérosols désertiques particulièrement actives (Ginoux et al., 2001 ; Prospero et al., 2002). Ainsi, à titre d'exemple, il peut être cité, la dépression de Bodélé qui est située au nord du Tchad, mais également, la dépression de Makgadikgadi, qui lui est située au nord-est du Botswana.

Ce sont les caractéristiques de ces «hot spot» qui sont à l'origine des différences du taux d'émission d'aérosols désertiques entre les différentes régions sources à l'échelle du globe.

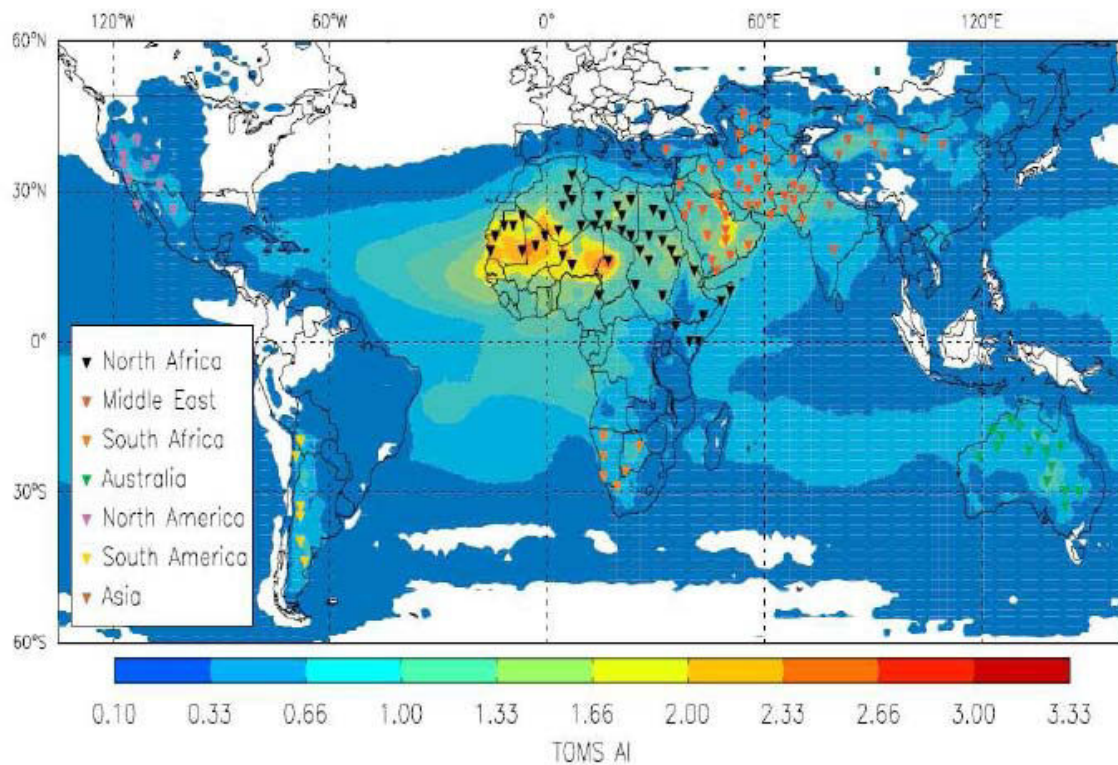


Figure 1.10 : La localisation de 131 « hot spot » à partir de la moyenne sur 1984-1990 de l'Aerosol Index (AI) issu des observations spatiales de TOMS (Engelstaedter et Washington, 2007b).

1.6.2 Zones sources et saisonnalité des émissions nord africaines

Au cours de ces dix dernières années, l'accroissement des moyens d'observation satellitaires ainsi qu'un nombre important de campagnes expérimentales mises en œuvre au nord du continent africain (e.g., SHADE, Tanré et al. 2003 ; AMMA, Redelsperger et al. 2006, DABEX, Haywood et al. 2008, RADAGAST, Miller et Slingo 2007 ; DODO, McConnell et al. 2008 ; SAMUM 1 & 2, Ansmann et al. 2011 ; GERBILS, Haywood et al., 2011) ont fourni des informations essentielles pour la validation et/ou la contrainte des modèles numériques et également à la compréhension de phénomène.

Les zones sources de l'Afrique du Nord sont localisées dans les régions Sahariennes et Sahéliennes. La région Saharienne est la partie de l'Afrique du Nord située au-delà de 17°N, avec un couvert végétal quasi inexistant, et un taux de précipitation moyen annuel inférieur à 200 mm. La région semi-aride Sahélienne est une région de transition entre le climat aride du Sahara au nord et le climat plutôt humide des savanes du sud. Le relief présent dans l'ensemble de ces régions est principalement composé d'une succession de cuvettes et de chaîne de montagnes tels que l'Atlas, Hoggar-Haïr, le Tibesti, l'Ennedi (Fig. 1.11).

En plus de ces massifs montagneux, Callot et al. (2000) ont inventorié des « ergs », des « regs », des « hamadas », des plaines et des dépressions, parmi les paysages qui caractérisent la région du Sahara et du Sahel. Les ergs sont des étendues de dunes sableuses. Les principaux ergs sont situés en Algérie, au Niger et en Libye. Les regs et les hamadas sont, du point de vue des états de surface, comparables. En effet, ce sont tous les deux des surfaces couvertes par de petits rochers et cailloux. Les plaines, et particulièrement les dépressions, constituent des zones de dépôts argileux (daïas) ou salées (sebkas ou chott). Ces dépôts proviennent d'anciens lacs ou de cours d'eau qui se sont asséchés suite à des modifications du climat de l'Afrique du Nord. Ces dépressions sont généralement de faibles étendues spatiales, mais en raison d'une forte teneur en matériel fin, elles constituent des zones à fort potentiel d'émission d'aérosols désertiques.

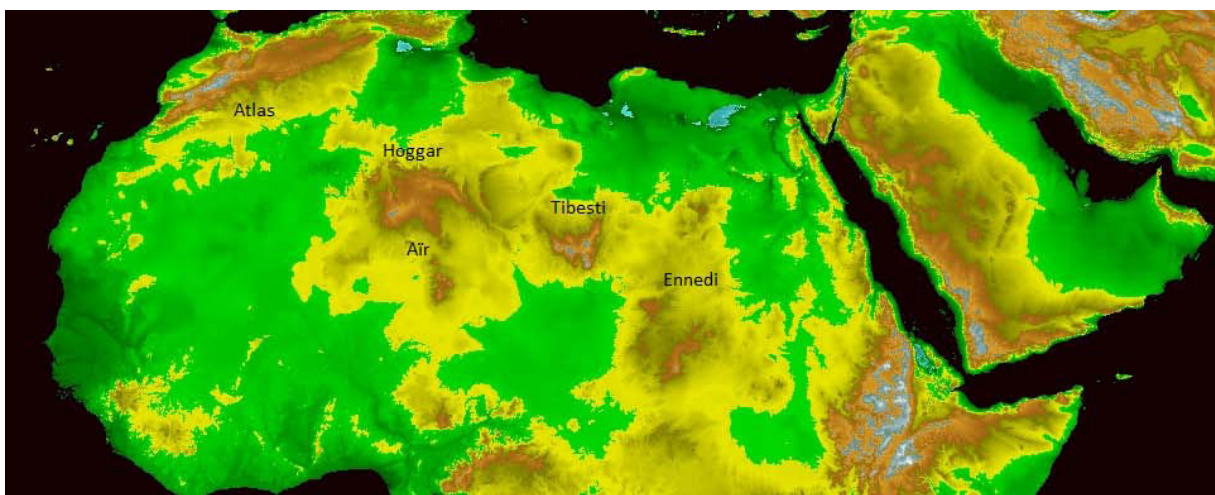


Figure 1.11 : La carte du relief de l'Afrique du Nord (source : <http://www.ngdc.noaa.gov>).

Schepanski et al., (2012) ont localisé quatre principales zones sources en Afrique du Nord à partir d'une analyse basée sur les valeurs de l'indices aérosols (AI) issues de l'imageur Ozone Monitoring Instrument (OMI, Levelt et al., 2000, décrit au chapitre 2). Ces quatre zones sources sont respectivement situées au Tchad (A), en Afrique de l'Ouest (B), en Libye (C) et au Soudan (D) (Fig. 1.12). Cette distribution des principales zones sources en Afrique du Nord corrobore celle fournie six années plutôt par l'étude de Engelstaedter et al., (2006) basée sur les valeurs de AI de TOMS. Les observations spatiales révèlent que les zones sources du Tchad et de l'Afrique de l'Ouest sont des sources significativement plus actives que les sources des régions Libyennes et Soudanaises (Fig. 1.12). Cette disparité s'explique par des conditions topographiques plus favorables à l'érosion au-dessus du Tchad et de l'Afrique de l'Ouest (Engelstaedter et al., 2006 ; Schepanski et al., 2012, 2009,2007).

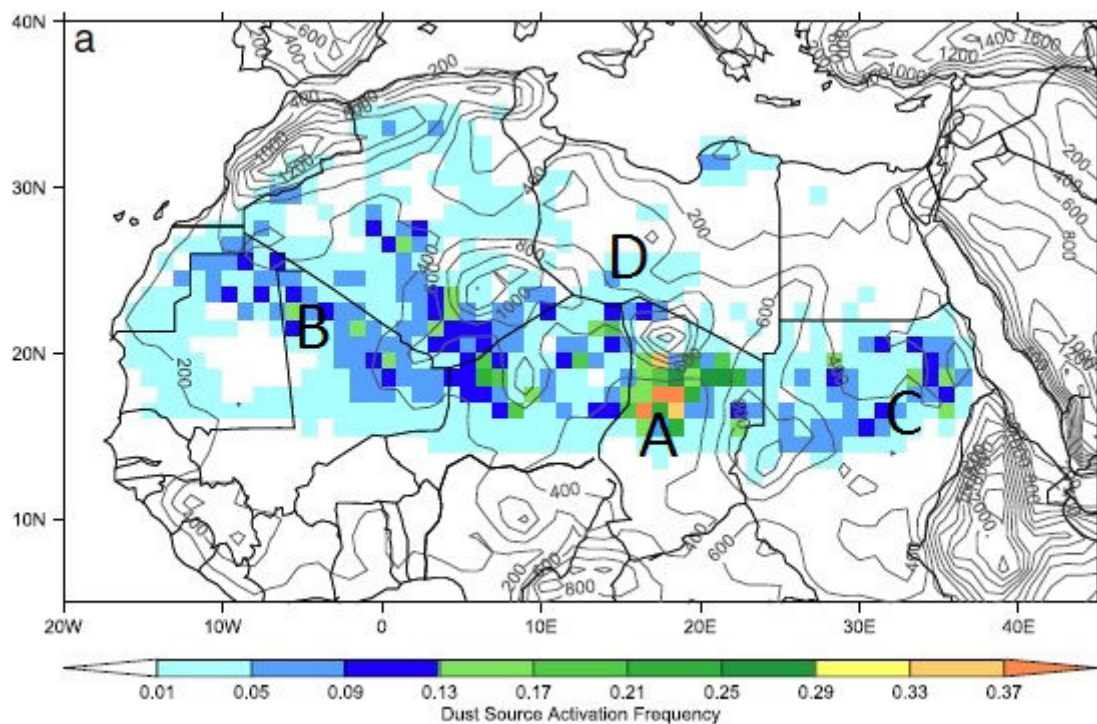


Figure 1.12 : La fréquence d'activation des zones sources en Afrique du Nord calculée à partir des Aerosol Index (AI) issus des observations spatiales de l'imageur OMI durant la période 2006-2010(Schepanski et al, 2012). Les lettres situent les principales régions sources de l'Afrique du Nord : (A) le Tchad, (B) l'Afrique de l'Ouest, (C) le Soudan et (D) la Lybie.

La région Tchadienne représente la zone source la plus active de la région nord africaine, et cela grâce à la présence de la dépression de Bodélé. Celle-ci correspond en grande partie à l'ancien lit du lac Megatchad (aujourd'hui pratiquement asséché puisqu'il se réduit au lac Tchad actuel) et est donc constituée de sédiment. Cette dépression topographique est reconnue comme étant la source la plus importante d'aérosols désertiques au monde (Middleton and Goudie., 2001 ; Israelevich et al., 2002 ; Warren et al., 2007). La dépression de Bodélé contribue à plus de la moitié de la quantité d'aérosols désertiques émis depuis la région nord africaine chaque année. A partir des observations de terrain réalisées lors de la campagne Bodélé Dust Experiment (BoDEx), Todd et al., (2008) suggèrent que l'émission d'aérosols désertiques depuis la zone de sédiment est de 1.2 ± 0.5 Tg/jour pendant les événements de soulèvement d'aérosols.

L'émission des aérosols désertiques en Afrique du Nord est aussi variable temporellement. En effet, l'émission est un phénomène à seuil où les fréquences et les intensités des émissions sont fortement liées aux variations des régimes de vent. Tout ceci conduit à ce que les émissions d'aérosols désertiques présentent souvent un cycle diurne ou saisonnier très marqués.

Les études du cycle diurne des émissions basées sur des mesures dans des stations comme Niamey, Zinder, Gao Tombouctou et Bilma, ont montré que l'occurrence d'épisode de soulèvement présente un maximum durant la journée entre 9 heures et 15 heures, et un minimum durant la nuit entre 21 heures et 3 heures (Ozer et al., 2001). Néanmoins ce cycle diurne semble vrai durant la saison sèche où la majorité de la région nord africaine est dominée par un renforcement de l'Harmattan par des jets de basses couches, mais ce n'est pas le cas durant la saison de mousson. Durant la saison de mousson, les courants de densité, émanant des systèmes convectifs organisés, provoquent d'importants soulèvements d'aérosols au-dessus de l'Afrique du Nord de jour comme de nuit (Bou Karam et al., 2008 ; Flamant et al., 2007).

Engelstaedter et al., (2006) ont analysé les AI de TOMS au dessus de l'Afrique du Nord pour la période de 1980 à 1992 et ils ont constaté la présence d'un cycle annuel très marqué (Fig. 1.13). Ce cycle est très marqué aussi bien en intensité

d'émission qu'en occurrence de soulèvement (Laurent et al., 2008). La plupart des sources nord africaines présentent un minimum d'activité entre Octobre et Novembre, et un maximum entre Avril et Août. Dans l'Ouest et le nord-ouest de l'Afrique, les émissions augmentent à partir du mois d'Avril et sont maximales durant la saison de mousson (Juin/Juillet) avant de décroître en Septembre. Le maximum d'émission depuis les zones sources Libyennes est observé entre Avril et Juin alors que depuis les zones sources Soudanaises le maximum d'émission est observé entre Avril et Août. La région de Bodélé au Tchad semble maintenir une activité élevée pratiquement tout au long de l'année, avec un minimum d'émission observé entre Novembre et Décembre (Fig. 1.13).

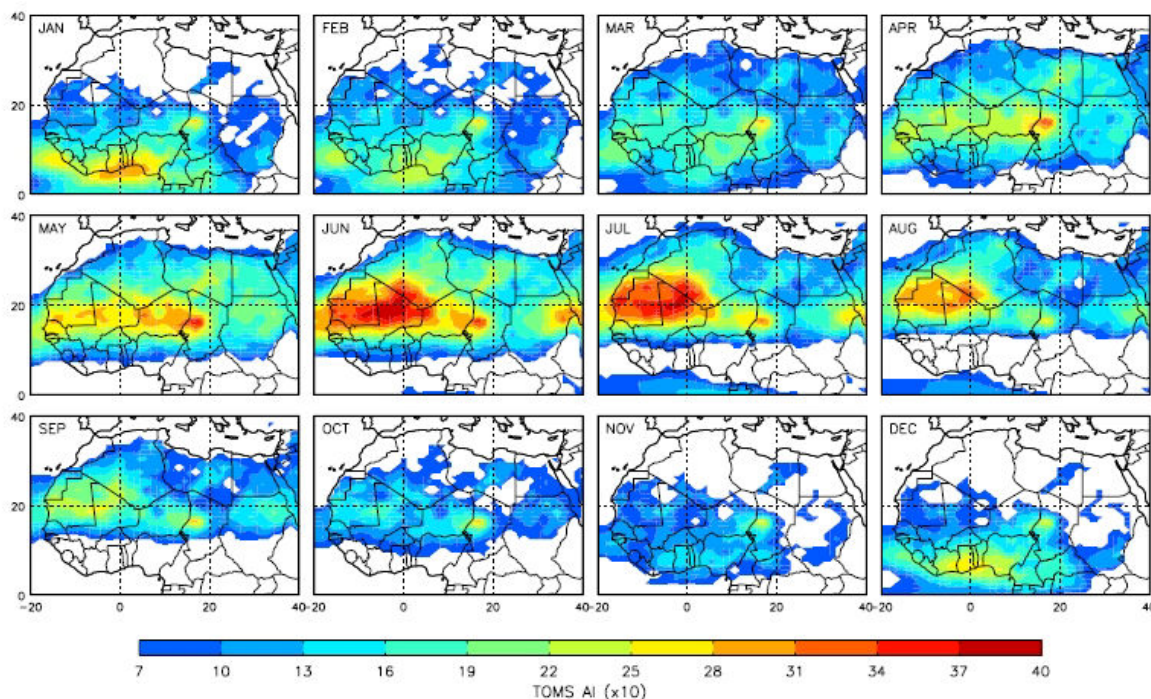


Figure 1.13 : Le cycle annuel des émissions d'aérosols désertiques depuis les sources nord africaines obtenu à partir des valeurs de AI de TOMS ($\times 10$) sur la période de 1980 à 1992 (Engelstaedter et al., 2006).

Les émissions depuis les sources nord africaines sont également contrôlées par des facteurs climatiques comme par exemple, l'Oscillation Nord Atlantique (NAO), la sécheresse, engendrant ainsi une variabilité d'une année à l'autre (Engelstaedter and Washington, 2007b ; Moulin et al., 1997). Depuis le milieu des années 1960, une augmentation de la fréquence des tempêtes de sable coïncidant avec des périodes de sécheresse a été observée dans la zone sahélienne

(Goudie and Middleton., 2001 ; Moulin et Chiapello et al., 2004). La variabilité interannuelle des émissions depuis les zones sources de l’Afrique de l’Est s’élève à 60%, alors que celle-ci ne s’élève qu’à 20% pour les émissions depuis les zones sources de l’Afrique de l’Ouest (Laurent et al., 2008). En ce qui concerne la variabilité interannuelle des émissions de la région de Bodélé au Tchad, celle-ci est principalement contrôlée par la variabilité des jets de basses couches (Washington and Todd., 2005).

1.6.3 Le mode de production

1.6.3.1 Action du vent sur la surface

Brièvement évoqué à la sous-section précédente, l’émission d’aérosols désertiques est un phénomène à seuil qui dépend de la vitesse du vent de surface. Le vent est l’élément moteur du processus de génération des aérosols désertiques. Le vent de surface est sensible aux changements des caractéristiques de la surface. Ces changements peuvent être dus à la présence de végétation ou de rochers. Dans les premiers mètres de l’atmosphère, une couche limite de surface se développe, au sein de laquelle la composante horizontale de la vitesse du vent présente un gradient vertical dont l’intensité dépend de la capacité de la surface à freiner l’écoulement de l’air.

La force de frottement en surface (τ) peut s’exprimer en fonction de la vitesse de frottement (U_*), qui est généralement la grandeur physique utilisée pour quantifier la force de friction exercée par le vent sur une surface (Beucher et al., 2010) :

$$(1.13)$$

étant la masse volumique de l’air (en kg.m^{-3})

Cette vitesse de frottement se détermine à partir de la vitesse du vent moyen mesuré à une hauteur z du sol et de la hauteur de rugosité aérodynamique du sol z_0 , en utilisant un profil de vent logarithmique (Priestley, 1959) :

$$\frac{U_m(z)}{U_*} = K \left(\frac{z}{U_*} \right)^{1/4} \quad (1.14)$$

U_* étant la vitesse de frottement (en $m.s^{-1}$), K la constante de Von Karman (adimensionnelle), et $U_m(z)$ le profil de moyen à une hauteur z (en $m.s^{-1}$).

1.6.3.2 La mobilisation des particules

La présence d'agrégats à la surface des sols est un facteur déterminant pour les émissions d'aérosols désertiques. Les forces qui s'exercent sur ces agrégats sont les forces de gravité, les forces de cohésion interparticulaire et les forces capillaires lorsque les sols atteignent une certaine teneur en eau liquide (Iversen and White, 1982 ; Ishizuka et al., 2005). Ces trois forces s'opposent à l'action mécanique du vent sur le sol, c'est-à-dire à la force de friction en surface, qui tend à arracher les agrégats du sol. Ainsi pour mettre ces agrégats en mouvement, il faut que la force de friction exercée par le vent sur la surface soit supérieure à la somme des forces mentionnées précédemment. Cela signifie qu'il existe une vitesse de friction minimale, dite « vitesse de friction seuil », qui détermine la vitesse au-delà de laquelle le mouvement des agrégats est initié.

Nature du sol	Vitesse de frottement seuil ($m.s^{-1}$)
Dunes de sable fin à moyen (erg)	5-8
Région sableuse avec des petite zones caillouteuses	10
Matériau fin, désert plat	10-13
Vallée alluviale et dépression saline croûtée (chott)	15-18
Désert de caillou (reg)	20

Table 1.6 : *Vitesse de friction seuil (en $m.s^{-1}$) pour différents type de surface sec. Lorsque ces valeurs sont dépassées, les poussières s'arrachent du sol. La compilation est faite à partir du travail de Beucher et al.,(2010).*

La valeur de la vitesse de friction seuil dépend principalement de la nature du sol (la composition, l'humidité, la rugosité) et également du diamètre des particules constitutives des sols (Fécan et al., 1999 ; Gillette et al., 1982). Par exemple, la teneur en argile des sols favorise l'augmentation de la vitesse de friction seuil (Gillette et al., 1982). Cela s'explique par le fait que l'argile conditionne la formation d'agrégats de taille importante où des croûtes protectrices à la surface. Les valeurs de vitesse de friction seuil pour différentes natures de sol sec sont

reportées dans le tableau 1.6. Selon les valeurs listées dans ce tableau, la vitesse de friction seuil peut varier de 5 à 13 m.s^{-1} pour des régions sableuses, et de 15 à 20 m.s^{-1} pour des sols encroûtés et des déserts de cailloux.

1.6.3.3 Les mouvements des particules mobilisées

Les particules arrachées du sol vont présenter différents mouvements, comme illustré sur la figure 1.14. Une fois soulevée, la particule est soumise à deux forces qui sont la force de gravitation et la résultante verticale des forces aérodynamiques. Dans le but de connaître si la particule arrachée du sol continuera son ascension ou retombera, il faut comparer la vitesse limite de chute de la particule dans l'air et la vitesse de friction.

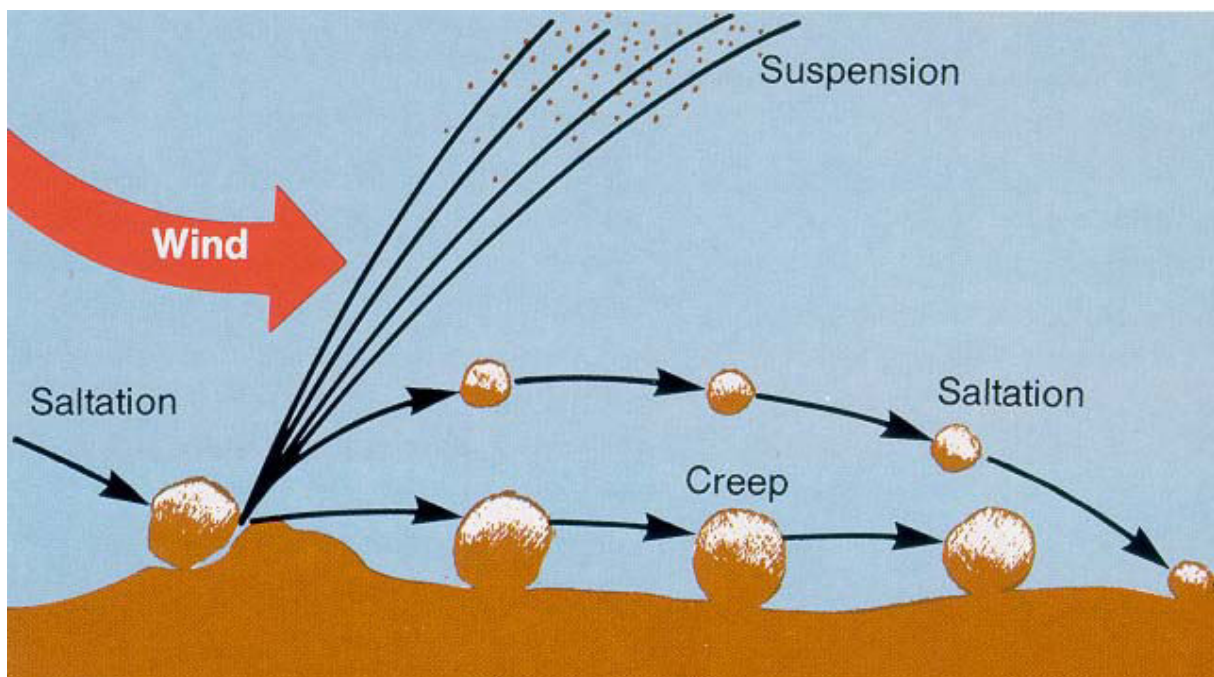


Figure 1.14 : Mouvements des grains du sol sous l'action du vent (source : <http://oceanworld.tamu.edu>)

Dans le cas où la vitesse de friction est supérieure à la vitesse limite de chute de la particule, celle-ci est entraînée dans un mouvement ascendant appelé « suspension » (Fig. 1.14). Les particules entraînées en suspension sont les particules dont le diamètre est inférieur à 60 μm (Hamblin and Christiansen, 2001). Pour les particules dont le diamètre est compris entre 20 μm et 60 μm , la mise en suspension est relativement brève et les particules retombent assez près

des zones sources. Lorsque le diamètre de la particule est inférieur à $20\ \mu\text{m}$, le temps où la particule est en suspension celle-ci pourra être transportée.

Dans le cas où la vitesse limite de chute de la particule est supérieure à la vitesse de friction, la particule est entraînée soit en reptation où soit en saltation. Les particules entraînées en saltation sont les particules dont le diamètre est compris entre $60\ \mu\text{m}$ et $500\ \mu\text{m}$, alors que la reptation ne concerne que les particules dont le diamètre est supérieur à $500\ \mu\text{m}$ (Hamblin and Christiansen, 2001 ; Shao et al., 2000). Ces deux modes de déplacement conduisent à un processus de libération de fine particule connu sous le nom de sandblasting (Fig. 1.15).

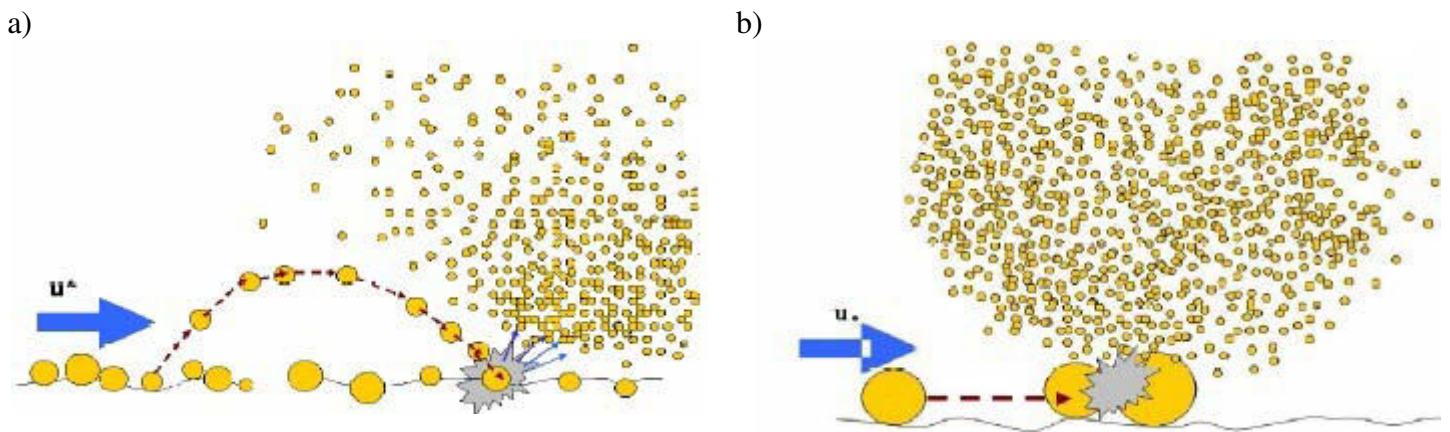


Figure 1.15 : Illustrations du processus de sandblasting dans le cas où la particule entraînée dans un mouvement (a) de saltation et (b) de reptation, d'après Bouet et al., (2007)

Lorsque les particules sont entraînées en saltation et retombent sur le sol, leur énergie cinétique reçue de la friction du vent provoque la libération de particule plus fine (Fig. 1.15a). Dans le cas de la reptation, les particules roulent et éclatent par collision avec d'autres éléments présents à la surface, provoquant également la libération de particule plus fine (Fig. 1.15b). L'intensité de production des fines particules dépend du rapport entre le flux d'énergie cinétique transféré par les agrégats et les forces de cohésion des particules formant les agrégats. Du fait de leur faible taille, les fines particules libérées par sandblasting sont directement entraînées en suspension et constituent l'essentiel du flux vertical d'aérosols désertiques.

1.6.4 Les mécanismes de soulèvement

1.6.4.1 Le contexte dynamique

Les émissions d'aérosols désertiques depuis les zones sources nord africaines sont la conséquence d'un certain nombre de processus météorologiques et dynamiques propres au climat africain. En basses couches, on peut identifier les principaux acteurs responsables du transport des particules d'aérosols :

- Le flux d'harmattan : Les alizés de l'hémisphère Nord balayent l'Afrique de l'Ouest du nord-est vers le sud-ouest et prennent le nom d'Harmattan. Ce vent sec et très turbulent dans les basses couches, peut aller jusqu'à 5 km d'épaisseur et est très chargé en aérosols désertiques.
- Le flux de mousson : En été, le gradient de température méridien provoque une circulation du sud vers le nord. Les alizés de l'hémisphère Sud dépassent alors l'équateur et s'orientent vers le nord-est. Ce vent de basse couche est appelé flux de mousson. Il est relativement plus froid que l'harmattan, plus chargé en humidité par l'océan et son épaisseur ne dépasse généralement pas 2 km.
- La convergence de ces deux flux dans les basses couches s'appelle le Front Inter Tropical (FIT). La position moyenne du FIT varie au cours de l'année en phase avec la mise en place de la mousson au-dessus des terres. Ainsi le FIT se situe autour de 9°N en hiver et entre 16°N et 20°N en été (Ginoux et al., 2001).

Durant la saison humide, le flux de mousson et le flux d'Harmattan créent deux couches différentes d'un point de vue thermodynamique qui sont : la couche de mousson et la couche d'air Saharienne (SAL) (Carlson and Prospero, 1972). Lorsque le flux d'Harmattan rencontre le flux de mousson, il est moins dense et passe au-dessus favorisant le transport en altitude des aérosols désertiques qui peuvent être ensuite advectés sur de longue distance. De plus, durant cette période, lorsque le flux de mousson s'installe sur les terres, le FIT balaye de nombreuses zones sources d'aérosols désertiques (Bou Karam et al., 2009 ; Prospero et al., 2002 ; Schpanski et al., 2007) ce qui favorise un transport

efficace de ces aérosols désertiques au-dessus de la couche limite du fait des forts phénomènes turbulents qui se produisent à proximité du FIT (Bou Karam, 2008). En saison sèche, les aérosols désertiques durant le transport transatlantique sont généralement plus bas en altitude (4 km) du fait que la SAL ne chevauche pas le flux mousson, comme c'est le cas en saison humide. En parallèle, d'autres processus dynamiques se produisent favorisant le transport des aérosols désertiques.

1.6.4.2 Les jets de basses couches

Les jets de basses couches constituent un mécanisme très efficace pour l'émission d'aérosols désertiques depuis les zones sources nord africaines. En effet, 65% de l'activation des zones sources de l'Afrique du Nord est associé aux jets de basses couches (Shepanski et al., 2009). Les jets de basses couches se présentent ainsi comme le mécanisme de soulèvement dominant de la région nord africaine (Knippertz et al., 2008 ; Todd et al., 2008). Ces jets de basses couches sont caractérisés par des maximums de vitesses de vent de surface de l'ordre de 20 m.s^{-1} (Banta et al., 2006 ; Beucher et al., 2010). Les jets de basses couches se forment au-dessus de l'Afrique du Nord tout au long de l'année, avec néanmoins une fréquence d'occurrence qui est plus importante en hiver qu'en été. De plus, la fréquence d'occurrence et l'intensité des jets de basses couches sont accentuées par l'orographie, comme c'est le cas au-dessus de la dépression de Bodélé.

Le couplage entre les émissions d'aérosols désertiques et la dynamique des jets de basses couches est bien illustré par les soulèvements d'aérosols dans la région de Bodélé au Tchad (Prospero et al., 2002 ; Todd et al., 2008 ; Washington et al., 2003). La campagne BoDEX a permis de mettre en évidence à partir des observations directes que les jets de basses couches constituent les principaux générateurs des vents intenses à la surface, responsables des soulèvements d'aérosols dans cette région. Ainsi les mesures de vent à Chicha (Tchad) ont montrées un jet de basse couche à 960 hPa associé à des vents de 16 m.s^{-1} (Todd et al., 2008).

1.6.4.3 Les activités cycloniques

Les différences de températures entre le continent nord africain et la méditerranée favorise la formation de systèmes cycloniques au-dessus du Sahara (Alpert et Ziv, 1989 ; Trigo et al., 2002). Ces cyclones sont connus sous le nom de cyclone Sharav ou encore dépression de Khamsin. La fréquence d'occurrence de ces cyclones Sharav est particulièrement importante à l'est et au sud des montagnes de l'Atlas marocain durant le printemps (Barkan et al., 2005 ; Shepanski et al., 2009). Ainsi, en plus du rôle du gradient de température, celui de l'orographie est également important dans la formation des cyclones Sharav au printemps. Les cyclones Sharav se déplacent à des vitesses supérieures à 10 m.s^{-1} vers l'est en longeant les côtes de l'Afrique du Nord (Alpert and Ziv, 1989 ; Alpert et al., 1990 ; Barkan et al., 2005). L'activation des zones sources d'aérosols par la dynamique des cyclones Sharav peut se produire à n'importe quel moment de la journée (Thorncroft and Flocas, 1997 ; Alpert and Ziv, 1989 ; Prezerakos et al., 1990 ; Dayan et al., 1990).

Plus récemment, Bou Karam et al., (2009) ont notifié la formation de systèmes cycloniques au sud des massifs de l'Hoggar et l'Aïr au-dessus du Sahel durant la période de mousson. La formation de ces cyclones Sahéliens sont due à des effets dynamiques faisant intervenir le cisaillement horizontal caractérisant le FIT renforcé par la présence de jets de basses couches induit par le blocage orographique des masses d'air froides en provenance de la méditerranée. Les forts vents de surface associés à la dynamique de ces cyclones sont capables d'initier de soulèvement d'aérosols au-dessus de la région du Sahel et de favoriser le mélange vertical des aérosols soulevés (Bou Karam et al., 2009).

1.6.4.4 L'activité convective

Aux environs de la mi-mai, au début de l'été, la ZCIT, jusque-là située en dessous de 10°N , remonte. Les vents changent et soufflent alors de l'océan vers le continent, apportant ainsi un air chargé en humidité au-dessus des terres. Ceci conduit à la formation de systèmes convectifs de méso-échelle (Mesoscale Convective System, MCS), qui se présentent sous forme d'amas nuageux ou de ligne de grain. Les rafales de vent d'air humide et froid associés à la dynamique

de ces systèmes convectifs produit au-dessus du Sahel peuvent atteindre des vitesses moyennes de 25 m.s^{-1} . Les courants de densité émanant de ces systèmes convectifs peuvent se propager sur des centaines de kilomètres et atteindre le Sahara (Flamant et al., 2009a).

Le soulèvement d'aérosols associés à la dynamique de ces systèmes convectifs est connu sous le nom de « Haboob » (Flamant et al., 2007). Les haboobs s'observent sur de petites distances (entre 100 et 150 km) mais elles sont très impressionnantes car elles ressemblent à de véritables murs de poussières (Fig. 1.16). Etant donné que les phénomènes convectifs sont associés à de la forte turbulence, les haboobs peuvent atteindre des épaisseurs de 1500 à 2000 mètres avec des records à 5000 mètres (Beucher et al., 2010). L'occurrence des haboobs est liée à la dynamique de la convection humide. Par ailleurs, ces systèmes convectifs humides contribuent très significativement à la mise en suspension d'aérosols désertiques (Flamant et al., 2009). De plus par transport convectif les aérosols désertiques peuvent être transportés à des altitudes élevées (Tulet et al., 2010).



Figure 1.16 : Image d'un soulèvement d'aérosols désertiques associé à la convection humide (Haboob) observé au Soudan. (Source : Hamblin et Christiansen, 2001).

1.6.5 Principales voies de transport du panache à grande échelle

Les mécanismes de soulèvement contribuent à l'émission des aérosols désertiques, mais constituent également un moyen efficace pour la distribution verticale des aérosols désertiques, leur donnant ainsi le potentiel d'atteindre des altitudes élevées et de devenir disponibles au transport à grandes distance. Les aérosols désertiques émis depuis les sources nord africaines sont principalement transportés vers trois régions (Fig. 1.17) : (A) la région Transatlantique (Barkan et al., 2004 ; Carlson and Prospero, 1972 ; Nowotnick et al., 2011 ; Perry et al., 1997), (B) la région Méditerranéenne-Européenne (Barkan et al., 2005 ; Bobely-Kiss et al., 2004 ; Collaud Coen et al., 2004) et (C) la région du Moyen Orient (Israelevich et al., 2002, 2003 ; Tanaka and Chiba., 2006). Selon l'étude d'Almeida, (1986), 60% des aérosols désertiques nord africains sont transportés vers le golf de Guinée, 28 % vers l'Atlantique et 12 % vers l'Europe.

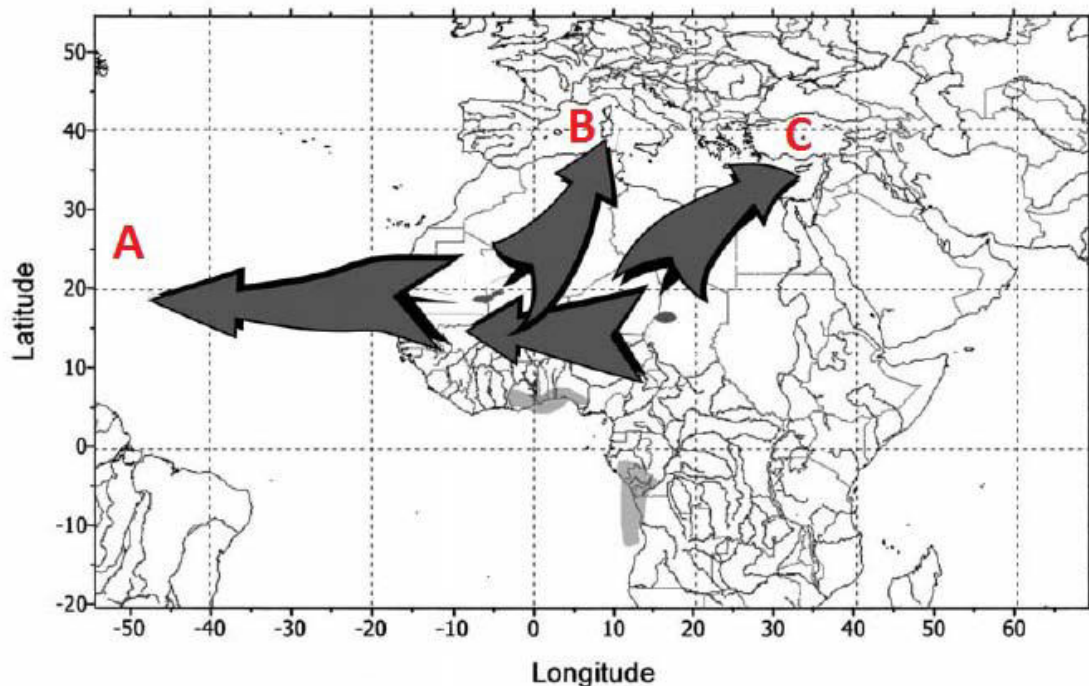


Figure 1.17 : Principales trajectoires du transport des aérosols désertiques émis depuis les sources nord africaines : (A) Transatlantique ; (B) Méditerranéenne-Européenne et (C) Moyen Orient, d'après Israelevich et al., (2002)

Le transport transatlantique constitue la trajectoire majoritairement empruntée par les panaches d'aérosols désertiques nord africains. Durant l'été, les aérosols peuvent atteindre les Antilles, avec des maximums de concentration en aérosols désertiques mesuré au Barbade (Petit et al., 2005 ; Prospero et al., 1970). Durant l'hiver, ces aérosols transportés vers l'Amérique du sud, avec des maximums de concentrations en aérosols désertiques mesurés en Guyane française (Prospero et al., 1981). Le transport en direction du continent américain se fait à partir des panaches issus des zones sources de l'Afrique de l'Ouest (Washington et al., 2006a). Le transport transatlantique est essentiellement modulé par l'activité des ondes d'Est africaines qui se propagent d'est en ouest durant l'été (Jones et al., 2003, 2004). Durant l'hiver, le transport des aérosols désertiques nord africains est lié à la dynamique du FIT (Bou Karam et al., 2008 ; Engelstaedter et al., 2006).

Les aérosols désertiques émis depuis l'Afrique du Nord sont souvent transportés vers la méditerranée (Ganor and Mamane, 1982) et également vers l'Europe du Sud, et tout particulièrement vers la région italienne (Barkan et al., 2005 ; Prodi et Fea., 1989). Les panaches nord africains peuvent également atteindre épisodiquement les pays de l'Europe central (Ansmann et al., 2003 ; Borbely-Kiss et al., 2004 ; Collaud Coen et al., 2004), et de la Scandinavie (Franzen et al., 1994). Les aérosols sont transportés suivant cette trajectoire entre 2.5 et 6.5 km d'altitude comme l'ont indiqué plusieurs observations (Collaud Coen et al., 2004 ; Hamonou et al., 1999 ; Mattis et al., 2003 ; Mona et al., 2006 ; Papayannis et al., 2008). Le transport vers le bassin méditerranéen et le continent européen se fait essentiellement à partir des panaches issus des zones sources Algériennes, Tunisiennes et Libyennes (Prodi and Fea, 1979). A partir des observations spatiales de TOMS et de l'analyse des champs de vent du National Center for Environmental Protection/National Center for Atmospheric Research (NCEP/NCAR), Bakan et al., (2005), ont montré que les panaches empruntant cette trajectoire sont modulés par la présence d'un système dépressionnaire s'étendant sur toute la côte ouest européenne jusqu'au nord-ouest de l'Afrique, et d'un système anticyclonique s'étendant de l'Europe de Sud jusqu'au nord-est du continent africain (Fig. 1.18a).

L'action de ces deux systèmes génère un flux de secteur sud-ouest favorisant le transport du panache vers la méditerranée et l'Europe (Fig. 1.18b). Ces deux systèmes météorologiques caractérisent ainsi les conditions synoptiques conduisant au transport des aérosols nord africains vers la méditerranée et l'Europe (Barkan et al., 2005). A partir des observations satellitaires, Moulin et al., (1998), ont mis en évidence que le transport selon cette trajectoire suit un cycle saisonnier découlant de la localisation et de l'intensité des vents issus de ces deux systèmes. Ce cycle saisonnier est bien marqué par la présence d'un maximum du transport selon cette trajectoire entre mars et août, et d'un minimum en hiver.

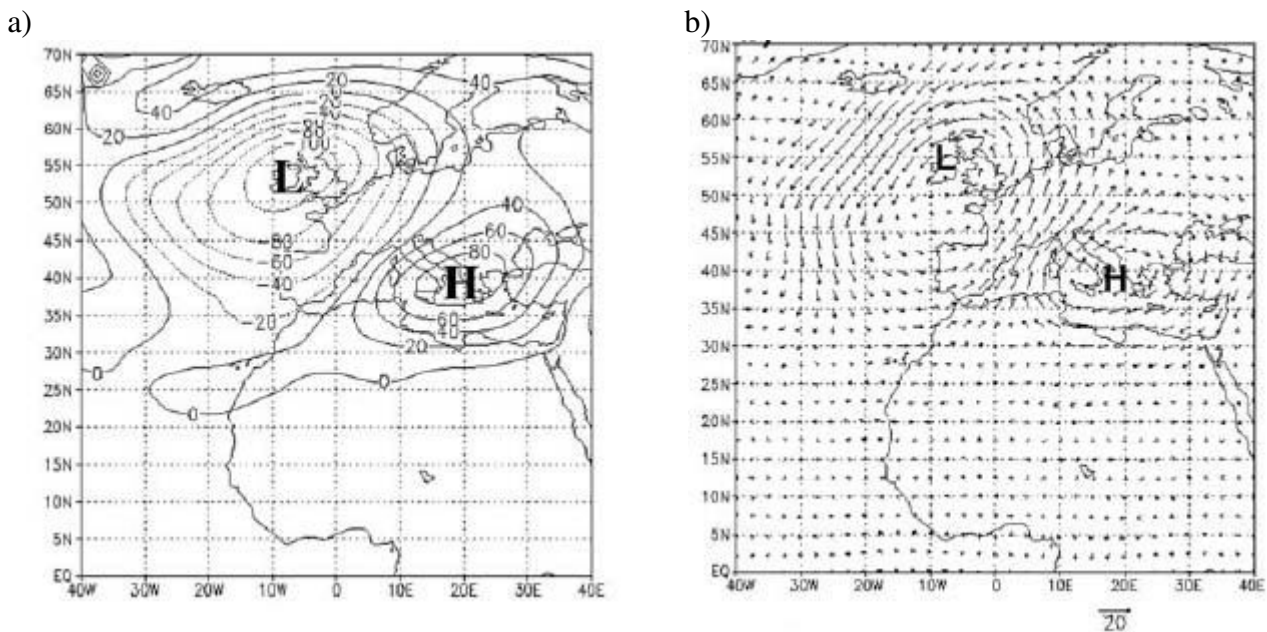


Figure 1.18 : (a) Anomalies de géopotential et (b) champs de vent à 700 hPa caractérisant un épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains vers la Méditerranée et l'Europe. D'après Barkan et al., (2005).

Les observations satellitaires mettent de plus en plus en évidence un transport des aérosols désertiques nord africains vers le Moyen Orient (Alpert and Ganor, 2001 ; Kubilay et al., 2000). Le transport selon cette trajectoire se fait essentiellement à partir des panaches issus du Sahara Oriental (Libye, Egypte, Soudan). Selon l'étude d'Israelevich et al. (2003), le transport vers le Moyen Orient est significatif durant le printemps, l'été et l'automne. Suite aux travaux de Tanaka and Chiba. (2006), il a été révélé un transport transcontinental des

aérosols désertiques nord africains jusqu'au Japon en passant par le Moyen Orient.

1.6.6 Propriétés physico-chimiques et optiques

1.6.6.1 Granulométrie

Comme nous l'avons vu à la section 1.2.3, la distribution granulométrique est cruciale car elle va influencer les propriétés optiques de la population d'aérosols, et également leur efficacité à interagir avec le rayonnement solaire et tellurique. Au sein des modèles (dont Méso-NH, Cf. chapitre 2), il est possible de représenter les aérosols désertiques par une distribution en taille en loi lognormale comportant plusieurs modes. La distribution à trois modes proposée par Alfaro and Gomes (2001), à partir des travaux réalisés en soufflerie, est très largement utilisée dans de nombreux schéma d'émission. Cette distribution répartit les aérosols désertiques émis suivant trois modes centrés des rayons médians de 0.75, 3.35 et 7.1 μm . Les études numériques s'appuyant sur cette distribution montrent que cette distribution représente assez bien le flux massique des émissions d'aérosols désertiques (Bou Karam et al., 2009 ; Crumeyrolle et al., 2010 ; Sow et al., 2011). Les observations menées sur le terrain révèlent qu'il n'est pas évident de définir une distribution universelle. Ceci résulte du fait que la distribution granulométrique des particules va dépendre des conditions météorologiques (vitesse du vent) responsable du soulèvement des aérosols désertiques, du type de sols sources, de la rugosité de la surface et des processus de vieillissement.

Les mesures de terrain ont montré que la distribution granulométrique des aérosols désertiques nord africains peut présenter un ou plusieurs modes. Il a ainsi été répertorié dans le tableau 1.7 quelques exemples de rayons médians caractérisant les distributions granulométriques (en nombre) des aérosols désertiques obtenues par ajustement lognormale des observations issues de différentes stations nord africaines.

Références	Localisation	Instruments/Méthodes	Rayon médian (μm)
D'Almeida (1987)	Sénégal/Mali/Niger	Inversion photométrique	0.08/ 1.6/ 5
Tanré et al., 2001a	Niger	Inversion photométrique	0.3/ 1.5/ 2
Masmoudi et al., 2003	Tunisie	Inversion photométrique	1.3/ 3.8
Crumeyrolle et al., 2008	Mali/Niger	SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer)/ OPC (Optical Particles Counter)	0.03/ 0.1/ 0.3
El-Metwally et al., (2008)	Egypte	Inversion AERONET	1.5/ 4
Kandler et al., (2009)	Maroc	DMPS (Differential Mobility Particle Sizer) / APS (Aerodynamic Particle Sizer)	0.04 / 0.7/ 15

Table 1.7 : Exemple de rayons médians caractérisant les distributions granulométriques (en nombre) des aérosols désertiques obtenues par ajustement lognormale des observations issues de différentes stations nord africaines.

La distribution granulométrique massique des aérosols désertiques s'étend sur une gamme de rayon allant de 0.5 μm à 5 μm . La distribution massique des aérosols désertiques est largement dominée par les particules du mode grossier. A partir des observations dimensionnelles collectées en Algérie, Gomes et al., (1990) ont mis en évidence une distribution granulométriques massiques monomodale des aérosols désertiques centrée sur 1.5 μm (correspondant au maximum de concentration). Grâce aux mesures des stations du réseau AERONET et aux campagnes de mesure (SHADE, DODO, AMMA, SAMUM...) réalisées en Afrique du Nord, il a pu être observé la présence d'un mode fin dominant la distribution granulométrique en nombre des aérosols désertiques (table 1.7). La distribution granulométrique en nombre des aérosols désertiques peut s'étaler sur une gamme de rayon allant de 0.04 μm à 15 μm .

1.6.6.2 Composition chimique et hygroscopicité

Les aérosols désertiques sont composés d'un mélange de minéraux tels que le quartz, le feldspath et l'argile. Les compositions minéralogiques dépendent fortement de la région source. En effet, Caquineau et al., (2002) montrent qu'il est possible de déterminer la zone source à partir du rapport illite/kaolinite. Ces minéraux, émis à partir du sol dont la composition moyenne est présentée dans le

tableau 1.8, sont majoritairement composés de fer, d'aluminium et de silicium (Schütz and Sebert, 1987 ; Warner et al., 1988). A partir des données collectées en Algérie, Gomes et al., (1990) révèlent également que les aérosols désertiques sont appauvris en silicate mais enrichis en aluminium et en fer par rapport à la composition des sols. De récents travaux réalisés par Klaver et al (2011) mettent en évidence une plus grande proportion des oxydes de fer dans les aérosols désertiques issus des sources Sahéliennes que ceux provenant des sources Sahariennes.

Elément	Concentration massique des sols (%)
Silicium	33
Aluminium	7.13
Fer	3.8
Calcium	1.37
Potassium	1.36
Magésium	0.63
Sodium	0.63
Titane	0.46
Manganèse	0.085
Chrome	0.02
Vanadium	0.01
Cobalt	0.0008

Table 1.8 : Composition chimique moyenne des sols désertiques, d'après Warner 1988

Le tableau 1.8 met en évidence que les minéraux composant ces aérosols désertiques sont peu solubles dans l'eau. D'après Pruppacher and Klett (1997), la plupart de ces particules ne sont pas capable d'agir en tant que CCN. Cependant au cours de leur transport, certains processus peuvent créer autour des aérosols désertiques une pellicule de matière soluble, leur permettant de servir de CCN (Levin et al., 1996 ; Trochkin et al., 2003 ; Yin et al., 2002). En effet, Wurzler et al (2000) ont montré que des aérosols désertiques qui ont été incorporés dans des gouttelettes nuageuses et qui ensuite après évaporation sont rejetés dans l'atmosphère, constituent des aérosols désertiques chimiquement modifiés. De

plus, Levin et al (1996) ont mis en évidence que le transport de panache d'aérosols désertiques à basse altitude au-dessus de la mer peut entraîner la formation d'une pellicule soluble sur une grande partie des aérosols du panache.

Une importante fraction des aérosols désertiques peut rester en tant qu'aérosol interstitiel dans des nuages convectifs et atteindre la troposphère moyenne et supérieure, où ils peuvent agir comme noyau de glace (IFN, Ice Forming Nuclei). En effet, il est admis par le biais d'observations que les aérosols désertiques nord africains peuvent jouer le rôle de IFN bien qu'ils ont un potentiel CCN peu élevé dans l'atmosphère (Chou et al., 2011 ; DeMott et al., 2003 ; Klein et al., 2010). Les fractions actives de CCN et de IFN pour les aérosols désertiques nord africains dépendent fortement de leur région source et des processus atmosphérique.

1.6.6.3 Indice de réfraction complexe

En plus de la distribution granulométrique, le comportement optique des particules dépend également de leur indice de réfraction. Il y a encore une vingtaine d'année de cela, il existait peu de valeurs publiées de l'indice de réfraction caractérisant les aérosols désertiques en Afrique. Cependant avec la réalisation des récentes campagnes de terrain (SHADE, DABEX, DODO, SAMUM...), l'indice de réfraction des aérosols désertiques Sahariens et Sahéliens a été ré-évalué de façon plus systématique au cours de ces dernières années. Le tableau 1.9 présente une synthèse des indices de réfractances d'aérosols désertiques nord africains déterminés au cours de ces dix dernières années.

Une information importante issue du tableau 1.9 est que la partie imaginaire de l'indice de réfraction des aérosols désertiques décroît avec la longueur d'onde alors que la partie réelle varie relativement constante. La variabilité naturelle des indices de réfraction des aérosols désertiques est due à la diversité de leur composition minéralogique et de leur distribution granulométrique.

Localisation	$\lambda_{400-450 \text{ nm}}$	$\lambda_{530-550 \text{ nm}}$	$\lambda_{650-700 \text{ nm}}$	Références
Maroc (Tinfou)/ sol	1.53 + 5.1i	1.53 + 1.6i	1.53 + 0.45i	Müller et al 2009
Maroc (Tinfou) sol	1.57 + 6.6i	1.56 + 3.5i	1.55 + 0.33i	Kandler et al 2009
Maroc (Tinfou)/ sol		1.53 + 4.1i	1.53 + 3.1i	Schladtz et al 2009
Maroc /avion		n □ [1.51 ; 1.55] k □ [0.8 ; 6.0]		Otto et al 2009
Sud-est Maroc/ avion	n □ [1.55 ; 1.56] k □ [3.1 ; 5.2]	n □ [1.55 ; 1.56] k □ [3.0 ; 4.0]	n □ [1.55 ; 1.56] k □ [0.3 ; 2.5]	Petzold et al 2009
Bodélé /sol	1.46 + 2.0i		1.47 + 1.0i	Todd et al 2008
Cap vert /sol	1.48 + 2.5i		1.48 + 0.7i	Dubovik et al 2002
Sénégal /avion		1.53 + 1.5i		Haywood et al 2003a
Niger / avion		1.53 + 0.4i		Osborne et al 2008
Mauritanie / avion		n □ [1.49 ; 1.56] k □ [0.1 ; 4.6]		McConnell et al 2010
Cap Vert / sol	1.575 + 12.0i	1.577 + 7.0i	1.573 + 0.67i	Kandler et al 2011
Cap Vert / avion	1.550 + 4.0i	1.55 + 3.0i	1.546 + 1.0i	Weinzierl et al 2011

Table 1.9 : Indices de réfraction ($n + k 10^{-3}i$) des aérosols désertiques nord africains déterminés au cours de ces dix dernières années, d'après Malavelle, 2011.

Bien que des améliorations significatives aient été faites en ce qui concerne l'évaluation de l'indice de réfraction des aérosols désertiques, le manque d'information à l'échelle régionale sur la composition chimique de ces aérosols limite encore l'estimation des impacts radiatifs et des propriétés optiques de ces aérosols (Lafon et al., 2006).

1.7 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons présenté les propriétés des aérosols atmosphériques, en portant une attention particulière aux aérosols désertiques nord africains, en synthétisant la littérature récente sur le sujet. Le point clef qui en ressort est que les propriétés optiques de l'aérosol qui conditionnent la propagation de la

lumière à travers les couches atmosphériques, dépendent naturellement de la taille et de la forme de l'aérosol, mais également de sa composition chimique. En effet, la composition chimique, mais surtout l'état du mélange correspondant (interne ou externe) contrôle la nature du milieu en interaction avec la lumière, qu'est l'aérosol. L'influence de la chimie est alors portée par l'indice de réfraction de l'aérosol.

La majorité des travaux réalisés sur les aérosols désertiques nord africains révèlent le rôle déterminant du mode grossier sur le calcul des paramètres optiques de ces aérosols (Formenti et al., 2011 ; Haywood et al., 2003 ; McConnell et al., 2008 ; Reid et al., 2003). Les travaux numériques réalisés par Chen et al (2010) et Maring et al (2003) suggèrent que les distributions en taille des aérosols désertiques nord africains évoluent peu au cours de leur transport transatlantique. Suggérant ainsi que les propriétés optiques de ces aérosols désertiques sont toujours caractérisées par leur mode grossier.

Les études réalisées jusqu'à présent sur le sujet se sont majoritairement appuyées sur des cas de transport transatlantique. Cela s'explique par le fait que le transport transatlantique constitue la trajectoire majoritairement empruntée par les panaches d'aérosols désertiques nord africains. Il apparaît alors intéressant de voir si cela se vérifie toujours avec une autre trajectoire suivie par le panache. De plus, cela serait particulièrement intéressant lors d'un transport à longue distance du panache au-dessus de l'Europe, où sont présents des aérosols de pollution. Cela sera abordé au chapitre 4 au travers de l'analyse de notre cas d'étude.

Chapitre 2 : Moyens d'observation et de modélisation des aérosols désertiques

2.1 La stratégie mise en œuvre

Le but de ce chapitre est de faire l'inventaire des outils instrumentaux et modélisations qui ont été utilisés et/ou développés pour l'exploitation des résultats des chapitres 3 et 4. Le jeu de données utilisé pour cette étude résulte de la combinaison des observations sols, spatiales et également aéroportées réalisées lors de la campagne EUCAARI 2008. Néanmoins, malgré une large couverture temporelle et spatiale de divers types d'observations, un certain nombre de mécanismes intervenant dans les processus d'évolution des aérosols désertiques ne peuvent pas être suffisamment bien décrits par les jeux de données collectés par satellites ou lors de campagnes de terrain. D'où le besoin d'outils numériques additionnels, qui offrent une vision tridimensionnelle du panache d'aérosols désertiques, mais qui offre également la possibilité d'évaluer le rôle individuel des différents paramètres impliqués dans les processus d'évolution des aérosols

désertiques. Afin d'analyser les propriétés du panache, la stratégie mise en œuvre consiste en une approche combinée observations/modélisation numérique.

2.2 La télédétection photométrique

2.2.1 Description du photomètre solaire et du réseau AERONET

La télédétection photométrique repose sur l'analyse de l'atténuation du rayonnement solaire par les aérosols afin d'en extraire leurs propriétés optiques. Utilisant le soleil comme source de rayonnement électromagnétique, la télédétection photométrique est ainsi considérée comme une technique de télédétection passive. Le photomètre solaire est un instrument qui permet la restitution des propriétés optiques et microphysiques des aérosols intégrés verticalement sur la colonne atmosphérique. Les mesures photométriques sont exclusivement effectuées par ciel clair (absence de nuages). Les données photométriques utilisées dans le cadre de cette étude sont issues d'un photomètre CIMEL. Le CIMEL est un photomètre automatique à visée solaire fabriqué par la société CIMEL électronique. Ce type de photomètre est doté d'un panneau solaire et de batteries rechargeables, ce qui lui confère une autonomie complète (Fig. 2.1).



Figure 2.1 : Photo du photomètre CIMEL de la Réunion

Le photomètre CIMEL est équipé d'un système automatisé lui permettant d'exécuter des mouvements dans les plans zénithaux et azimutaux, ce qui lui permet de viser les points de la voûte céleste avec une précision de 0.05° et un champ de vue de 1.2° . Les mesures sont réalisées dans quatre bandes spectrales de largeur 10 nm à 440, 670, 870, et 1020 nm. Ces bandes spectrales correspondent à la localisation des fenêtres atmosphériques où l'absorption du rayonnement solaire par les composés gazeux est faible.



Figure 2.2 : Répartition des stations participant au réseau AERONET (source : www.aeronet.gsfc.nasa.gov).

Un réseau mondial opérationnel de photomètre CIMEL s'est développé depuis 1996 : le réseau AERONET (AERonet RObotic NETwork) (Holben et al., 1998). Ce réseau est composé de 300 photomètres répartis sur l'ensemble du globe, dont 35 qui sont gérés par la composante française du réseau, PHOTONS (PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire) labellisé par l'INSU et basée au LOA (Laboratoire d'Optique Atmosphérique). La figure 2.2 présente la répartition globale des stations du réseau AERONET. Ce réseau est géré à la fois par la GSFC (Goddard Space Flight Center) de la NASA (National Administration Space and Aeronautic), et par le LOA à Lille, qui assure l'étalonnage, l'instrumentation sur le site et la maintenance des instruments. Les données sont transmises via les satellites géostationnaires toutes les heures au centre de traitement de la GSFC. Il existe différents niveaux de traitement de données : niveau 1 (données brutes), niveau 2 (le masque nuage est appliqué alors que l'étalonnage final n'est pas forcément effectué) et niveau 2

(le masque nuage est appliqué ainsi que l'étalonnage final). Seules les données de niveau 2, ont été utilisées dans le cadre de cette étude. Les données issues de ces processus de traitement sont mises à la disposition de la communauté scientifique via le site internet www.aeronet.gsfc.nasa.gov.

2.2.2 Caractérisation des propriétés optiques et microphysiques

Les propriétés optiques et microphysiques restituées par le photomètre solaire sont obtenues à partir de deux types de mesures successives. Tout d'abord, le photomètre commence par viser directement le soleil (mesures dite directes ou encore méthode « sun »), ensuite l'appareil vise le ciel en suivant l'almucantar (mesures dite indirectes ou encore méthode « sky »). L'almucantar est le cercle de même élévation solaire comprenant le soleil, c'est-à-dire en conservant l'angle de visée zénithal θ_v constant (Fig. 2.3). Ceci permet de balayer une large gamme d'angle de diffusion tout en maintenant identique le trajet à travers la couche d'aérosols.

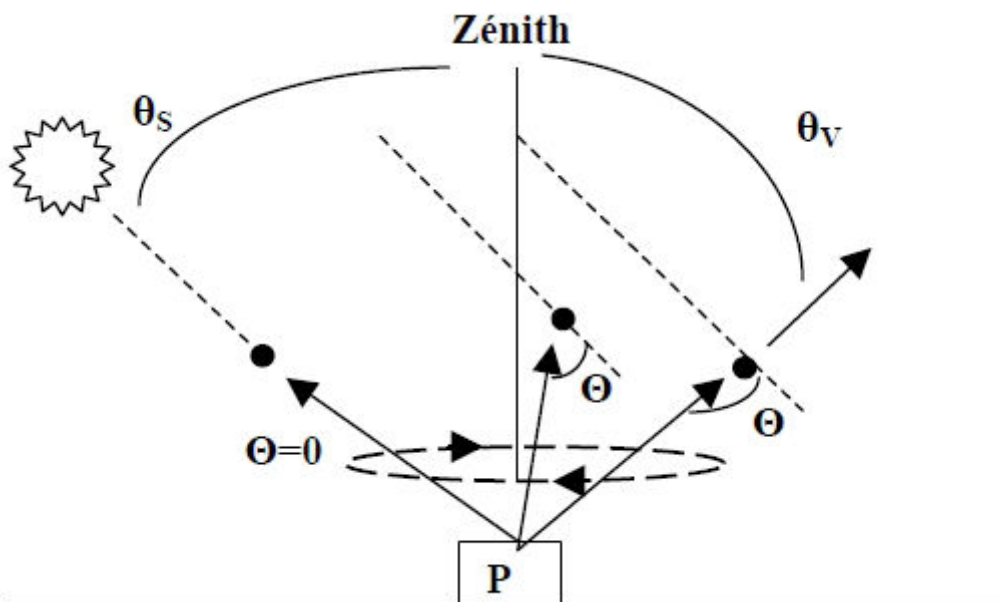


Figure 2.3 : Illustration schématique du principe de mesures photométriques (le photomètre étant désigné par « P ») de distribution angulaire de luminance du ciel dans l'almucantar $L(\theta, \theta_s, \theta_v)$ avec θ l'angle de diffusion de la population d'aérosol observé θ_v , l'angle de visée zénithal toujours constant dans le cas de la prise de mesure dans l'almucantar et θ_s l'angle de visée solaire (D'après Kacenenbogen-Tilot, 2008)

Le photomètre vise directement le soleil afin d'obtenir l'épaisseur optique d'extinction des aérosols à chaque longueur d'onde d'observation. La mesure directe de l'épaisseur optique d'extinction repose sur une mesure de l'atténuation du rayonnement solaire par les aérosols atmosphériques. La restitution de l'épaisseur optique d'extinction par le photomètre solaire repose ainsi sur la seule connaissance de la position du soleil et d'une constante d'étalonnage pour chaque longueur d'onde. Les mesures directes fournissent une épaisseur optique d'extinction à chaque longueur d'onde avec une précision estimée à 0.01 (Holben et al., 2001). L'épaisseur optique d'extinction mesurée englobe la totalité des aérosols présents dans la colonne atmosphérique. La méthode « Sun » se caractérise par sa robustesse et une haute cadence d'échantillonnage (1 mesure toutes les 15 minutes). Par ailleurs, c'est à partir de ces mesures d'épaisseur optique que sont calculés les coefficients d'Angström par le centre de traitement des données.

A partir de l'exploration du ciel suivant l'almucantar, en cercle parallèle à l'horizon, il est possible d'obtenir les propriétés optiques et microphysiques des aérosols (Fig. 2.3). Ces propriétés sont restituées par l'application d'un algorithme d'inversion (Dubovik et al., 2000, 2011; Dubovik and King et al., 2000) sur les mesures de luminance obtenues par le biais du photomètre en suivant l'almucantar.

L'algorithme d'inversion appliqué sur les mesures de luminances obtenues en suivant l'almucantar, peut se résumer comme étant le calcul du meilleur ajustement entre une luminance simulée à l'aide d'un code de transfert radiatif et une luminance mesurée. Afin d'augmenter la précision de cette méthode de restitution des paramètres optiques et microphysiques à partir des mesures de luminance, Dubovik et al (2000) recommandent pour cela :

- L'utilisation des données présentant des épaisseurs optiques d'extinction supérieures ou égales à 0.4 (à 550 nm), car il faut un minimum de contenu en aérosol pour inverser correctement les mesures de luminance.
- L'utilisation des mesures effectuées avec des angles zénithaux solaire supérieurs à 45°.

- L'utilisation des mesures présentant un nombre d'angle de diffusion supérieur ou égal à 21

Les propriétés restituées par cette méthode d'inversion (Dubovik et al., 2000) des mesures de luminance obtenues par le photomètre en suivant l'almucantar sont énumérées dans le tableau 2.1.

Variables	Description
$dV(r)/d\ln r$	Distribution en taille des aérosols en volume
$\Omega_0(\lambda)$	Albédo de diffusion simple
$g(\lambda)$	Facteur d'asymétrie
$n(\lambda)$	Partie réelle de l'indice de réfraction
$k(\lambda)$	Partie imaginaire de l'indice de réfraction
$P(\Theta, \lambda)$	Fonction de phase
LWC	Contenu en vapeur d'eau précipitable intégré

Table 2.1 : Propriétés optiques et microphysiques restituées par le photomètre solaire.

Dans les travaux exposés par la suite de ce manuscrit, seules les mesures donnant l'épaisseur optique, le coefficient d'Angström, l'indice de réfraction des aérosols seront utilisées. Le tableau 2.2 présente les incertitudes associées (après application des critères recommandés par Dubovik et al., 2000, cités plus haut) à ces paramètres optiques et microphysiques dérivés du réseau AERONET.

Variables	Incertitudes
$\tau(\lambda)$	0.01
$dV(r)/d\ln r$ $0.1 < r < 7 \mu\text{m}$	15-30 %
$n(\lambda)$	0.04
$k(\lambda)$	30-50 %

Figure 2.2 : Incertitude sur les mesures AERONET d'indice de réfraction (partie réelle et imaginaire), d'épaisseur optique d'extinction et de distribution en volume ($dV/d\ln r$) dans le cas de l'application des recommandations de Dubovik et al (2000).

La méthode de mesure « sky » nécessite d'avantage de temps que la méthode « sun », étant donné qu'elle s'effectue par une exploration complète du ciel.

2.3 Les données de la campagne EUCAARI

2.3.1 Description du projet européen EUCAARI

Le projet européen EUCAARI (2007-2010) (EUropean integrated project on Aerosol Cloud and Air quality interactions) s'est intéressé à l'étude des interactions entre les gaz, les aérosols et les nuages. Cela dans le but de mieux comprendre l'impact des aérosols sur la qualité de l'air et leur rôle dans le changement climatique en relation avec le cycle nuageux (Kulmala et al., 2009). Ce projet avait également pour ambition de pouvoir contribuer à l'amélioration de la modélisation du climat de l'échelle régionale à l'échelle globale.

Afin de répondre à ces objectifs, ce projet regroupait 48 instituts de recherche de 25 pays, avec pour la France, le CNRS, Météo-France et les universités de Clermont-Ferrand, Grenoble, Toulouse, Lille, Lyon et Paris. Ce projet a également bénéficié de l'apport d'infrastructure de recherche européen comme le réseau de station EUSAAR (European Supersites for Atmospheric Aerosol Research). Des laboratoires français se sont également impliqués dans ce projet, parmi eux le CNRM/GAME (Centre National de la Recherche Météorologique), le LaMP (Laboratoire de Météorologie Physique), le LGGE (Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement), le LA (Laboratoire d'Aérodynamique), le IRCELYON (Institut de Recherche sur la Catalyse et l'Environnement de LYON), le LOA (Laboratoire d'Optique Atmosphérique), le LATMOS (Laboratoire Atmosphère, Milieux, Observations Spatiales) et le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et l'Environnement).

La contribution de chacun de ces participants à ce projet a permis durant ces quatre années de recherche l'obtention d'informations sur la variabilité des propriétés physiques, chimiques et optiques des particules d'aérosols, permettant ainsi de mieux comprendre les mécanismes de transport et de transformation dans l'atmosphère et de mieux quantifier les sources d'émission (Kulmala et al.,

2011). Pour une revue plus complète sur le projet EUCAARI, le lecteur pourra se référer à Kulmala et al., 2009, 2011.

2.3.2 Instrumentations

Dans le cadre de cette étude, ce sont les données collectées lors de la période du 22 au 31 Mai 2008 qui ont été utilisées¹. Lors de cette campagne, la station de Cabauw aux Pays-Bas a servi de site principal pour l'observation des interactions entre les particules d'aérosols et les nuages. Une période d'observation intensive (POI) s'est déroulée au mois de mai 2008 notamment autour des projets EUCAARI-IMPACT (IMPACT pour Intensive Measurement Period at Cabauw Tower), EUCAARI-LONGREX (LONGREX pour LONG Range EXperiment).

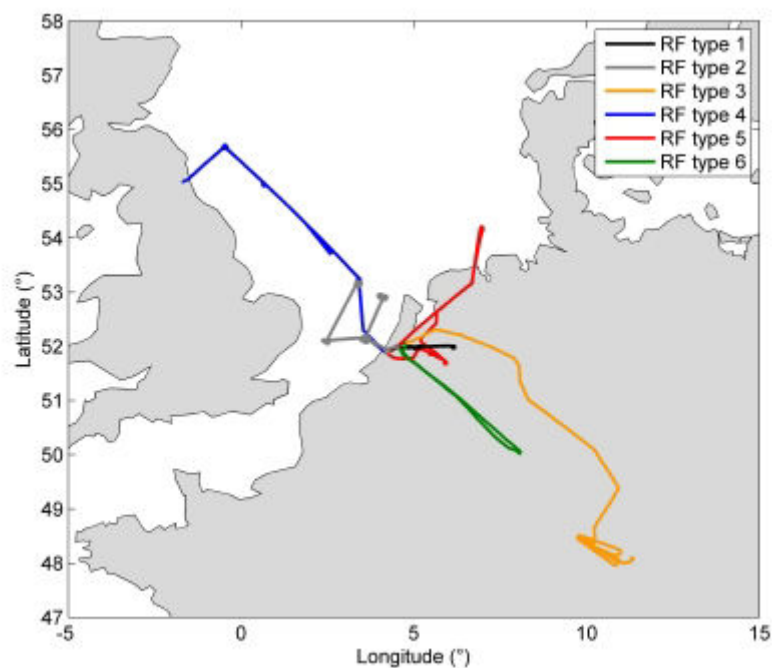


Figure 2.4 : Illustration des six trajectoires définissant les six catégories de vol effectué lors de ce mois de mai 2008 par l'ATR-42 (D'après Crumeyrolle et al., 2010).

¹ La campagne de mesure a été réalisée avant le début de la thèse excluant ainsi toute participation de l'auteur à la réalisation des mesures. Néanmoins, celui-ci a été proche des personnes ayant fait les mesures pour l'analyse des données.

Lors de cette POI de nombreux moyens instrumentaux au sol et aéroportés ont été déployés. Parmi cela, l'avion ATR 42 d'EUFAR (EUropean Facility for Airborne Research) a eu pour mission de mesurer les propriétés physico-chimiques des aérosols au-dessus des Pays-Bas, mais aussi à plus grande distance sur la manche et la mer du nord (Fig. 2.4). En Mai 2008, l'ATR 42 a opéré 22 vols de de mesures dans la basse et la moyenne troposphère (Crumeyrolle et al., 2010). Ces 22 vols ont été classés en six catégories de vol selon la trajectoire suivie par l'avion de recherche. La figure 2.4 illustre les six trajectoires définissant les six catégories de vol effectué lors de ce mois de mai 2008 par l'ATR-42.

Le tableau 2.3 présente la liste des instruments utilisés dans le cadre de ce travail de thèse afin de caractériser les propriétés des aérosols. Par la suite de cette section, il sera proposé une description du principe de fonctionnement de ces instruments, mais aussi une présentation des informations provenant des mesures réalisées à partir de ces derniers.

Instrument	Aéroporté (ATR-42)	Cabauw
CCNC (Cloud Condensation Nuclei Couter)	X	X
Néphélomètre	X	X
UV LIDAR (LIght Detecting And Ranging)	X	X
CPC (Condensation Particle Counter)	X	X
AMS (Aerosol Mass Spectrometer)	X	X

Table 2.3 : Liste des instruments utilisés dans cette étude, et également la localisation de ces instruments lors de la réalisation de la mesure.

2.3.2.1 La veine de prélèvement CAI

Lors de la campagne EUCAARI-IMPACT, l'ATR-42 (Fig. 2.5), un avion bi-turbo propulseurs de l'unité de recherche SAFIRE (Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement) du CNRS/Météo-France, a permis grâce aux instruments embarqués à son bord la caractérisation des propriétés des particules d'aérosols. Cependant ces instruments de mesures ne peuvent mécaniquement pas tous être installés à l'extérieur. C'est pourquoi l'air extérieur est prélevé et guidé dans la cabine par une veine de prélèvement qui

modifie le moins possible, l'air échantillonné. Le développement de la veine de prélèvement communautaire CAI (Com Aerosol Inlet) résulte d'un travail d'étude en coopération entre les scientifiques du CNRM/GAME, du GMEI/MNPCA (Groupe de Météorologie Expérimentale et Instrumentale/Microphysique des Nuages et Physico-chimie de l'Atmosphère), les ingénieurs de SAFIRE et de la société toulousaine Comat qui l'a réalisée.

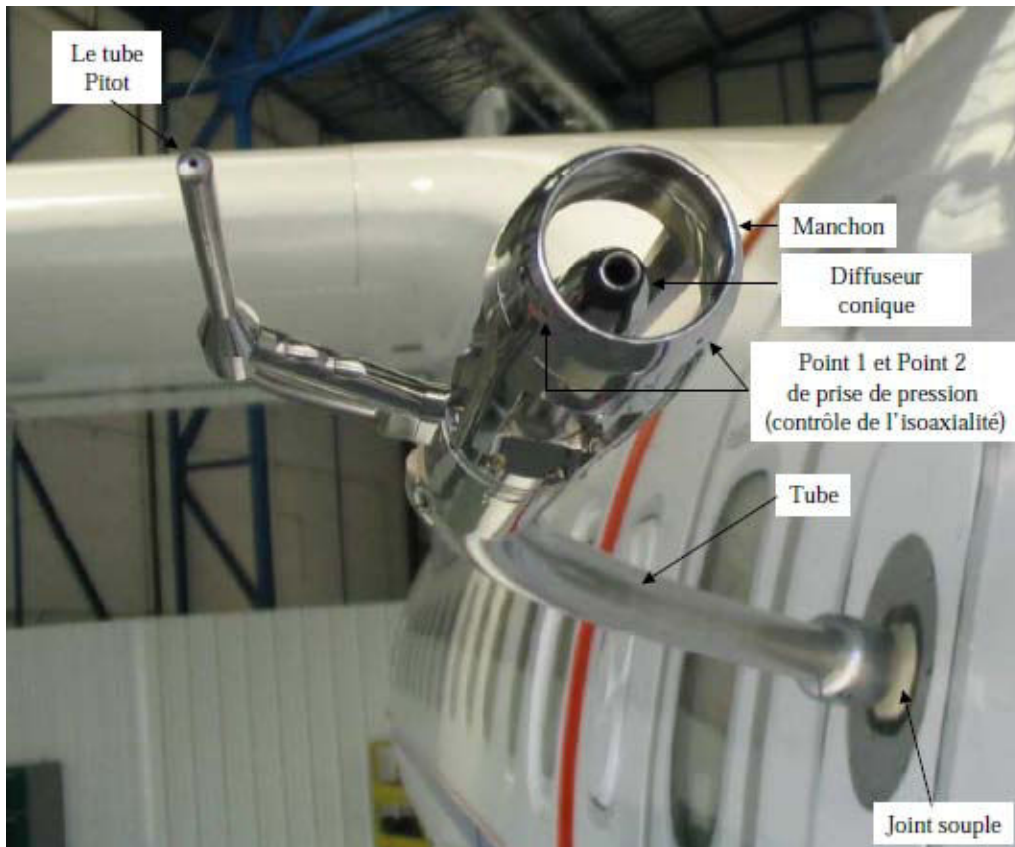


Figure 2.5 : Photo de l'ATR-42 lors d'un vol de recherche lors de la campagne EUCAARI-IMPACT de mai 2008. Les rectangles indiquent la localisation des différents capteurs installés à l'extérieur de l'avion. (Source : <http://www.pa.op.dlr>).

La veine de prélèvement de l'ATR-42 réalise des prélèvements qualifiés d'isocinétiques, c'est-à-dire que la vitesse de l'air prélevé par la veine est la même que la vitesse de l'air ambiant non perturbé. De plus, dans la veine de prélèvement et dans les conduits menant aux instruments, les pertes de particules d'aérosols sur les parois sont possibles. Afin de minimiser les pertes, les rayons de courbure de la veine et de toutes les connexions avant les instruments sont réduits et l'intérieur des conduits sont lisses pour limiter la turbulence. De récentes études ont montré que l'efficacité de d'échantillonnage des particules d'aérosols dont le diamètre est supérieur à $5 \mu\text{m}$ est de 50% (Crumeyrolle et al., 2010 ; Matsuki et al., 2010 ; McNaughton et al., 2007).

La figure 2.6 montre une photographie de la veine de prélèvement CAI (Com Aerosol Inlet) à l'extérieur et à l'intérieur de l'ATR-42. A l'intérieur de la cabine, la veine est équipée de deux vérins de pression qui vont assurer sa mobilité (Fig. 2.6b), mais aussi des prises électriques permettant d'alimenter

a)



b)

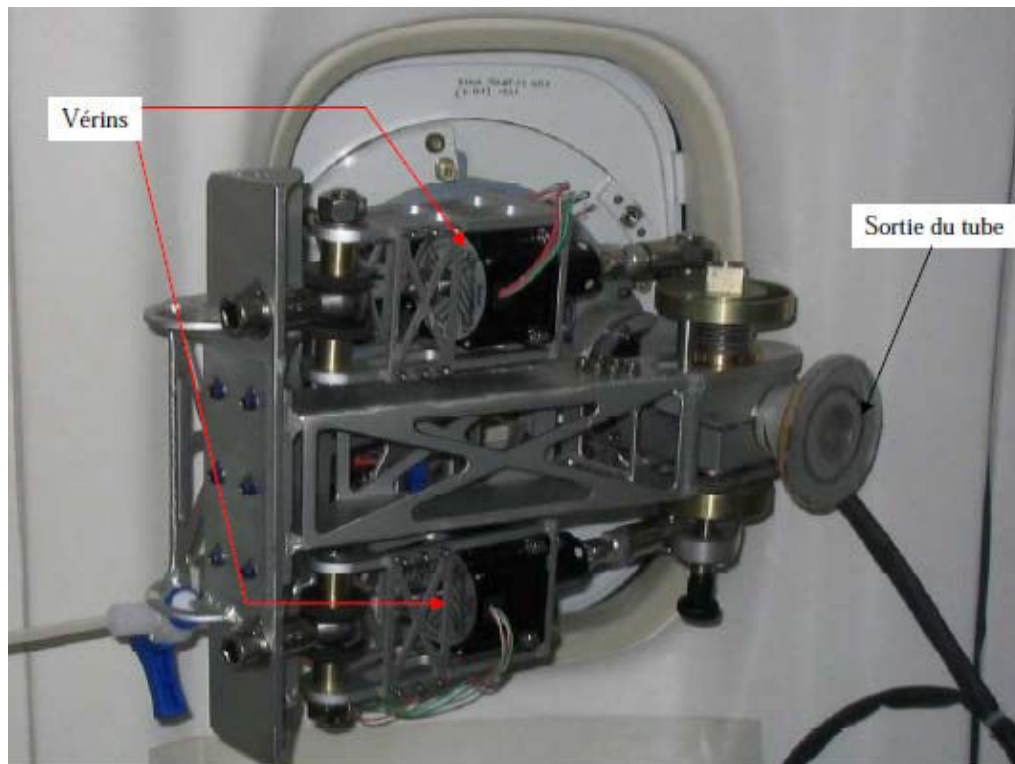


Figure 2.6 : Photo de la veine de prélèvement à (a) l'extérieur et à (b) l'intérieur de l'ATR-42 (D'après Crumeyrolle, 2008).

le réchauffage antigivrage et des terminaisons du réseau de mesure de pression. A une vitesse de 100 m.s^{-1} , le débit total d'air échantillonné à répartir entre les instruments est de 96 L.min^{-1} (Crumeyrolle, 2008). Le flux d'air échantillonné traverse un certain nombre de diviseurs, afin de définir une série de voies de débit différent (mais de même vitesse) pour l'acheminement des flux vers les instruments. Pour une description plus détaillée des caractéristiques de la veine de prélèvement de l'ATR-42, le lecteur pourra se référer aux travaux de Crumeyrolle (2008).

2.3.2.2 Caractérisation des propriétés hygroscopiques

Un CCNC (Cloud Condensation Nuclei Counter) est un instrument qui permet la mesure de la concentration des particules d'aérosols activable en CCN. Il existe plusieurs types de CCNC qui varient dans la façon d'induire la sursaturation et de détecter les particules d'aérosols ayant été activée en gouttelettes. De manière générale, un CCNC est composé d'une zone de sursaturation, et d'un système optique destiné à la détection et à la détermination de la concentration de CCN. Lorsque la sursaturation est atteinte, l'air échantillonné est conduit dans la zone où s'est produite la sursaturation. Les particules d'aérosols dont la sursaturation critique est atteinte sont activées en gouttelettes. Une source lumineuse éclaire la zone de sursaturation et la diffusion de la lumière produite est enregistrée par un photodétecteur. La concentration de CCN est déterminée en utilisant un étalonnage reliant l'intensité de la lumière diffusée au nombre de CCN détectés et à la sursaturation appliquée. La gamme de sursaturation généralement utilisée s'étend de 0.1 à 0.63%. Pour une description plus détaillée le lecteur pourra se référer à Roberts and Nenes, 2005.

2.3.2.3 Caractérisation des propriétés chimiques

Les informations sur la composition chimique des particules d'aérosols utilisées dans cette étude proviennent d'un AMS (Aerosol Mass Spectrometer) de type C-TOF (Drewnick et al., 2005 ; Jayne et al., 2000) . L'AMS est un spectromètre de masse permettant l'analyse de la composition chimique des particules d'aérosols. L'analyse quantitative réalisée par l'AMS porte sur les sulfates, les nitrates, l'ammonium et les POM (Particles Organics Matter). L'AMS se décompose en 3

chambres qui permet de: (1) focaliser les particules, (2) déterminer la distribution granulométrique de la population de particules et (3) analyser la composition chimique des particules (Fig. 2.7).

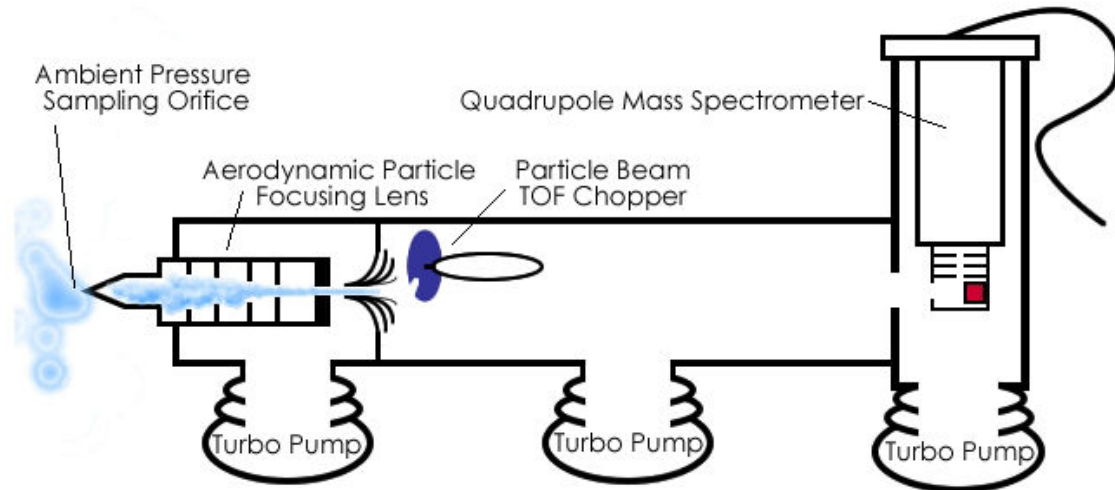


Figure 2.7 : Illustration schématique de la composition d'un Aerosol Mass spectrometer (source : <http://cires.colorado.edu>).

Les particules d'aérosols sont tout d'abord focalisées dans une chambre comprenant des lentilles, de manière à obtenir en sortie un faisceau de particule inférieur à 1 mm de diamètre. A la sortie de cette première chambre, les particules sont accélérées par une détente créée par le gradient de pression régnant dans l'instrument (chaque chambre possède son propre système de pompage). Cette détente procure aux particules des vitesses différentes en fonction de leur taille. La distribution granulométrique est obtenue par mesure de leur temps de vol entre un « chopper » (disque tournant présentant 2 fenêtres en vis-à-vis permettant la transmission de la particule) et l'analyseur (Time of Flight). Les particules sont ensuite impactées sur une surface en tungstène chauffée et subissent simultanément un bombardement électronique. Les ions positifs formés pénètrent dans un spectromètre de masse où ils sont analysés. Une description plus détaillée de l'AMS peut être lue dans Jayne et al (2000). La limite de cet instrument vient qu'il n'est pas capable de détecter des particules non ionisables tels que le carbone suie (BC).

2.3.2.4 Caractérisation des propriétés physiques et optiques

En plus des mesures de télédétection photométrique, la mesure des propriétés dimensionnelles et optiques des aérosols s'appuie également sur trois instruments : CPC (Condensation Particles Counter), néphélomètre, LIDAR (Light Detecting And Ranging).

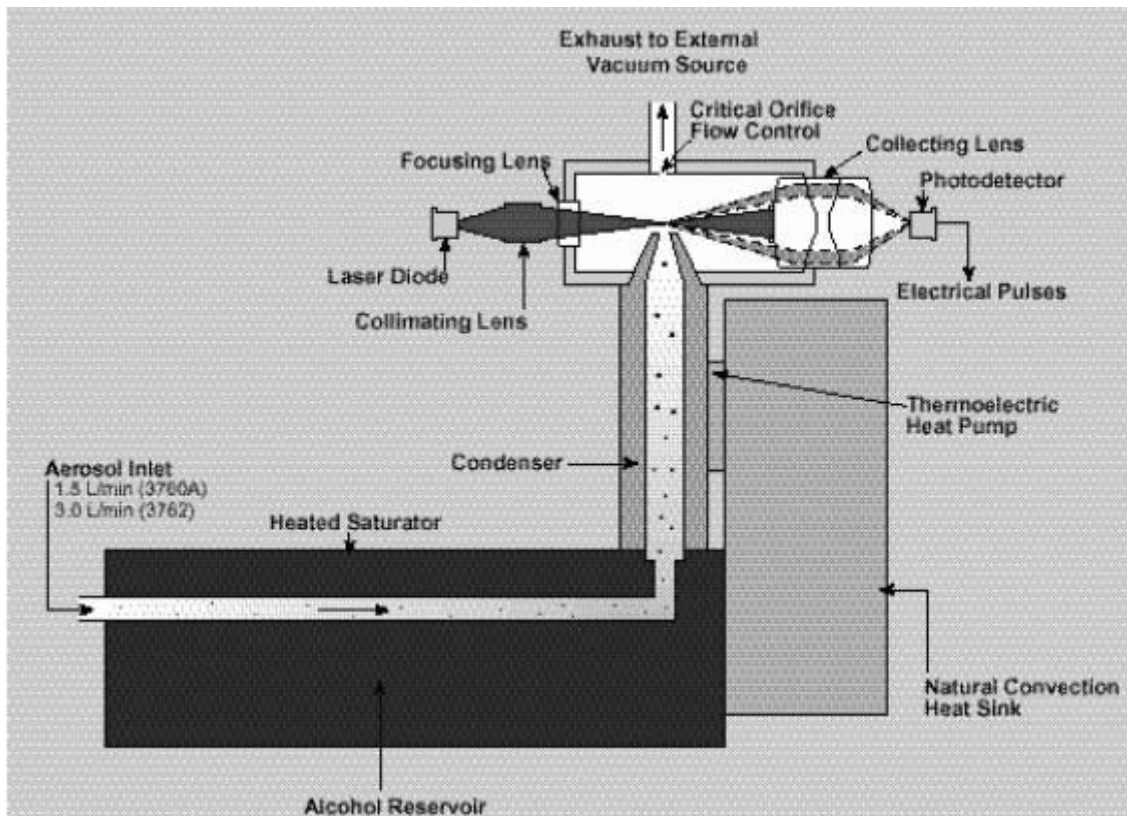


Figure 2.8 : Illustration schématique d'un compteur de noyau de condensation (D'après Roberts and Nenes, 2005).

Un CPC est un compteur de noyaux de condensation qui détecte toutes les particules dont le diamètre est supérieur à son diamètre limite de détection. Le diamètre limite de détection défini à 50% d'efficacité de comptage est de 10 nm pour les deux modèles de CPC (CPC 3010 et 3672, TSI Inc) utilisés lors de cette campagne. Le flux de particules d'aérosols prélevé passe par une chambre chauffée (saturateur) contenant du butanol liquide. Au sein de ce saturateur, l'air chargé de particules se sature en vapeur de butanol avant de se diriger vers un condenseur vertical refroidi où les vapeurs d'alcool condensent sur les particules. Ces dernières sont ensuite détectées optiquement. Les particules éclairées par une

source lumineuse diffusent suivant la théorie de Mie. Une lentille couvrant l'angle de diffusion recherché permet de focaliser la lumière sur un photodétecteur qui transforme cette énergie lumineuse en impulsion électrique, et chaque impulsion correspond à une particule. La figure 2.8 illustre schématiquement les éléments composant un CPC.

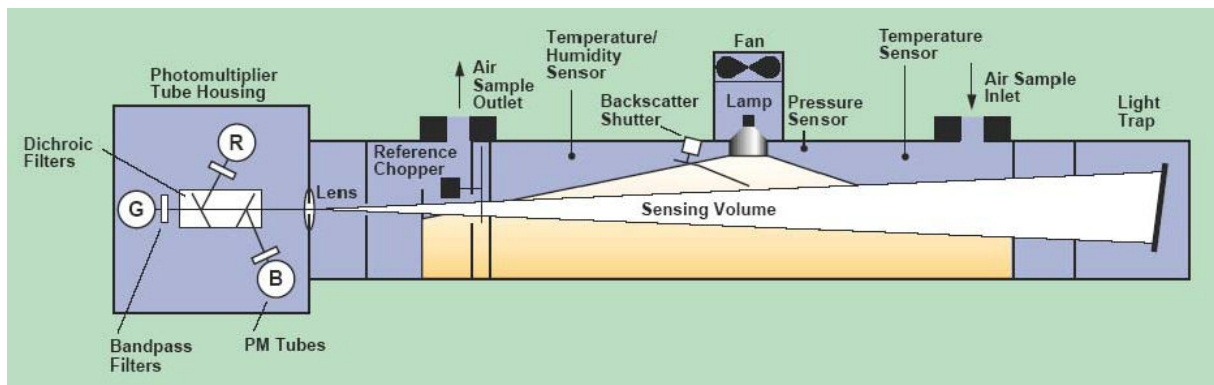


Figure 2.9 : Illustration schématique du néphélomètre (TSI 3563) utilisée dans le cadre cette étude (D'après Verhaege, 2008).

Le principe des néphélomètres repose sur la mesure de la lumière diffusée par une population d'aérosols contenus dans un volume dit échantillonnage (Fig. 2.9). La lumière qui éclaire les particules, provient d'une source connue et incluse dans l'appareil. Les mesures de diffusion utilisées dans ce travail proviennent d'un néphélomètre intégré (TSI 3563). Ce néphélomètre mesure toute la lumière diffusée entre deux angles, et grâce à ses trois filtres, il permet également d'estimer la dépendance spectrale de certains paramètres optiques tels que le coefficient de diffusion. La figure 2.9 illustre schématiquement les différents éléments composant le néphélomètre TSI 3563. Ce néphélomètre est composé d'un volume d'échantillonnage éclairé par une lampe halogène. Les aérosols présents dans ce volume d'échantillonnage diffusent la lumière incidente. Cette lumière diffusée est ensuite dirigée vers une chambre composée de trois photomultiplicateurs. Ces trois photomultiplicateurs sont chacun pourvus d'un filtre afin de mesurer cette lumière diffusée suivant trois longueurs d'onde (450 nm, 550nm, 700 nm). Cet appareil intègre la lumière diffusée entre 7° et 170°. Afin de réduire les erreurs liées à l'intégration de la lumière diffusée dans ce domaine angulaire, les mesures de diffusion sont calibrées suivant la méthode proposée par Anderson and Orgen (1998). Une description détaillée de la

méthode de calibration et des performances de ce néphélomètre peut être lue dans Anderson et al (1998) et Anderson and Orgen (1998).

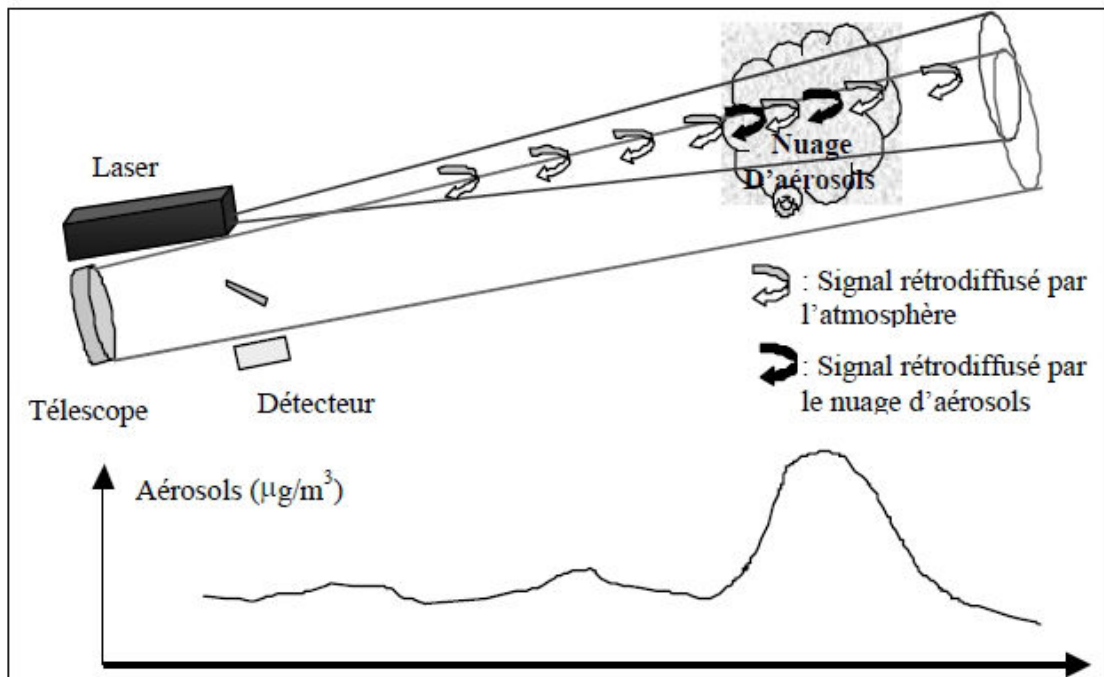


Figure 2.10 : Illustration schématique du principe de fonctionnement d'un lidar à rétrodiffusion. (D'après Mondelain, 1992).

Les données LIDAR utilisées dans cette thèse proviennent d'un LIDAR à rétrodiffusion MIE (LEOSPHERE ALS 450) fonctionnant dans le domaine de l'UV (353 nm). Ce LIDAR est opérationnel au CESAR (Cabauw Experimental Site for Atmospheric Research) depuis 2007, et les mesures sont réalisées avec une résolution de 15 mètres.

Le LIDAR est un système qui envoie un faisceau laser impulsionnel dans l'atmosphère. Le laser est ainsi à la fois diffusé et absorbé par les constituants atmosphériques (molécules et aérosols). La fraction de la lumière rétrodiffusée est collectée à l'aide d'un télescope et le signal est détecté à l'aide d'un photomultiplicateur et numérisé pour pouvoir être exploité (Fig. 2.10)

Le signal reçu $S(Z)$ à la longueur d'onde λ et à la distance Z à un instant donné est caractéristique du coefficient de rétrodiffusion moléculaire β_{λ}^m et particulaire β_{λ}^p à la distance correspondante, ainsi que du coefficient d'extinction

moléculaire α^m_λ et particulaire α^p_λ , sur le chemin de la lumière à l'aller comme au retour. L'expression du signal reçu est donnée par l'équation lidar (Eq. 2.1).

Où C_λ est la constante de calibration, F le facteur géométrique de recouvrement, Z_0 l'altitude du lidar, θ l'angle de visé et FC le signal de fond de ciel. Le fond de ciel représente la contribution du rayonnement solaire direct réceptionnée par le détecteur du lidar.

Afin d'extraire de cette équation tous les paramètres utiles à la caractérisation des aérosols, il faut corriger le signal LIDAR du fond de ciel. Pour déterminer le fond de ciel, l'atmosphère est sondée en n'émettant aucun signal afin de quantifier la quantité d'énergie solaire reçue par le LIDAR (méthode « pre-trigger »). Après avoir déterminé le fond de ciel, il suffit de le retrancher du signal brut. Afin de restituer les paramètres optiques des aérosols directement à partir des mesures lidar, il est nécessaire d'inverser le signal reçu. Plusieurs méthodes d'inversion du signal existent, mais la plus communément utilisée est celle établie par Fernald et al (1972, 1984) et Klett (1981, 1985).

2.4 Les observations spatiales

Depuis le début des années 2002, une constellation de satellites franco-américains s'est développée : l'A-Train (Afternoon Train). Cette constellation de six satellites, AQUA (2002), AURA (2004), PARASOL (2004), CALIPSO (2006), CLOUDSAT (2006), OCO (2009) présentée sur la figure 2.11, constitue le premier observatoire franco-américain en orbite dédié à l'observation des nuages, des aérosols et du cycle de l'eau (Stephens et al., 2002). Ce projet spatial est destiné à mettre en œuvre quasi simultanément toutes les techniques d'observations actuellement disponibles pour scruter l'atmosphère terrestre.

Dans le cadre de cette thèse seuls les instruments CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) et OMI (Ozone Monitoring Instrument) ont été utilisés.



Figure 2.11 : Les six satellites (AURA, PARASOL, CALIPSO, CLOUDSAT, AQUA, OCO) de la constellation A-TRAIN en orbite (autour de 700 km d'altitude) autour de la Terre. (source : svs.gsfc.nasa.gov/Gallery.A-Train).

2.4.1 OMI

OMI est un instrument effectuant des mesures du rayonnement réfléchi par la Terre et l'atmosphère dans l'UV et le visible (Levelt et al., 2000). Cet instrument est le fruit d'une collaboration entre l'équipe du NIVR (Netherlands Agency for Aerospace Programmes) et celle du FMI (Finnish Meteorological Institute). OMI a été lancé en juillet 2004 à bord de la plateforme AURA.

OMI comprend deux spectromètres. Le premier effectue des mesures dans le domaine de l'UV de 270 à 365 nm avec une résolution de 0.45 nm. Le deuxième effectue des mesures dans le domaine du visible de 365 à 500 nm avec une résolution de 0.63 nm. L'objectif de OMI est de poursuivre la mesure de la quantité totale d'ozone initiées avec les instruments de TOMS (Mc Peters et al., 1998). OMI fournit également des mesures de l'éclairement UV à la surface pour quatre longueurs d'onde (305, 310, 324 et 380 nm), mais aussi des mesures de l'UV érythémateux. Les mesures de OMI permettent également de retrouver les propriétés optiques des aérosols telles que l'épaisseur optique d'extinction mais

aussi le développement d'indice du contenu atmosphérique en aérosol, comme l'Aerosol Index (AI) (Torres et al., 1998).

L'indice AI a été initialement développé à partir des observations de TOMS (Herman et al., 1997 ; Torres et al., 1998). C'est un paramètre qui fournit une indication sur la présence de particules absorbant dans le domaine de l'UV. L'indice AI résultant des observations de OMI dans le domaine de l'UV est établi pour 354 et 388 nm. Cet indice peut être défini simplement de la manière suivante (Torres et al., 2002b, 2007) :

—

Avec I_{354}^{mes} la luminance mesurée à 354 nm et I_{354}^{calc} la luminance calculée à 354 nm pour une atmosphère purement moléculaire.

L'indice AI est ainsi une mesure de l'écart entre le contraste spectrale observé par OMI et celui calculé pour une atmosphère purement moléculaire. Les valeurs positives de cet indice correspondent aux aérosols absorbant dans le domaine de l'UV (comme les aérosols désertiques, les aérosols carbonés). A contrario, les valeurs négatives correspondent aux aérosols n'absorbant pas dans le domaine de l'UV (comme les sulfates, les aérosols marins). La valeur de cet indice est nulle, lors de la présence de nuage et de l'absence d'aérosols. La figure 2.12 illustre une utilisation des AI lors du suivi de la trajectoire du panache de dioxyde de soufre résultant de l'épisode éruptif du volcan islandais Eyjafjallajökull en mai 2010.

De nombreuses études utilisant les indices AI ont permis la détermination des zones sources d'aérosols désertiques (Alpert et al., 2000 ; Barkan et al., 2005 ; Bobely-Kiss et al., 2004 ; Chiappello and Moulin, 2002 ; Engelstaedter et Washington, 2006 ; Israelevich et al., 2002 ; Prospero et al., 2002). Cet indice présente l'avantage de fournir des données journalières et d'avoir une bonne couverture spatiale. On utilisera les observations OMI au chapitre 3 dans le cadre de notre analyse qualitative de l'épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains vers l'Europe de Nord.

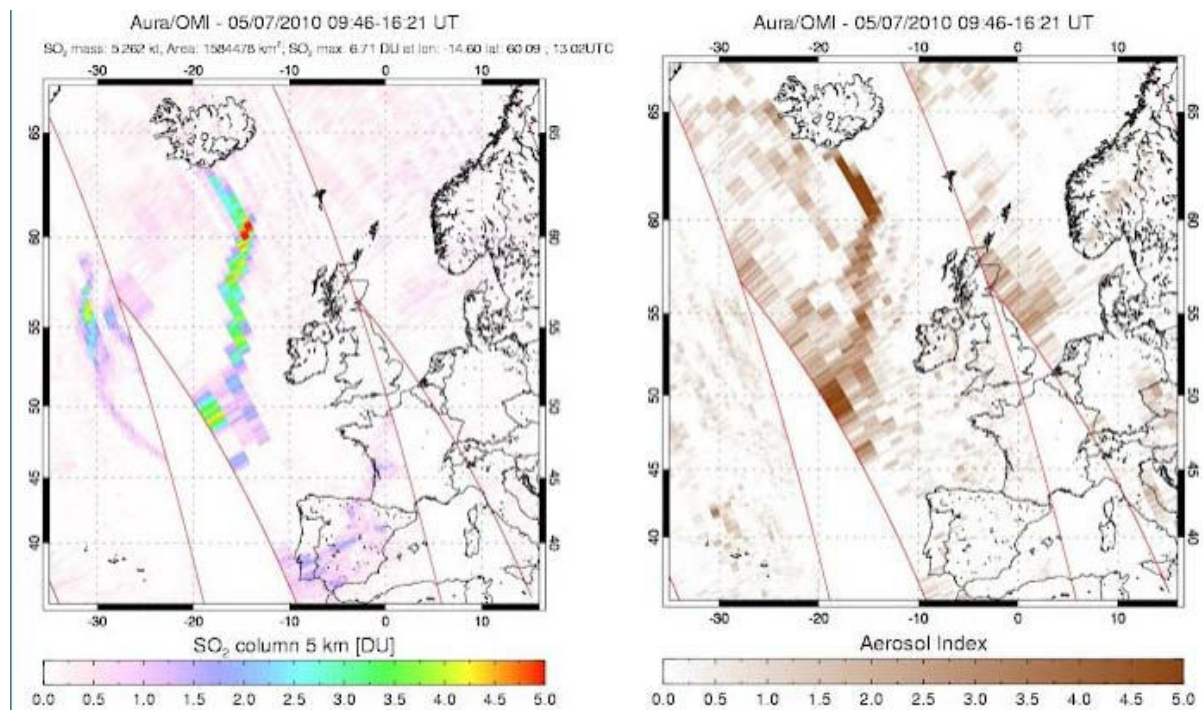


Figure 2.12 : Mesure de la colonne totale de dioxyde de soufre lors de l'éruption du volcan Islandais Eyjafjallajokull par OMI le 5 mai 2010 à 1621 UT (à gauche), et les valeurs de AI estimées par OMI pour la même période d'observation (à droite) (source : IAVCEI RSC Web).

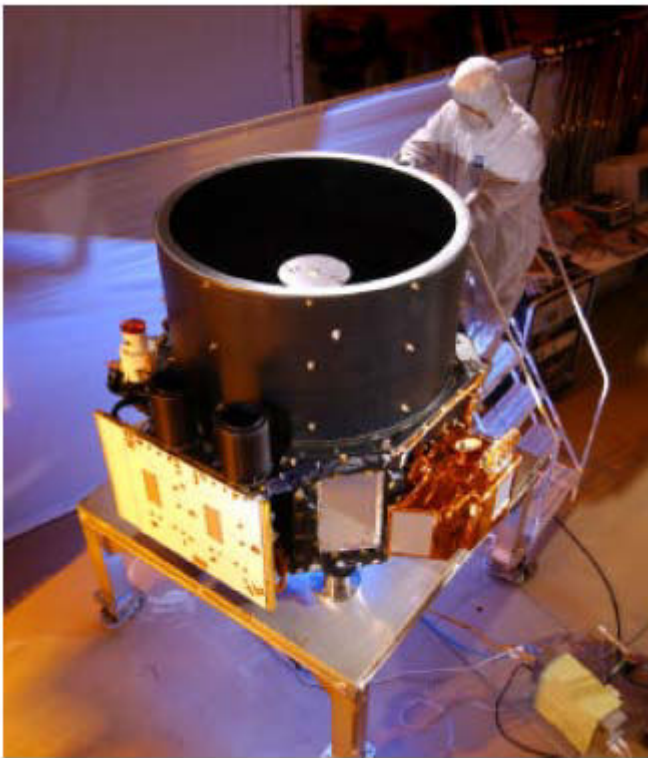
2.4.1 CALIOP

CALIOP est un lidar à rétrodiffusion destiné à la détection des particules d'aérosols et des nuages fins, tels que les cirrus (Fig.2.13a). CALIOP a été mis en orbite en avril 2006 à bord de CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Path finder Satellite Observation, Winker et al., 2003, 2007). La mission CALIPSO repose sur une coopération entre la NASA et le CNES (Centre National d'Etude Spatiale).

CALIOP fournit des profils verticaux de l'atmosphère à partir des deux composantes qui résultent de la dépolarisation d'un signal laser à 532 nm rétrodiffusé, et également des profils verticaux d'un signal laser total à 1064 nm rétrodiffusé au nadir (Fig.2.13b). L'association des clichés pris au cours d'une orbite, restitue une « tranche » de l'atmosphère. La résolution verticale et horizontale varie avec l'altitude. Ainsi entre 0.5 et 8.2 km, les résolutions verticales et horizontales sont respectivement égales à 30 m et 1/3 km. Elles

passent respectivement à 60 m et 1 km, entre 8.2 km et 20.2 km. Les plus fines résolutions sont ainsi employées dans les basses couches de l'atmosphère là où généralement les aérosols et les nuages sont présents, et ont une plus large variabilité spatiale.

a)



b)

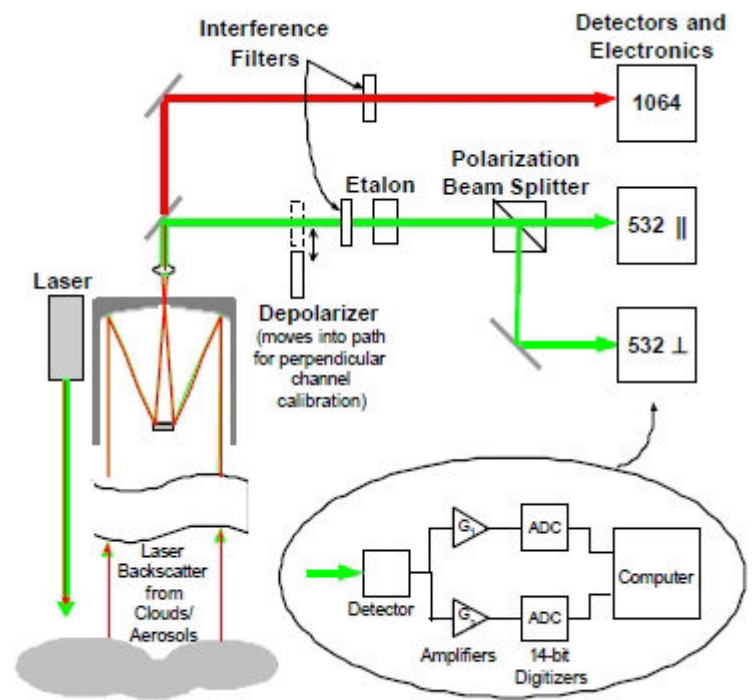


Figure 2.13 : a) Photo de CALIOP lors d'un test réalisé dans les laboratoires de la NASA, et (b) illustration schématique du principe de fonctionnement de CALIOP. (source : Winker et al,2007).

2.5 La modélisation numérique

Les études numériques ont été réalisées avec le modèle numérique Méso-NH. Cette section se propose de présenter le modèle numérique Méso-NH, mais aussi de décrire les paramétrisations physiques qui ont été utiles pour notre étude.

2.5.1 Description du modèle atmosphérique Méso-NH

Le modèle numérique Méso-NH est un modèle de recherche atmosphérique qui a été développé conjointement par le laboratoire d'Aérodynamique (LA) et Météo-France (CNRM, Centre National de Recherche Météorologique) (Lafore et al., 1998). Ce modèle atmosphérique communautaire, labellisé par l'INSU, est capable de simuler les processus dynamiques et physiques de l'atmosphère depuis l'échelle méso-alpha (l'échelle de front) jusqu'à la micro-échelle (l'échelle de la turbulence). Le modèle utilise un système d'équation basé sur l'approximation anélastique. Cette approximation a pour but de filtrer les ondes acoustiques qui posent des problèmes numériques du fait de leur propagation rapide. On utilise pour cela un profil de densité constant dans les équations de continuité et de conservation de la quantité de mouvement, sauf pour le terme de flottabilité. Les différentes variables sont décomposées en une somme d'état de référence et d'une perturbation par rapport à cet état. L'état de référence est défini comme étant une atmosphère au repos, en équilibre hydrostatique. Les perturbations sont déterminées par la résolution du système d'équations du modèle. Numériquement, ce système d'équation est résolu par discrétisation de manière indépendante dans les trois directions du système de coordonnées.

La discrétisation spatiale est effectuée aussi bien horizontalement que verticalement sur une grille de type « Mesinger and Arakawa » (1976). La discrétisation temporelle est basée sur le schéma du « leap-frog ». Les variables pronostiques sont les composantes du vent (U, V, W), la température potentielle, le rapport de mélange des différentes classes d'eau utilisées et l'énergie cinétique turbulente. Ces variables explicites constituent les solutions des équations de la physique et sont calculées à chaque pas de temps du modèle. Elles doivent aussi être initialisées au début de la simulation.

Plusieurs paramétrisations ont été introduites, notamment pour la convection (Bechtold et al., 2001), la microphysique nuageuse (Pinty and Jabouille, 1998 ; Cohard and Pinty, 200b), la turbulence (Bourgeault et al., 1989), l'électricité atmosphérique (Barthe et al., 2005), la chimie gazeuse (Suhre et al., 1998 ; Tulet et al., 2003), la chimie des aérosols (Tulet et al., 2005, 2008), les aérosols désertiques (Grini et al., 2005). De plus, il est possible avec Méso-NH d'utiliser

des configurations de domaines imbriqués (grid-nesting, Clark and Forley, 1989). Pour cela, une technique d'interaction bidimensionnelle (Two-way grid-nesting, Stein et al., 2000) a été implantée dans le modèle.

De plus, son utilisation en mode recherche repose sur la possibilité de diagnostics spécifiques aux problèmes étudiés, tels que les bilans des variables pronostiques, les comparaisons aux données expérimentales comme les vols avions, les restitutions lidar et les images satellites.

2.5.2 Le schéma de surface SurfEX

Le schéma de surface SurfEX est un modèle de surface externalisé, couplé au modèle atmosphérique Méso-NH. Le modèle de surface permet la simulation des bilans d'eau et d'énergie à la surface du sol et également dans les parties du sol en interaction avec l'atmosphère. Il simule également d'autres flux et variables comme par exemple les flux chimiques gazeux et aérosols ou de dioxyde de carbone (CO₂) issus de la végétation. Au sein du schéma SurfEX, la surface est décomposée en quatre types de surface correspondant à des schémas spécifiques : ISBA (pour la végétation et les sols naturels, Noilhan et Planton, 1989), TEB (pour la ville, Masson, 2000), SEA_FLUX (pour les surfaces océaniques ; Mondon and Redelsperger, 1998), FLAKES (pour les lacs ; Salgado and Lemoigne, 2010).

Au sein de SurfEX, la maille est décomposée en quatre fractions de différents types de surface. La fraction associée à chacune de ces surfaces est connue à partir de la base de données ECOCLIMAP (Masson et al., 2003), construite à partir de carte de couverts surfaciques ainsi que d'informations satellitaires.

La figure 2.14 illustre schématiquement le principe des quatre modules de surface calculant chacun pour la fraction f de la maille qui caractérise l'ensemble des variables nécessaires, et renvoyant la variable de flux équivalente F à l'ensemble de la maille. A chaque pas de temps, chacun des quatre modules indépendants de la surface reçoit des forçages atmosphériques calculés par Méso-NH, tels que la température de l'air située au-dessus de la surface, l'humidité spécifique, les composantes du vent ou encore les concentrations en espèces

chimiques gazeuses et en aérosol. SurfEX calcule en retour les différents flux thermodynamiques, chimiques et aérosols comme flux de surface au modèle atmosphérique.

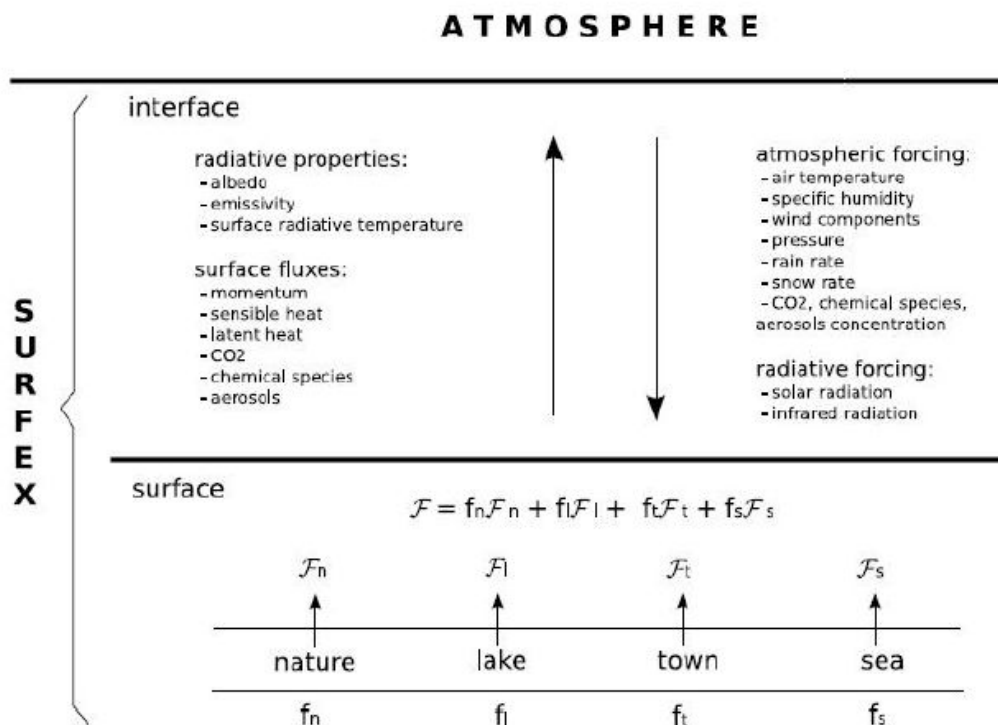


Figure 2.14 : Description des échanges entre le modèle atmosphérique Méso-NH et SurfEX (source :<http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/>)

Ainsi la paramétrisation des interactions sol-atmosphère-biosphère se fait dans le schéma ISBA. ISBA calcule l'évolution temporelle d'une dizaine de variables pronostiques (Table 2.4) représentatives de la température du sol, de l'eau stockée sur la canopée et des propriétés du manteau neigeux. Ces variables combinées aux données des caractéristiques du sol et de la végétation permettent de calculer les flux turbulents de quantité de mouvement et de chaleur (sensible et latente) dégagés par le système sol-végétation suite au flux radiatif net absorbé.

Pour une description plus détaillée du modèle SurfEX, le lecteur pourra se référer à la documentation scientifique de SurfEX, disponible sur le site internet de Méso-NH (http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/dir_doc).

Symboles	Variables pronostiques
T_s	Température du sol en surface
T_2	Température moyenne de la couche racinaire sur un jour
$\Omega_i (i=1,2)$	Contenu volumique en eau de chaque couche
$\Omega_{ice} (i=1,2)$	Contenu volumique équivalent en eau gelée de chaque couche
W_r	Contenu en eau du réservoir d'interception (canopée)
W_n	Contenu équivalent en eau du manteau neigeux
α_n	Albédo de la neige
n	Masse volumique de la neige

Table 2.4 : Liste des variables pronostiques utilisées dans ISBA, et ainsi que leur symbole.

2.5.3 Le schéma de convection profonde

Le schéma de convection profonde implanté dans Més0-NH est celui de Bechtold et al (2001). Ce schéma permet de représenter la convection nuageuse à des échelles inférieures à la taille de la maille à l'aide d'un schéma 1D de convection profonde basé sur le schéma de Kain and Fritsch (1993). Le déclenchement de la convection est basé sur un critère d'instabilité locale. En effet, elle consiste à tester la flottabilité humide d'une particule d'air pour chaque colonne du modèle. La convection est déclenchée dans la colonne du modèle si la condition d'instabilité est satisfaisante en dessous de 3 km et si la particule reste instable sur au moins 3 km. Dans chaque maille instable d'un point de vue convectif, un seul type de nuage se développe. Le nuage supposé précipitant est représenté par un courant ascendant et un courant subsident. Le taux de précipitation associé à ce nuage précipitant est déterminé par le flux de masse à la base de celui-ci. La fermeture est basée sur une considération énergétique locale qui tient compte de l'énergie potentielle disponible (CAPE). Les tendances convectives de température et d'humidité maintenues constantes pendant ce temps, sont ajustées de manière à dissiper 90% du CAPE. Ce schéma de convection est activé

seulement pour les grilles qui ne peuvent pas représenter explicitement la convection profonde. De manière générale, ce schéma de convection est activé systématiquement pour des domaines ayant des résolutions horizontales supérieures à 5 km.

2.5.4 Le schéma microphysique

Dans le cadre de cette étude, le schéma microphysique utilisé traite les nuages et les précipitations à l'échelle de la maille suivant les principes généraux de la méthode de Kessler (1969) avec l'eau sous forme de vapeur, nuage et pluie. Le schéma de Kessler est un schéma à 1 moment qui estime la concentration des gouttelettes nucléées à partir d'un mode homogène de CCN. Afin de prendre en compte les processus microphysiques associés aux particules glacés (glace primaire, neige, neige roulée), qui sont essentiels pour reproduire un système convectif intense, le schéma microphysique ICE3 a été associé à celui de Kessler. Le schéma ICE3 est un schéma à 1 moment qui permet de prendre en compte la phase glace et celui-ci est basé sur le schéma de Caniaux et al (1994). Une description détaillée de la paramétrisation du schéma ICE3 du schéma ICE3 peut être lue dans Pinty and Jabouille (1998).

2.5.5 Le schéma de chimie gazeuse

Le schéma de chimie atmosphérique Méso-NH (Tulet et al., 2003) est une extension du modèle Méso-NH permettant de prendre en compte la réactivité d'un certain nombre d'espèces chimiques gazeuses. A chaque pas de temps du modèle Méso-NH, et pour chaque point de grille, un ensemble d'équation différentielles sont résolues afin de décrire la transformation cinétique ou la dissociation des composés chimiques. Les taux de photolyse sont calculés à partir du schéma de transfert radiatif troposphérique TUV en version 3.9 développé par Madronich and Weller (1990).

Le schéma réactionnel utilisé dans notre étude est ReLACS 2 (Tulet et al., 2006) et traite un ensemble de 82 espèces chimiques gazeuses comme variable pronostique. ReLACS2, basé sur la réduction du schéma CACM (Griffin et al., 2002, 2005), est utilisé pour permettre la formation d'espèces gazeuses semi-

volatiles dont les précurseurs gazeux des aérosols secondaires organiques. Associé au schéma réactionnel il est important de disposer d'un cadastre d'émission des principaux gaz et aérosols réactifs. Le tableau 2.5 résume l'ensemble des espèces primaires gazeuses émis intervenant dans le schéma ReLACS 2.

Formulation	Description
Précurseurs inorganiques	
NO	Monoxyde d'azote
NO ₂	Dioxyde d'azote
SO ₂	Dioxyde de soufre
NH ₃	Ammoniac
Précurseurs organiques	
ALKL	Alcanes à courte chaîne carbonée (≤ 6 carbones)
ALKM	Alcanes à moyenne chaîne carbonée (C(7-11))
ALKH	Alcanes à grande chaîne carbonée (> 12 carbones)
ETHE	Ethylène
OLEL	Alcènes à courte chaîne carbonée (6 carbones)
AROH, AROL, AROO	Espèces aromatiques
ARAL, ARAC, HAP	Espèces aromatiques monoaldéhydes
ALD2	Aldéhydes
HCHO	Formaldéhyde
MEOH	Méthanol
ETOH	Ethanol
MGLY	Methylglyoxal
ISOP	Isoprène
BIOL, BIOH	Monoterpènes

Table 2.5 : Espèces et groupes d'espèces gazeuses émises nécessaires pour la condensation où la nucléation dans le schéma réactionnel ReLACS 2.

2.5.6 Le schéma aérosols

Le schéma d'aérosol développé dans MesoNH est le schéma ORILAM. Dans sa version standard ORILAM (ORganic Inorganic Lognormal Aerosol Model) intègre 16 composés d'aérosol considérés en mélange interne et répartis sur deux modes log-normaux (BC, OC_p, SO₄, NO₃, NH₃, H₂O, et une dizaine de type d'Aérosols Organiques Secondaires « SOA »).

S'ajoute à ces composés six modes lognormaux additionnels en mélange externe pour traiter les aérosols naturels (sels marins et aérosols désertiques). Pour faciliter l'utilisation des aérosols désertiques, considérés généralement comme

peu connectés aux aérosols de pollution, le choix a été fait de les découpler du module chimique, plus lourd d'utilisation et plus coûteux numériquement.

Néanmoins, pour les besoins de ce travail de thèse, le calcul de la masse d'aérosols désertiques dans les modes fins et d'accumulation a été ajouté aux aérosols de pollution. L'évolution principale du schéma a été de considérer deux sources possibles d'aérosols primaires. Les sources de pollution d'origine anthropique (BC et OC) et les sources minérales (aérosols désertiques). Cette évolution permet d'étudier le vieillissement des aérosols désertiques en contact avec les masses d'air polluées. Ce couplage sera donc utilisé pour simuler l'évolution des propriétés physico-chimiques des aérosols de l'outflow africain.

Le cycle de vie des aérosols comprend trois étapes essentielles : l'émission, le transport et le dépôt, modéliser ce cycle revient ainsi à représenter numériquement chacune de ces étapes.

2.5.6.1 L'émission

Le processus d'émission des aérosols désertiques est réalisé grâce au modèle Dust Entrainment And Deposition (DEAD, Zender et al., 2003). DEAD est un modèle d'entraînement et de déposition d'aérosols désertiques couplé au modèle Méso-NH (Grini et al., 2005). Les bases physiques du modèle DEAD sont issues de Marticoréna et Bergametti (1995), dans lequel le flux d'aérosols désertiques est calculé en fonction des processus de saltation et de sandblasting (Cf. Chap.2). A chaque pas de temps, Méso-NH fournit à DEAD les données d'entrée nécessaires pour le calcul du flux de masse d'aérosols désertiques émis. Plus précisément, ces données d'entrée sont : le vent à 10 m au-dessus du sol, l'humidité des sols et le contenu en eau des sols évalués par le module ISBA décrit précédemment. En retour, DEAD fournit à Méso-NH, le flux d'aérosols désertiques calculé (Voir annexe A pour plus de détails sur la paramétrisation de l'émission des aérosols désertiques). En ce qui concerne les autres types d'aérosols, la paramétrisation de l'émission est relativement plus simple, car le flux d'aérosol est issu d'un cadastre d'émission construit à partir des observations de terrain.

2.5.6.2 Le transport

Une fois soulevés et injectés dans Mésos-NH, les aérosols désertiques et les autres aérosols sont transportés par le biais du schéma ORILAM. Ce schéma développé par Tulet et al (2005) et étendu par Tulet et al (2006) aux aérosols organiques secondaires (SOA) est couplé à Mésos-NH, et est basé sur l'ensemble des lois physiques généralement utilisées pour décrire les aérosols.

Le schéma ORILAM est basé sur une approche modale, et chaque mode est ainsi représenté par une fonction lognormale (Cf. Chap.1). ORILAM simule ainsi l'évolution dans le temps et dans l'espace de la distribution lognormale des aérosols dans l'atmosphère. Pour chaque mode, les moments d'ordre 0, 3, 6 sont intégrés comme variables pronostiques. La combinaison de ces moments permet le calcul de la concentration en nombre, du rayon médian, et de la déviation standard de la distribution en taille des aérosols.

Les processus dynamiques des aérosols tels que la coagulation inter et intra-modale et la nucléation sont pris en compte par ORILAM (Tulet et al., 2005). De plus, ORILAM gère les équilibres thermodynamiques gaz-particules pour les espèces semi-volatiles. Pour les espèces inorganiques, l'équilibre thermodynamique est traité par le schéma EQSAM (Equilibrium Simplified Aerosol Module) décrit par Metzger et al (2002). L'équilibre thermodynamique gaz-particules pour les espèces organiques se fait via le schéma MPMPO (Model to Predict the Multiphase Partitioning of Organics, Griffin et al., 2002) couplée au schéma réactionnel RELACS2. L'originalité de ce schéma est qu'il traite simultanément les équilibres entre les gaz et les phases organiques et aqueuses de l'aérosol en tenant compte des interactions entre SOA définies par les affinités moléculaires (schéma UNIFAC) et de l'acidité de l'aérosol. Au total, ReLACS2 et MPMPO permet le calcul d'une dizaine de type de SOA d'origine anthropiques ou naturels et sous forme dissocié et non-dissocié.

2.5.6.3 Le dépôt

Les processus de perte des aérosols atmosphériques se fait soit par le dépôt sec, soit par le dépôt humide (lessivage). Ces deux processus de dépôt sont également pris en compte dans ORILAM. Le dépôt sec (D_s , Eq. 2.3) se fait selon le principe de la diffusion brownien et dépend également de la vitesse de gravitationnelle des particules (V_g , Eq.2.3). La paramétrisation du processus de dépôt sec est détaillée dans Tulet et al (2005).

$$\frac{dN}{dt} = -k \frac{N}{V} - \frac{4}{3} \pi r_p^2 \rho_p \frac{V_g}{C_c} N$$

Où k est la constante de Boltzman, T la température ambiante, V la vitesse cinétique de l'air, ρ_p la densité de l'aérosol, r_p le rayon de l'aérosol, g l'accélération de pesanteur et C_c le coefficient de glissement.

L'ensemble des mécanismes d'incorporation des aérosols par les précipitations est regroupé sous l'appellation de dépôt humide. Lorsqu'une goutte de pluie précipite, elle peut entrer en collision avec des particules d'aérosols et ainsi les collecter. Cependant lorsque la goutte précipite, elle perturbe les lignes de courant autour d'elle, et modifie la trajectoire de l'aérosol se trouvant à proximité. La collection dépend ainsi de la taille de la goutte de pluie, de celle de la particule et également de leurs positions respectives. De plus, les mouvements Browniens et l'inertie des particules sont à prendre en compte pour connaître la quantité de particules d'aérosols collectées.

Le déplacement aléatoire des particules d'aérosols dû aux mouvements Browniens entraîne certaines d'entre elles en contact avec la goutte de pluie, ce qui va contribuer au processus de collection. Seules les particules dont le rayon est inférieur à $0.005 \mu\text{m}$ sont sensibles à ce mécanisme de dépôt. Lorsque la particule d'aérosol n'est pas capable de suivre les lignes de courant (ligne de courant formée dans le sillage de la goutte de pluie), en raison de son inertie trop importante, sa trajectoire n'est pas déviée et elle est collectée par la goutte de

pluie. La collection par inertie est efficace pour les aérosols dont le rayon est supérieur à $1 \mu\text{m}$. Pour les aérosols dont le rayon est compris entre 0.005 et $1 \mu\text{m}$, ils ne sont « interceptés » par la goutte que si la ligne de courant suivie par le centre de la particule d'aérosol passe à une distance de la goutte inférieure au rayon de la particule d'aérosol (Fig. 2.15).

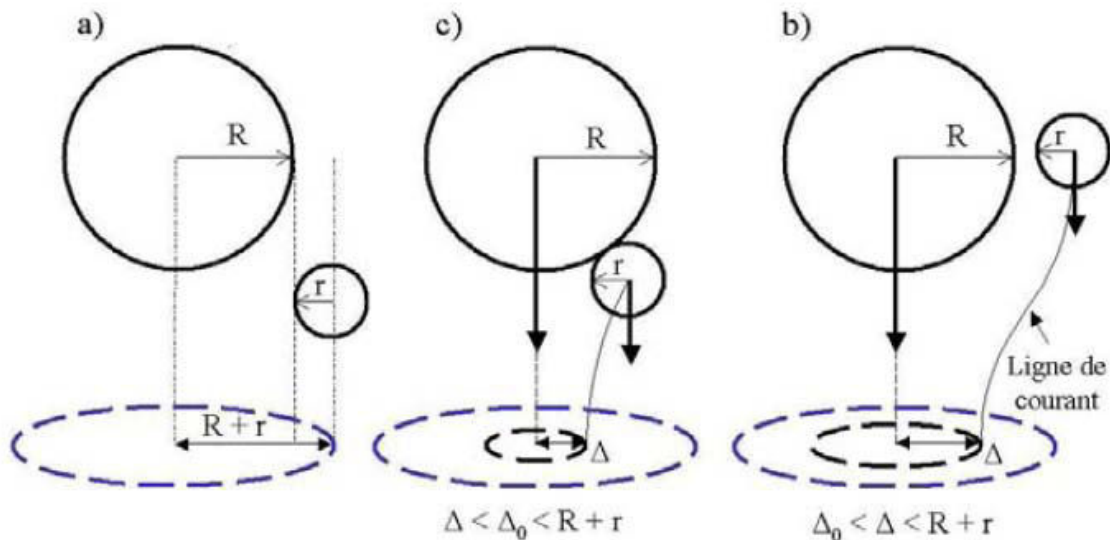


Figure 2.15 : Représentation d'une particule d'aérosol de rayon r dont le centre est dans la section balayée par une goutte de pluie de rayon R , par unité de temps. A) Représentation de la section balayée par la goutte collectrice, en bleu. B) La distance Δ entre la goutte et la particule est inférieure à la valeur critique Δ_0 : il y a collision. C) La distance Δ entre la goutte et la particule est supérieure à la valeur critique Δ_0 : la particule d'aérosol suit la ligne de courant sans entrer en collision. (D'après Seinfeld and Pandis, 1998). La figure est extraite de Crumeyrolle (2008).

Afin de calculer la quantité d'aérosol collecté par une gouttelette, on utilise l'efficacité de collection E . Ce paramètre est par définition le rapport entre le nombre de particules collectées par la goutte et le nombre total de particules présentes dans l'espace de collection. La figure 2.16 met en évidence une efficacité de collection proche de 1 pour les aérosols dont le rayon est inférieur à $0.001 \mu\text{m}$ et supérieure à $10 \mu\text{m}$. Le domaine délimité par ces deux rayons correspond au domaine des aérosols les moins lessivés, et est repéré par le nom du scientifique qui l'a mis en évidence : « Greenfield gap ».

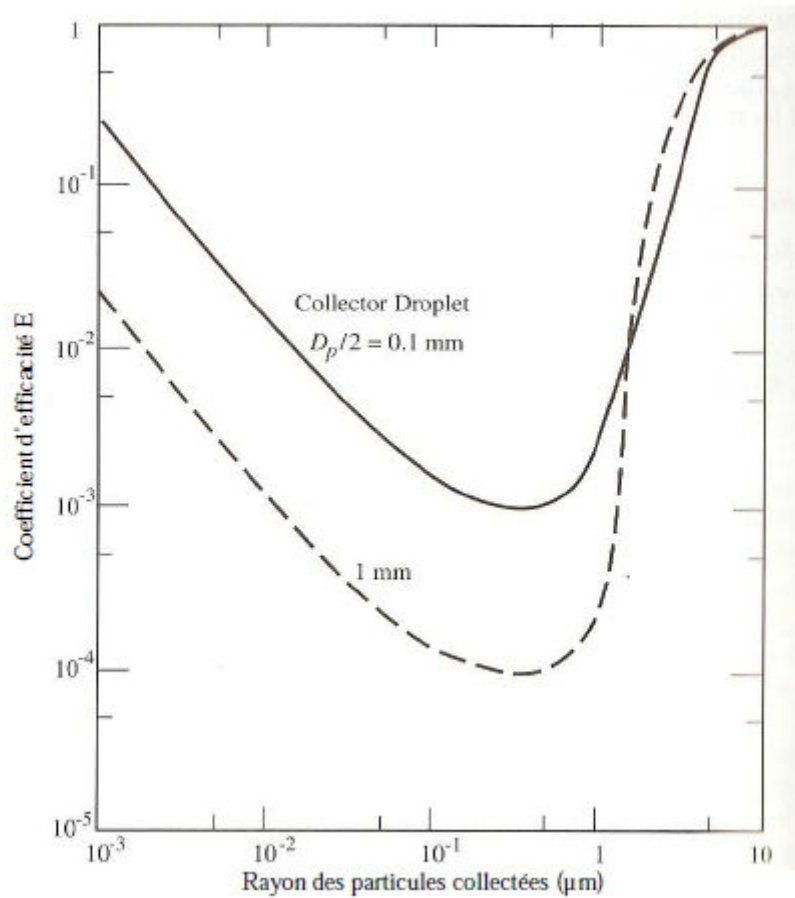


Figure 2.16 : Efficacité de collection E déterminée pour une goutte de pluie ayant un rayon de 0.1 mm (trait plein) et 1 mm (en pointillée). (D'après Seinfeld and Pandis, 1998).

L'efficacité de collection E , est paramétrée dans Méso-NH selon les travaux de Seinfeld and Pandis (1998) et de Tost et al (2006). Cette paramétrisation s'appuie sur une formulation semi-empirique proposée par Slinn (1979) (Eq. 2.4). Cette formulation exprime mathématiquement les trois processus de collection énoncé précédemment.

L'équation 2.4 est composée de trois termes distincts qui représente chacun la contribution d'un des processus de collection. Ainsi le premier, le deuxième et le troisième terme de cette équation illustre respectivement le mécanisme de collection par diffusion brownienne, l'interception et la collection par inertie. Chacun de ces termes sont exprimées à partir des 5 nombres sans dimension suivant :

- 1- Le nombre de Reynolds, qui mesure le rapport des effets inertiels vis-à-vis des effets de viscosité :

Où D_g représente le diamètre de la goutte, V_g la vitesse de chute de la goutte, ρ_{air} la densité de l'air et μ_{air} la viscosité de l'air.

- 2- Le nombre de Schmidt, qui correspond au rapport de la viscosité cinématique et de la diffusivité massique de l'aérosol :

Avec D le coefficient de diffusivité brownienne

- 3- Le nombre de Stokes, correspondant au rapport de l'inertie d'une particule solide et des forces visqueuses :

Où τ représente le temps nécessaire à la particule de vitesse V_p , pour s'extraire des lignes de courant créées dans le sillage de la goutte

- 4- Le rapport des diamètres :

5- Le rapport des viscosités :

On définit également :

Le coefficient d'efficacité constitue un élément essentiel dans la paramétrisation du dépôt humide. Au sein du modèle de recherche Mésoscale-NH, le dépôt humide des aérosols est déterminé explicitement en utilisant une approche cinétique pour calculer le transfert de masse des aérosols dans le nuage et dans les gouttelettes suivant l'équation ci-dessous :

Où DM_p/dt représente le transfert de masse des aérosols dans le nuage et dans les gouttelettes de pluie, M_p la masse de l'aérosol et C_M le coefficient de lessivage (en s^{-1}).

Les différents mécanismes de collection, mentionnés précédemment sont exprimés au travers du deuxième terme de l'équation 2.5. Le coefficient de lessivage C_M d'une particule de masse M_p est défini suivant l'équation 2.6 (Slinn, 1979).

— _____

Où E représente le coefficient de collection (Seinfeld et Pandis, 1998 ; Tost et al., 2006), r_{goutte} le rayon de la goutte de pluie et F_{pluie} le flux de précipitation (en $kg\ m^{-2}\ s^{-1}$). Ce flux de précipitation est déterminé à partir du schéma microphysique décrit précédemment (Pinty and Jabouille, 1998). Une description détaillée du lessivage explicite des aérosols peut être lue dans Tulet et al (2010).

Pour les besoins de cette étude un schéma implicite de lessivage des aérosols a été développé. Ce schéma implicite permet d'obtenir une estimation « sous-maille » du lessivage des aérosols. L'estimation du dépôt humide dépend grandement de la capacité du modèle à reproduire correctement l'activité convective. Ainsi pour des domaines ayant des résolutions horizontales supérieures à 5 km (des résolutions pas adaptées à la modélisation de l'activité convective), l'emploi d'un schéma de lessivage implicite est utile afin d'obtenir à la fois une estimation du dépôt humide à l'échelle de la maille mais aussi une estimation sous-maille (Sander et al., 1999 ;Tost et al., 2006).

Le dépôt humide des aérosols est déterminé implicitement en utilisant également une approche cinétique pour calculer le transfert de masse des aérosols dans le nuage et dans les gouttelettes de pluie, comme par le schéma de lessivage explicite. La différence entre les deux schémas de lessivage (explicite et implicite), réside dans l'approche utilisée pour déterminer le flux de précipitation F_{pluie} (Eq. 2.7). Au sein du schéma implicite, ce flux de précipitation est estimé en faisant appel au schéma de convection (Bechtold et al., 2001) décrit précédemment, et non pas au schéma microphysique, comme c'est le cas pour le schéma explicite. Ainsi dans le cas du schéma implicite, le coefficient de lessivage C_M d'un aérosol de masse M_P est défini de la manière suivante :

— ———

Où F_{pluie}^* représente le flux de précipitation (en $\text{kg m}^{-2}\text{s}^{-1}$) déterminé à partir du schéma de convection (Bechtold et al., 2001).

2.5.7 Le simulateur LIDAR

Le simulateur LIDAR a été développé pour comparer directement les structures verticales du signal rétrodiffusé observées et simulées. Le simulateur LIDAR prend en considération l'impact radiatif de l'ensemble des particules (aérosols, cristaux de glace...) présent dans Mésos-NH. Ce simulateur s'appuie sur l'équation LIDAR (Cf. Sect 2.3), et le signal rétrodiffusé dû aux particules est ainsi déterminé par le simulateur suivant l'équation 2.8.

Où $\beta_{\text{par},\lambda}$ représente le coefficient de rétrodiffusion des particules à la longueur d'onde λ , $\alpha_{\text{par},\lambda}$ le coefficient d'extinction des particules à la longueur d'onde λ et η une constante permettant de prendre en compte la diffusion multiple due aux nuages, η est pris à 0.05 selon les travaux de Platt (1973).

Les paramètres optiques, tels que l'efficacité d'extinction, l'efficacité de rétrodiffusion, sont calculés en considérant que les particules sont sphériques. Ce simulateur a été évalué lors d'une étude comparative avec les profils de rétrodiffusion obtenus par CALIPSO durant la campagne COPS (Convective and Orography induced Precipitation Study) (Chaboureau et al., 2010). Une description détaillée de la paramétrisation du simulateur LIDAR peut être lue dans Chaboureau et al., 2010).

Chapitre 3 : Transport d'aérosols désertiques vers l'Europe du Nord : l'épisode de mai 2008

3.1 Introduction

Du 25 au 31 mai 2008, un important panache d'aérosols désertiques provenant des régions nord de l'Afrique a atteint le continent européen. Selon Klein et al (2010), cet épisode peut être considéré comme l'évènement de transport d'aérosols désertiques nord africains le plus important de ces cinq dernières années observé au-dessus du continent européen. L'importance de cet épisode se caractérise à la fois par l'intensité de la charge en aérosols et par l'étendue spatiale du panache. Les précédentes études réalisées sur le transport des aérosols désertiques nord africains vers l'Europe révèlent que le panache atteint les régions nord de l'Europe que dans de rares cas (Ansmann et al., 2003 ; Collaud et al., 2004 ; Franzen et al., 1994 ; Papayannis et al., 2008 ; Reiff et al., 1986).

Malgré son caractère inhabituel, cet évènement a fait l'objet de peu d'études jusqu'à présent (Bangert et al., 2012 ; Klein et al., 2010 ; Pappalardo et al., 2010). Cet épisode de transport d'aérosols désertiques a servi de support pour

une étude comparative entre les mesures LIDAR obtenues à partir des observations satellitaires CALIPSO et celles obtenues par les stations du réseau européen EARLINET (European Aerosol Research Lidar NETwork) (Pappalardo et al., 2010). Pappalardo et al (2010) ont mené une analyse statistique des propriétés optiques des aérosols désertiques au-dessus des régions italiennes et allemandes. A partir d'une étude numérique réalisée à l'aide modèle DREAM avec une résolution de 50 km, Klein et al (2010) ont étudié la capacité de ces aérosols désertiques à agir en tant que IN (Ice Nuclei) au-dessus de l'Allemagne. Plus récemment, Bangert et al (2012) ont analysé l'impact radiatif associé à la présence de ces aérosols désertiques au-dessus de l'Europe, à partir du modèle régional COSMO-ART avec une résolution de 28 km.

Les études traitant de ce cas n'ont jusqu'à présent pas abordé l'influence de l'activité convective sur les propriétés du panache d'aérosols désertiques. En effet, le transport de ces aérosols désertiques s'est effectué dans un contexte météorologique caractérisé par une importante activité convective au sein de l'Europe centrale et du bassin méditerranéen (Hamburger et al., 2011). L'objet de ce chapitre est donc de déterminer l'impact de la convection et des précipitations sur le transport synoptique du panache d'aérosols désertiques. Il sera décliné par une description des conditions météorologiques et des caractéristiques dynamiques du transport, par une analyse quantitative basée sur l'impact des précipitations sur la charge en aérosols désertiques du panache, puis par une étude sur le transport vertical des aérosols.

3.2 Description des conditions météorologiques

A partir des observations du centre météorologique GWS (German Weather Service) et des mesures aéroportées réalisées lors de la campagne EUCAARI-LONGREX, Hamburger et al (2011) ont mis en évidence que la situation météorologique de la deuxième quinzaine de mai 2008 était caractérisée par une importante activité convective associée au passage d'un système frontal au-dessus de la méditerranée et de l'Europe centrale.

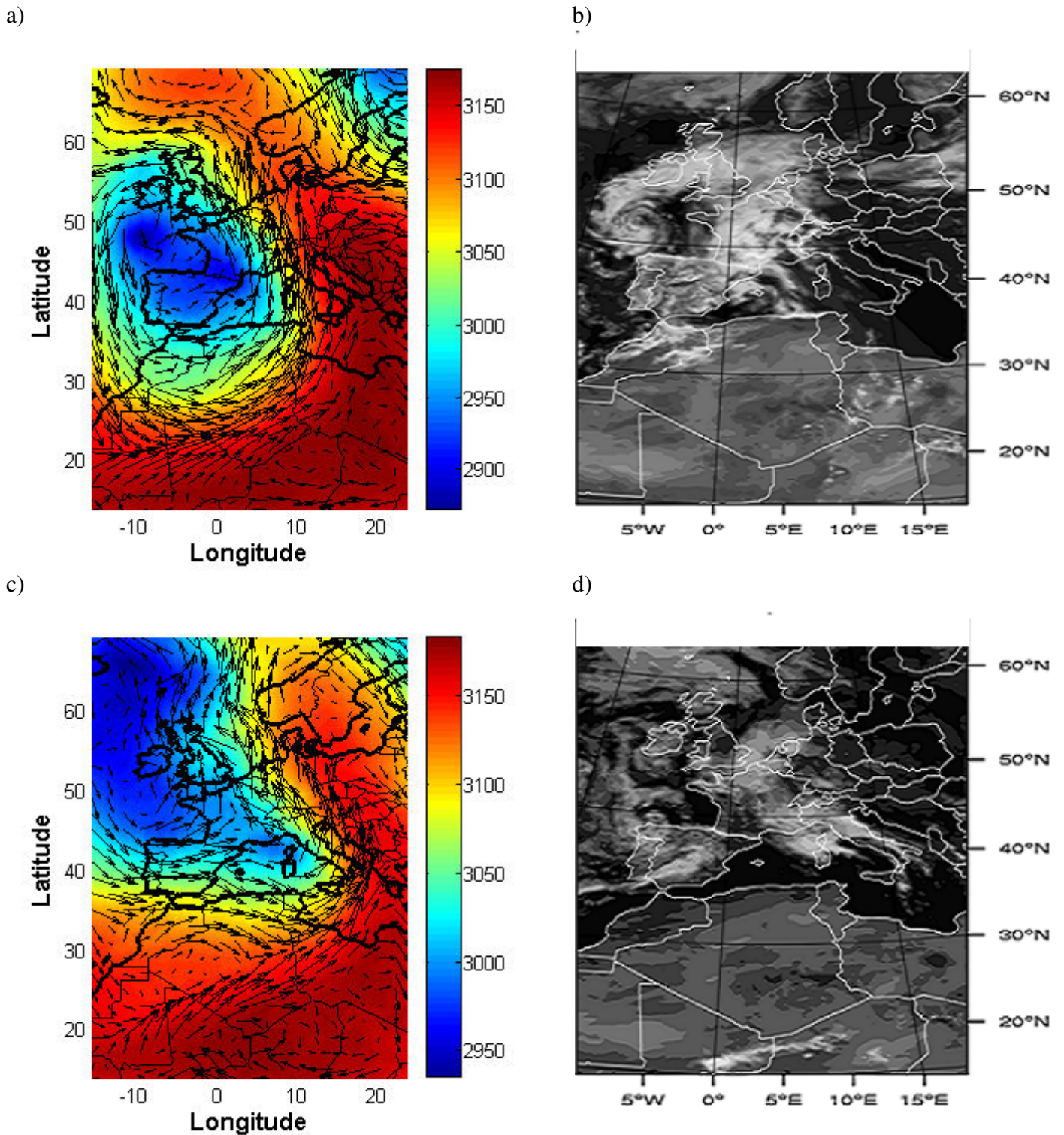


Figure 3.1 : Conditions synoptiques du 27 mai (au-dessus) et du 29 mai (en dessous) : (a et c) la hauteur de géopotential (en couleur) et le champ de vent (vecteurs) à 700 hPa à 1200 UTC, et (b et d) les images satellite de MSG (Meteosat Second Generation) à 0.6 μ m (à 1200 UTC le 27 mai (Figure. 4.1b) et 1230 UTC le 29 mai (Figure 4.1d)).

La hauteur de géopotential et le champ de vent à 700 hPa, issus des analyses du centre de prévision européen ECMWF (European Center for Medium-range Weather Forecasts), pour les journées du 27 et 29 mai 2008 à 1200 UTC sont présentés respectivement par les figures 3.1a et 3.1c. Le niveau 700 hPa a été sélectionné car les études précédentes ont montré que le transport des aérosols désertiques nord africains vers l'Europe s'effectue généralement entre 600 et 800 hPa (Ansmann et al., 2003 ; Barkan et al., 2005 ; Hamonou et al., 1999 ; Westphal et al., 1987). Les analyses issues du système de prévision européen ECMWF pour le 27 mai mettent en évidence la présence d'une cellule de basse pression s'étendant le long de la côte ouest européenne et africaine, et également la présence d'une cellule de haute pression localisée au nord-est de l'Afrique (Fig. 3.1a). La présence de ces deux systèmes est en accord avec les travaux de Barkan et al (2005) sur les conditions synoptiques favorisant le transport des aérosols désertiques nord africains vers le continent européen. La figure 3.1a montre que l'association de ces deux systèmes génère un important flux de secteur sud-ouest orienté de l'Afrique du Nord vers la méditerranée. De plus en ce 27 mai 2008, une cellule de haute pression, associée au système frontal présent au-dessus de l'Europe central et de la méditerranée, est observée au-dessus de l'Italie (Fig. 3.1a). Le système frontal et la cellule de haute pression associée, se déplacent vers l'est, et génère ainsi un flux d'ouest au-dessus de la méditerranée et de l'Europe Centrale (Fig. 3.1c).

Les observations satellitaires de MSG (Meteosat Second Generation) dans le domaine du visible (0.6 μ m) pour les journées du 27 mai à 1200 UTC et du 29 mai à 1230 UTC sont présentées respectivement par les figures 3.1b et 3.1d. La figure 4.1b montre une organisation des nuages suivant l'enroulement dépressionnaire au-dessus de l'océan Atlantique, à proximité de la côte ouest espagnole, le 27 mai. L'image satellite MSG du 27 mai à 1200 UTC montre la présence d'un groupement de nuage convectif au-dessus de la France. Ce groupement de nuage convectif associé au passage de ce système frontal au-dessus de l'Europe Central et de la méditerranée, se déplace vers l'est au cours du temps, et se situe au-dessus de la région italienne le 29 mai (Fig. 3.1d).

a) b)

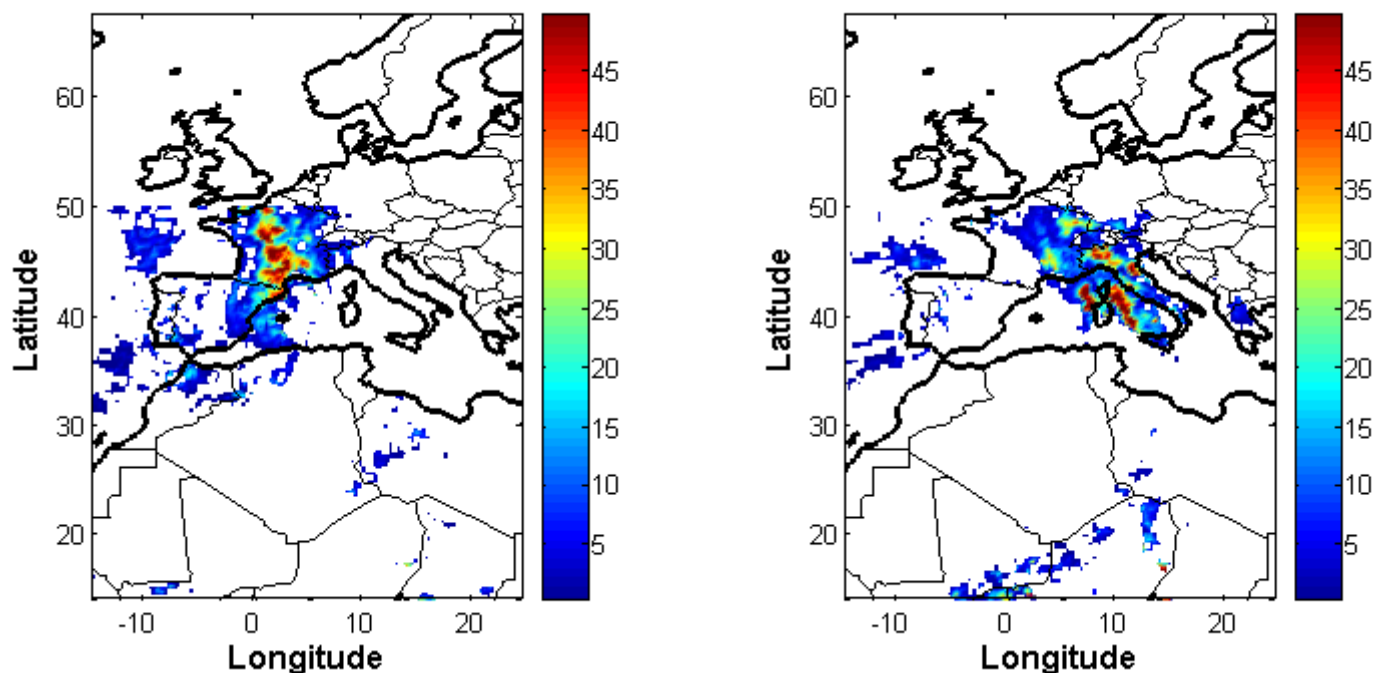


Figure 3.2 : Précipitation accumulée en 24 heures (en mm) mesurée par TRMM (Tropical Rainfall Measurement Mission) (a) le 27 mai et (b) le 29 mai 2008.

Les produits satellitaires de TRMM2 (Tropical Rainfall Measurement Mission) montrent qu'à ces nuages convectifs sont associés des précipitations journalières supérieures à 45 mm (Fig. 3.2a et 3.2b). Les taux journaliers de précipitations les plus importants ont été mesurés par TRMM le 27 mai et le 29 mai, avec respectivement 80 mm (dans le sud-ouest de la France) et 85 mm (entre la Corse et l'Italie).

² Dans le cadre de cette thèse, il a été utilisé le produit 3B-42 de TRMM (Huffman et al., 2007)

3.3 Formation et transport d'un panache d'aérosols désertiques au-dessus de l'Europe

3.3.1 La chronologie du transport d'un panache d'aérosols minéraux vers l'Europe du Nord

La figure 3.3 présente l'évolution des valeurs de AI (Aerosol Index) issues des observations de OMI au-dessus de l'Afrique du Nord et de l'Europe durant la période du 27 au 31 mai à 1200 UTC. Les valeurs obtenues durant cette période révèlent la présence d'aérosols absorbant dans l'UV, tels que les aérosols minéraux, au-dessus de l'Afrique du Nord et de l'Europe. Le 27 mai (Fig. 3.3a), le panache d'aérosols est présent au-dessus de l'Afrique du Nord (AI=2.5) et à proximité du sud-est de la France (AI= 1). Au sein de la région nord africaine, les valeurs les plus importantes de AI sont localisées entre 15°N et 36°N. Les valeurs supérieures à 2 sont situées dans le sud de la Tunisie, le nord-est de l'Algérie, le nord-ouest de la Libye et au Tchad. Le 28 mai (Fig. 3.3b), le panache se propage en direction de l'Italie et de l'Europe de l'Est, avec des valeurs de AI supérieures à 1.5 obtenues en Allemagne et en Hongrie. Une fine couche d'aérosols est observée au-dessus de l'Europe du Nord par l'intermédiaire d'une valeur de AI de 2 au-dessus du rivage de la mer Baltique (Fig. 3.3b).

Le 29 mai, l'extension spatiale du panache d'aérosols a très fortement diminué au-dessus du bassin méditerranéen à cause de la forte activité convective. De plus, il est intéressant de noter que le panache d'aérosols n'est plus observé par OMI à cause de la présence de nuages (Hsu et al., 1999). Les faibles valeurs de AI (< 1) obtenues au-dessus du bassin méditerranéen correspondent aux régions où d'importantes précipitations ont été observées par TRMM. A partir de ce constat, il peut être émis comme hypothèse que les précipitations ont très probablement lessivé une partie des aérosols au-dessus de la méditerranée. A contrario, la quantité d'aérosols a augmenté au sein de l'Europe de l'Est et des rives de la mer Baltique, le 29 mai. Au sein de ces régions, les valeurs de AI varient de 1 à 2.5, avec la valeur maximale observée en Hongrie et dans le nord-est de l'Allemagne. Le 30 mai, le panache se propage en direction du nord de l'Europe et s'étend de la Hongrie à la Norvège.

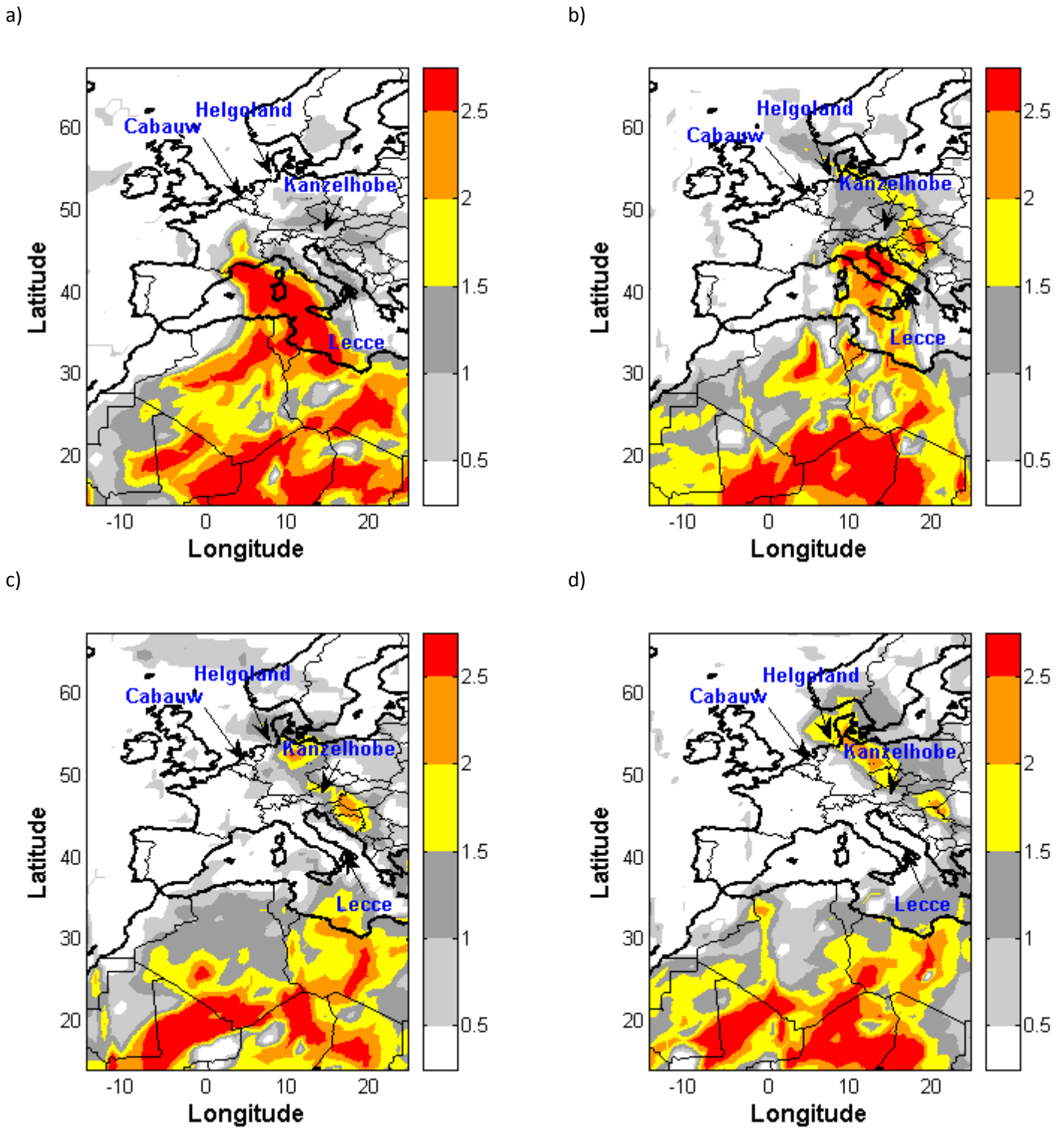


Figure 3.3 : Evolution de l'AI (Aerosol Index) obtenus à partir des observations OMI le (a) 27 mai, (b) 28 mai, (c) 29 mai et (d) 30 mai à 1200 UTC.

Cette figure met également en évidence qu'au-dessus de certaines régions (France, Italie, Pays-Bas) la couche d'aérosols est masquée par la couverture nuageuse associée à l'activité convective, ce qui justifie ainsi pleinement la réalisation d'une étude numérique. L'intérêt d'une étude numérique se justifie également par le fait de mettre en évidence que les aérosols observés par OMI correspondent bien à des aérosols désertiques. Les résultats de cette étude numérique feront l'objet de la suite de cette section et de ce chapitre.

3.3.2 Mise en évidence d'un transport d'aérosols désertiques vers l'Europe du Nord

L'étude numérique réalisée avec l'aide du modèle Méso-NH s'est effectuée pour la période du 25 mai à 00 UTC au 1^{er} juin à 00 UTC. Le domaine d'étude couvre une large partie de l'Afrique du Nord et le continent européen, s'étendant entre 15.1°N et 68.7°N de latitude, et 14.9°O et 23.1°E de longitude, avec une résolution de 25 km. Le domaine est également constitué de 60 niveaux verticaux atteignant l'altitude maximale de 30 km. L'initialisation et les conditions limites latérales ont été prises à partir des analyses opérationnelles ECMWF. Une simulation de référence (REF) incluant comme aérosol uniquement les aérosols désertiques, et comprenant également le schéma explicite et implicite de lessivage des aérosols. La distribution en taille des aérosols désertiques utilisée dans Méso-NH est constituée de trois modes log-normales avec des rayons médians de 0.039, 0.32 et 2.5 μm , et avec respectivement des écart-types de 1.75, 1.76 et 1.70. Les propriétés radiatives et optiques sont estimées à partir des indices de réfraction déterminés lors de la campagne AMMA (Mallet et al., 2009 ; Tulet et al., 2010). Les valeurs de ces indices sont de 1.448-2.92 10^{-3} pour l'intervalle 440-690 nm, et 1.440-1.16 10^{-3} pour l'intervalle 690-1190 nm.

La figure 4.4 présente les résultats de la modélisation des AOT dues uniquement à la présence d'aérosols désertiques du 27 au 31 mai 2008 à 1200 UTC. Cette figure met en évidence que les structures et la distribution temporelle du panache d'aérosols désertiques simulé sont similaires à celles du panache d'aérosols observé par OMI (Fig. 3.3). Il est ainsi possible maintenant de conclure que les

aérosols observés par OMI correspondent bien à des aérosols désertiques nord africains qui ont été transportés vers le nord de l'Europe.

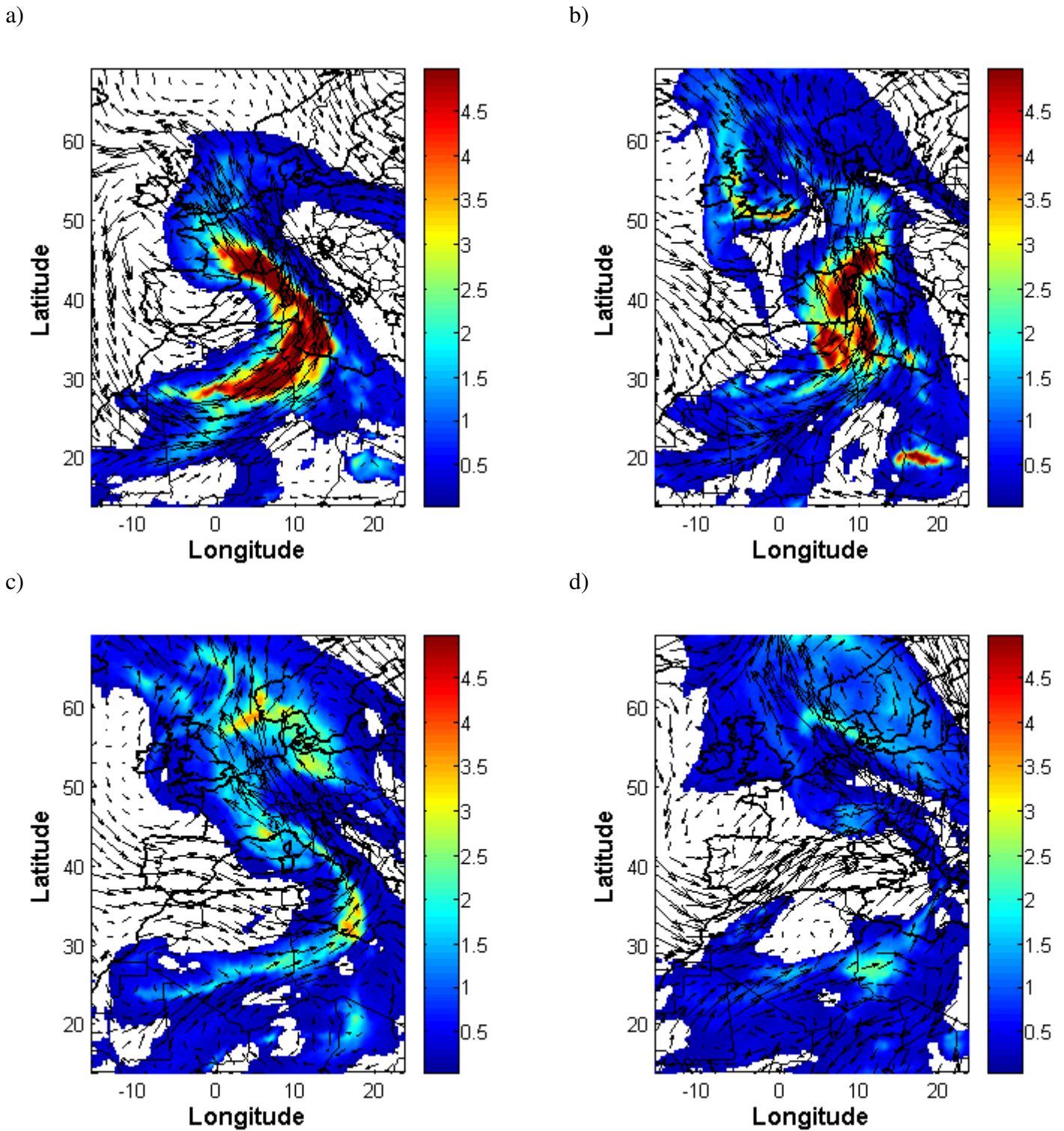


Figure 3.4 : Evolution des AOT des aérosols désertiques et le champ de vent à 700 hPa (vecteurs) issu de la simulation de référence (REF) à 1200 UTC pour le (a) 27 mai, (b) 28 mai, (c) 29 mai et (d) 30 mai 2008.

Après deux jours de simulation, une zone de forte valeur d'AOT s'étendant du centre de l'Algérie à la France en passant par le nord-est de la Libye et de la Tunisie, est modélisée (Fig. 3.4a). Au sein de cette région les valeurs sont supérieures à 4.5, avec notamment 5.8 et 5.2 respectivement simulés dans le centre de l'Algérie et le nord-est de la Tunisie. Le 28 mai, cette zone de forte valeur d'AOT s'étend de la Tunisie au nord de l'Italie, avec des valeurs de 5 (Fig. 3.4b). Le 29 mai, on ne retrouve plus ces fortes épaisseurs optiques (Fig. 4.4c). Au sein de la région italienne, les valeurs d'AOT ont diminué de moitié (< 2.5). Cette diminution est cohérente avec l'intensification de l'activité convective dans le bassin méditerranéen le 29 mai. A l'inverse, les valeurs d'AOT ont augmenté en Europe du Nord, et tout particulièrement dans la région scandinave où d'importantes valeurs (3-3.5) ont été simulées. Au cours du 30 mai, les valeurs d'AOT ont diminué sur l'ensemble du domaine. Cependant des valeurs significatives (1.5-2) ont été simulées en Suède et en Norvège.

Compte tenu de la couverture nuageuse associée aux systèmes convectifs présents sur le bassin méditerranéen et l'Europe Central, les observations satellites (OMI, MODIS) ont été affectées, les rendant ainsi difficilement exploitables pour une évaluation des simulations réalisées. L'évolution des AOT a également été suivie par l'intermédiaire des mesures de quatre stations du réseau AERONET (Fig. 3.5) : Lecce (40,34°N ; 18,11°E), Kanzelhohe (46,68 N ; 13,91°E), Helgoland (54,43°N ; 7,89°E) et Cabauw (51,97°N ; 4,93°E). Ces stations ont été sélectionnées d'une part car elles sont situées sur la trajectoire du panache (Fig. 3.3), et d'une autre part car ce sont les stations du réseau les moins affectées par l'activité convective.

La station de Lecce est localisée dans le sud-est de l'Italie, et constitue parmi les stations sélectionnées la station la plus proche des régions sources. C'est également la station du bassin méditerranéen la moins affectée par les précipitations. Les AOT mesurées à Lecce varient de 0.18 à 0.51, dont la valeur maximale est observée au cours du 30 mai. Les valeurs d'AOT simulées à Lecce augmentent jusqu'à 0.67 le 30 mai. Les valeurs nulles indiquent que le panache d'aérosols désertiques n'a pas encore atteint la station. Les aérosols de pollution n'étant pas pris en compte dans la simulation. Les valeurs mesurées et simulées

mettent en évidence que Lecce a été très peu affectée par le panache d'aérosols désertiques. En effet, à partir des mesures de télédétection photométrique de Lecce, Perrone et al. (2005) ont mis en évidence que les épisodes de transport d'aérosols désertiques au-dessus de Lecce sont caractérisés par des AOT supérieures à 0.5.

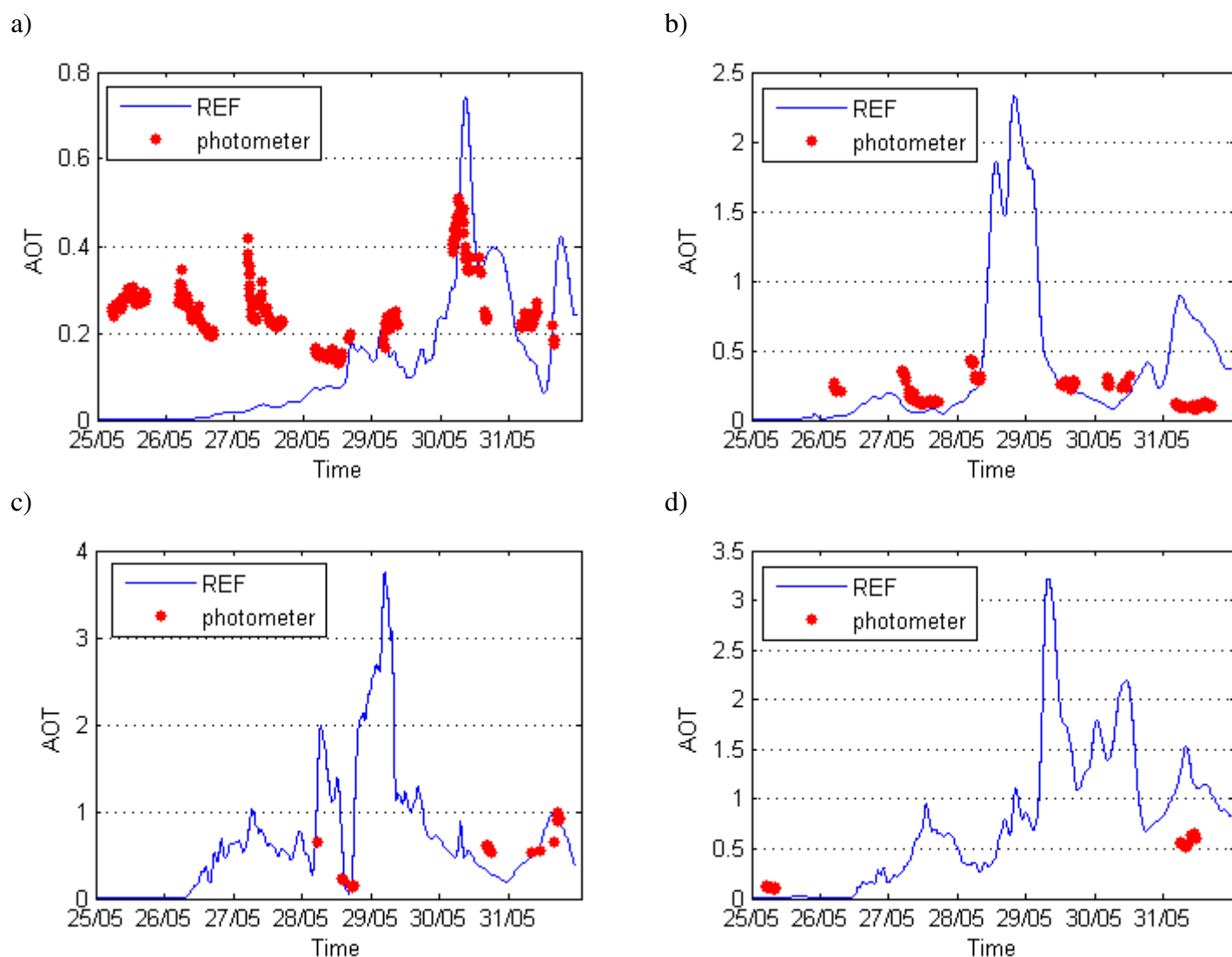


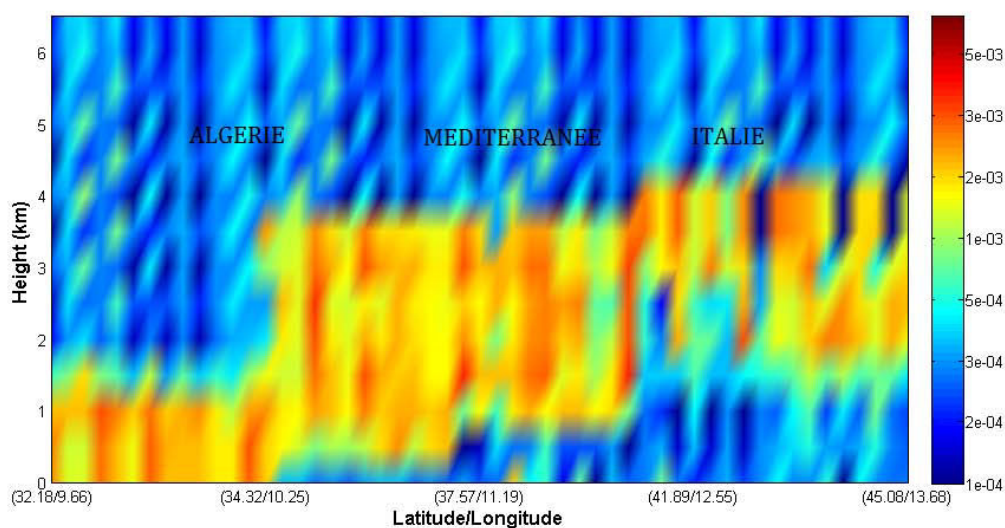
Figure 3.5 : Evolution des AOT obtenues par mesures photométriques à 440 nm (points rouges) et simulées par Méso-NH à 500 nm (trait bleu) à (a) Lecce, (b) Kanzelhohe, (c) Cabauw et (d) Helgoland.

A Kanzelhohe (Fig. 3.5b), les AOT mesurées varient de 0.15 à 0.49. La figure 3.5b présente une assez bonne cohérence entre les valeurs modélisées et observées à Kanzelhohe. Il est intéressant de noter que le modèle simule le passage du panache entre le 28 et 29 mai, ce qui est en accord avec les

observations de OMI précédemment présentées (Fig. 3.3). Cependant aucune mesure n'a été réalisée entre le 28 et le 29 mai à cause de la couverture nuageuse. La station de Helgoland est localisée dans le sud-est de la mer du Nord, et constitue parmi les stations sélectionnées la station la plus éloignée de la région source. Les valeurs mesurées à Helgoland varient de 0.1 à 0.8, avec la valeur maximale observée le 31 mai. La figure 3.5d révèle que les AOT simulées à Helgoland sont supérieures à celles observées. Cette divergence entre le modèle et les observations peut être attribuée à une sous-estimation des précipitations par le modèle au sein de la région nord de l'Europe (la modélisation des précipitations sera discutée plus en détails à la section suivante). Cela peut également s'expliquer par une mauvaise prévision de la position du panache par le modèle. Cependant, la figure 3.5c présente une bonne cohérence entre les AOT mesurées et simulées à Cabauw, aux Pays-Bas. En particulier, on observe que le pic d'AOT observé le 31 mai avec un maximum de 1 est bien reproduit par le modèle.

La figure 3.6 présente une coupe verticale du signal rétrodiffusé à 532 nm simulé et observé par CALIPSO au-dessus de la région italienne le 28 mai à 01 :18 UTC. Il est intéressant de noter qu'il y a un bon accord entre les structures modélisées et observées. À partir de l'analyse de ces deux figures, il est possible d'affirmer d'une part que l'intensité du signal rétrodiffusé due aux aérosols désertiques est comprise entre $1 \cdot 10^3$ et $2 \cdot 10^3 \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$, et d'une autre part que les aérosols désertiques sont transportés vers l'Europe entre 2 et 4 km d'altitude. Implicitement cela suggère également que la charge en aérosols désertiques simulée est en accord avec la charge en aérosols désertiques réellement présent dans l'atmosphère.

a)



b)

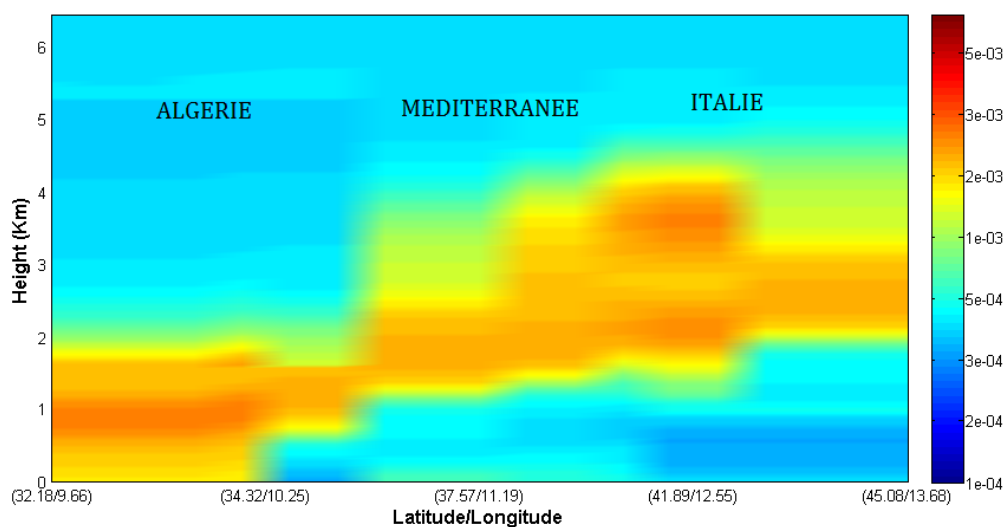
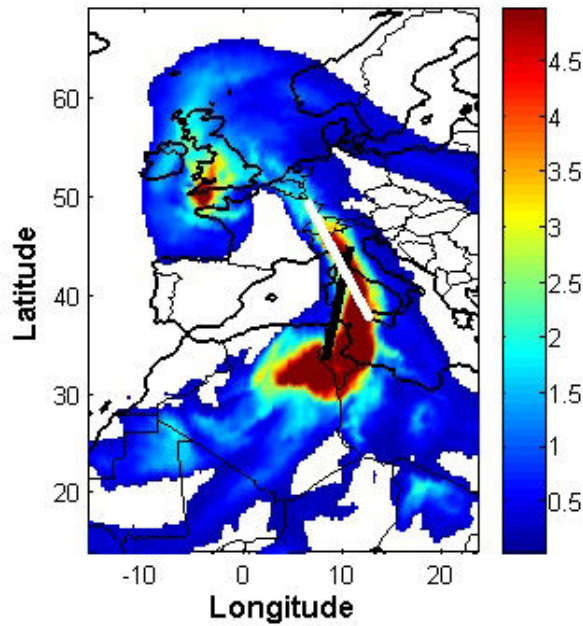


Figure 3.6 : Coupe verticale du signal rétrodiffusé (en $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$) (a) observé par CALISPO (adapté selon les grilles du modèle) à 0118 UTC et (b) modélisé par Méso-NH à 0100 UTC au-dessus du bassin méditerranéen et de l'Italie le 28 mai.

Une coupe verticale de la concentration massique simulée suivant la trajectoire suivie par CALIPSO le 28 mai à 0100 UTC a été réalisée (Fig. 3.7a et 3.7b). Il a ainsi été simulé $8000 \text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$ d'aérosols désertiques transportés de l'Afrique du Nord vers l'Italie entre 2 et 4 km d'altitude. La figure 3.7 met également en évidence le rôle du relief, en l'occurrence ici le mont Atlas, dans le soulèvement du panache d'aérosols désertiques vers l'Europe. De plus, il est possible de voir des concentrations de $21\,000 \text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$ à la surface en amont de l'Atlas.

a)



b)

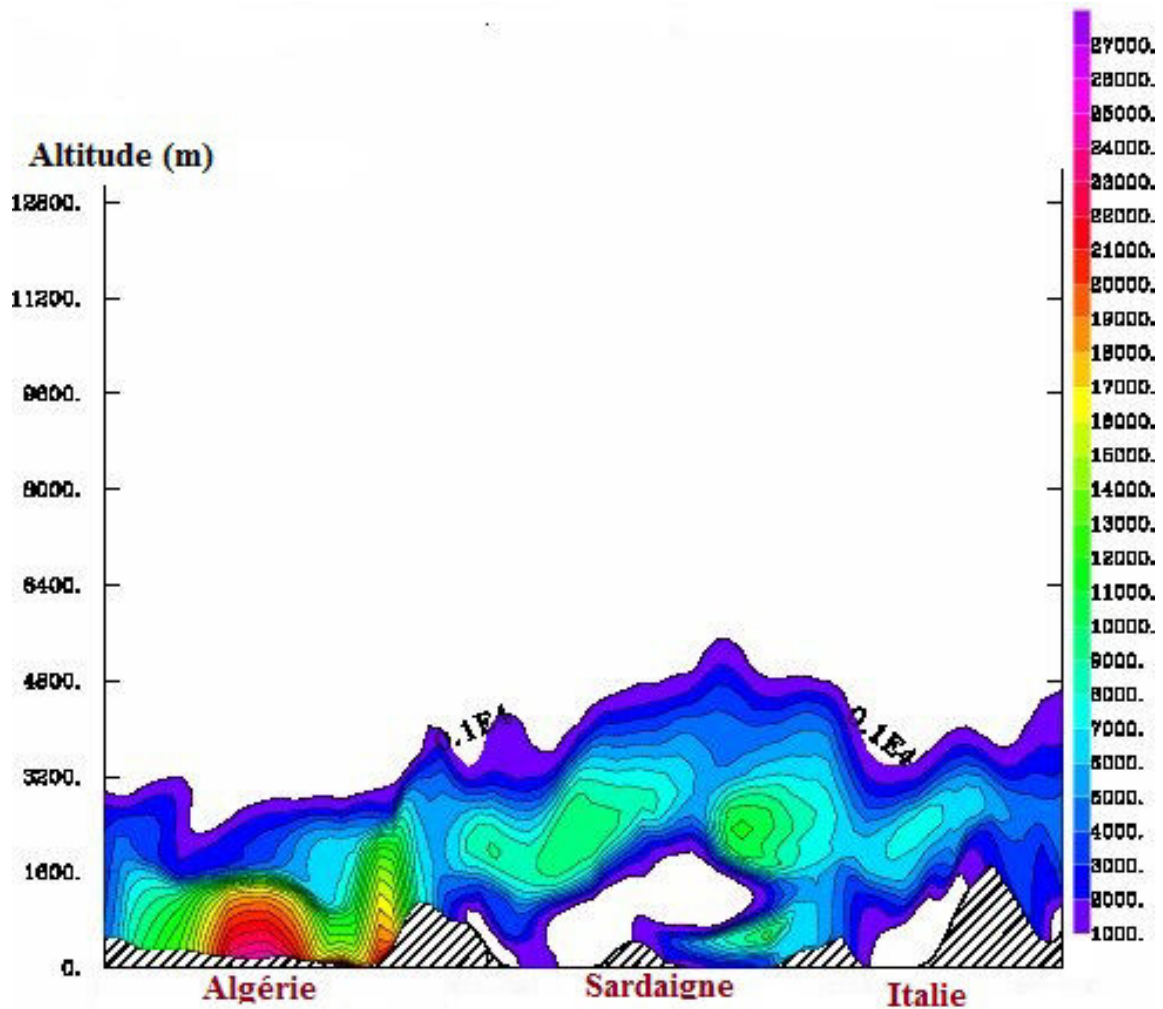


Figure 3.7 : (b) Coupe verticale de la concentration massique du panache le 28 mai à 0100 UTC suivant (a) la trajectoire de CALIPSO (en trait noir).

La figure 3.7 révèle également une interaction du panache avec la surface entre la Sardaigne et l'Italie. Cela suggère ainsi une possibilité de mélange entre le panache et les aérosols présents au sein de cette surface. Cette figure met en évidence l'interaction du panache avec le relief européen. Cependant, la coupe verticale réalisée ne passe pas tout le temps sur le panache. Ainsi, une autre coupe verticale le long du panache (Fig. 3.7a, trait blanc), allant de la méditerranée au nord-ouest de la France en passant par la région des Alpes (Fig. 3.8).

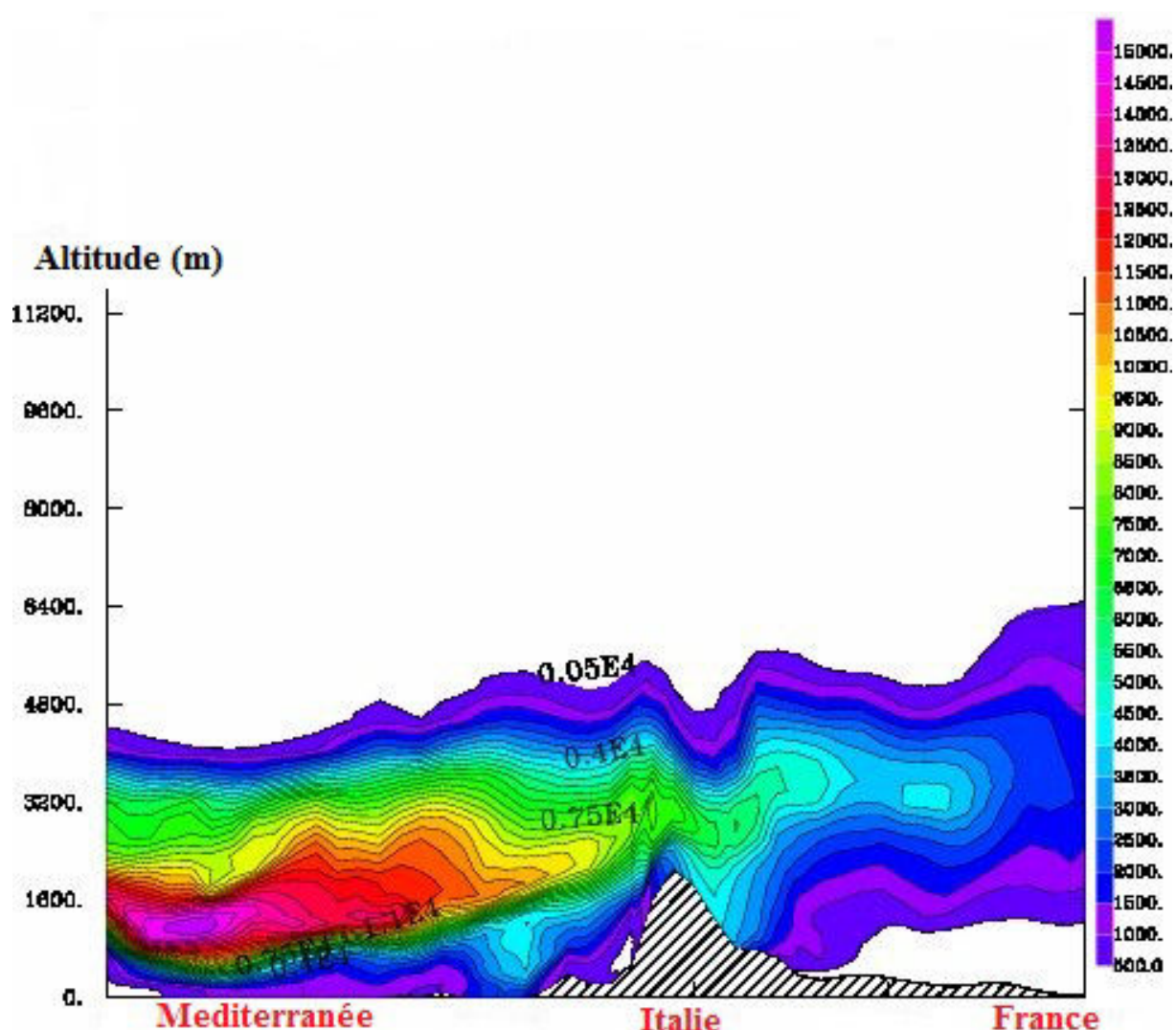


Figure 3.8 : Coupe verticale de la concentration massique (en $g.m^{-3}$) du panache le 28 mai à 0100 UTC le long du panache (Fig. 3.7a, trait blanc), allant de la méditerranée au nord-ouest de la France en passant par la région des Alpes

La figure 3.8 met en évidence un transport d'une importante quantité d'aérosols désertiques ($4000-12\,000\text{ g}\cdot\text{m}^{-3}$) vers l'Europe qui s'effectue entre 1 et 4 km. Cette figure révèle un transport qui s'effectue à basse altitude, suggérant ainsi des mélanges possibles entre les aérosols localement présents sur l'Europe et le panache. Par ailleurs, il est intéressant de noter l'interaction entre le panache et le relief italien (Fig. 3.8). En particulier, il est possible de voir qu'après le passage au-dessus des Alpes, le panache est soulevé en altitude entre 2 et 4 km. Cette interaction peut ainsi laisser place à dépôt à proximité de cette région des Alpes (le dépôt des particules sera discuté plus en détails à la section suivante).

Pour conclure, les observations et la simulation de référence (REF) montrent le transport d'un panache d'aérosols désertiques vers l'Europe du Nord, et indiquent aussi clairement l'Afrique du Nord comme la région source.

3.4 Analyse quantitative

A partir des observations et des simulations présentées précédemment, il a été mis en évidence que les aérosols désertiques provenant de l'Afrique du Nord ont été transportés vers l'Europe du Nord. Suite à cela, il sera proposé au sein de cette section une estimation de la quantité d'aérosols produits par les régions sources nord africaines, mais également une estimation de la quantité d'aérosols estimée par dépôt sec et humide.

3.4.1 Evaluation du flux net

3.4.4.1 Estimation des zones sources et de dépôt sec

Le flux net a été employé dans cette étude afin de déterminer les zones d'émission et de dépôt sec. Le flux net est défini comme la différence entre la quantité d'aérosols désertiques émise et la quantité perdue par dépôt sec. Ainsi, un flux net négatif correspond à une perte d'aérosol par dépôt sec, alors qu'une valeur positive du flux net correspond à une émission. La figure 3.9 illustre la distribution spatiale du flux net accumulé à la surface durant la période du 25 au 31 mai 2008.

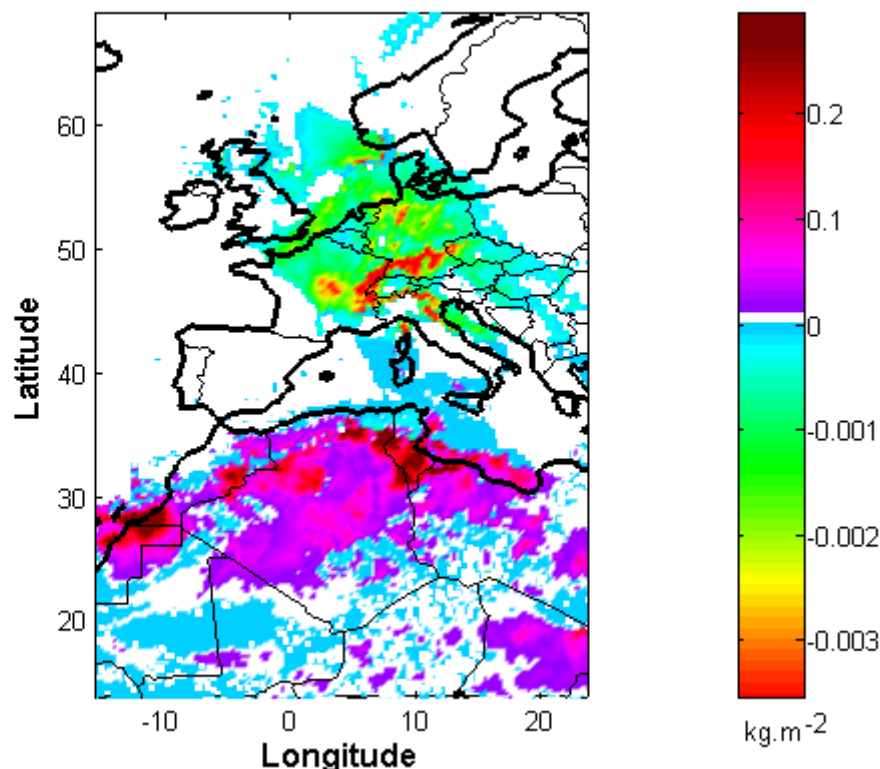


Figure 3.9 : Estimation du flux net accumulé à la surface par Méso-NH durant la période du 25 au 31 mai 2008

Cette figure met en évidence que les régions d'émission, caractérisées par des valeurs positives, sont localisées en Afrique du Nord, avec des valeurs allant de 0.04 à 0.25 kg.m^{-2} . Les valeurs les plus importantes sont principalement localisées dans le sud de la Tunisie (0.25 kg.m^{-2}), le centre de l'Algérie (0.22 kg.m^{-2}), le sud-ouest du Maroc (0.2 kg.m^{-2}) et le nord-ouest de la Libye (0.2 kg.m^{-2}). Les zones les plus importantes de flux net sont localisées à proximité des « Chott » tunisien et algérien. Les « Chotts » sont des zones de dépôt de sédiment résultant de l'assèchement d'anciens lacs. Prospero et al (2002) ont mis en évidence l'importance de ces « Chotts » tunisien et algérien dans la production d'aérosols désertiques particulièrement durant le mois d'avril et de mai. La figure 3.9 suggère ainsi que l'origine de ce transport d'aérosols vers l'Europe provient majoritairement des sources tunisiennes, algérienne et Libyenne. L'Afrique du Nord constitue à la fois la région source de cet épisode de transport d'aérosols désertiques, mais aussi une région de dépôt sec. En

Afrique du Nord, les zones de dépôt sec sont principalement localisées à proximité des zones sources. Au sein de la région européenne, les zones de dépôt sec sont localisées à proximité des chaînes de montagne françaises et italiennes, tel que le massif central et les Alpes (Fig. 3.9).

3.4.4.2 Quantification de la charge en aérosols

A partir des estimations du flux net, un bilan massique de la charge en aérosols désertiques a été réalisé. Le tableau 3.1 contient les estimations journalières de la quantité d'aérosols désertiques émis durant la période du 25 au 31 mai 2008.

	25/05	26/05	27/05	28/05	29/05	30/05	31/05	Total
Masse (Tg)	49	57	17	26	6	10	20	185

Table 3.1 : Estimations journalières de la masse (Tg) d'aérosols désertiques émis par Méso-NH du 25 au 31 mai 2008.

Cette estimation est basée sur la somme des émissions individuelles de chacune des régions sources. Les quantités d'aérosols émis varient de 6 à 57 Tg, estimées respectivement pour les journées du 26 et 29 mai. La quantité d'aérosols désertiques émis au cours de cet épisode est estimée à 185 Tg par le modèle. Étant donné que la quantité d'aérosols désertiques émis annuellement par l'Afrique du Nord est de 1400 Tg (Ginoux et al., 2004), cet épisode représente ainsi à lui seul 13% de la quantité émise annuellement par l'Afrique du Nord.

La figure 3.10 illustre la masse d'aérosols désertiques perdue par dépôt sec au sein de la région africaine et européenne. Les quantités d'aérosols perdues par dépôt sec varient de 0.5 à 3 Tg, estimées respectivement pour les journées du 27 et 30 mai. La quantité totale d'aérosols désertiques perdue par dépôt sec est estimée à 12 Tg, ce qui représente uniquement 7% de la quantité totale émise.

La figure 3.10 met en évidence que la quantité d'aérosols perdue par dépôt sec est plus importante sur la région africaine (9,8 Tg) que sur la région européenne (2,7 Tg). En effet, comme l'illustre également la figure 3.9, le maximum de dépôt sec se situe à proximité de ces régions. Cela peut s'expliquer par le fait que les particules du mode grossier sédimentent rapidement, et sont ainsi rapidement déposées à la surface, et par conséquent à proximité des zones sources. Au sein

du continent européen, le dépôt des particules par voie sèche se situe principalement à proximité des chaînes de montagne. Cela s'explique notamment par l'altitude du transport du panache vers l'Europe. Comme l'illustre la figure 3.8, au cours de son transport vers l'Europe le panache interagit avec les principales chaînes de montagne européenne, telles que les Alpes.

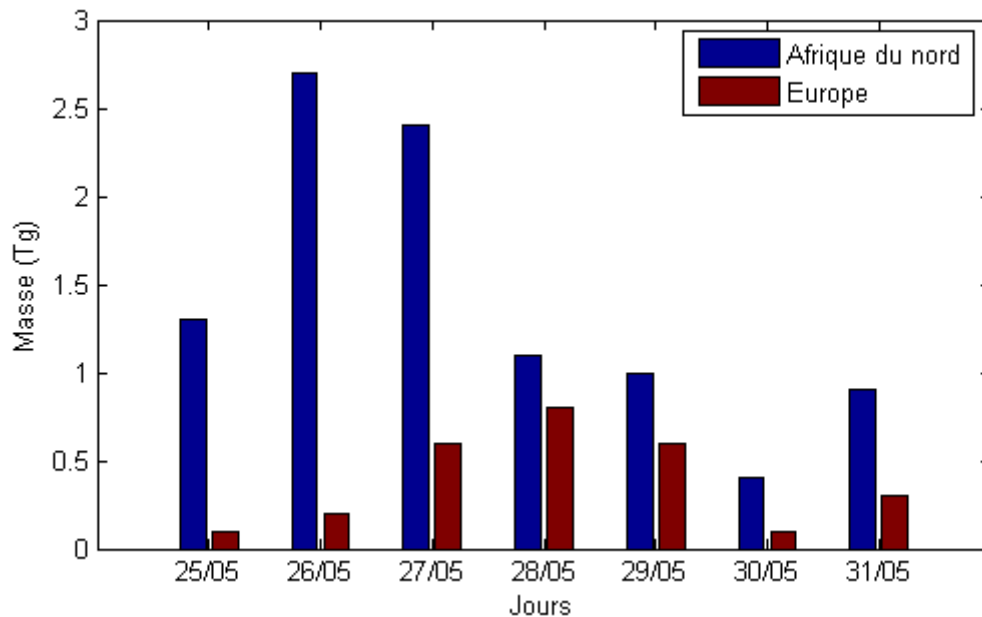


Figure 3.10 : Estimations journalières de la masse d'aérosols désertiques perdue (en Tg) par dépôt sec au sein de l'Afrique du Nord et de l'Europe par Méso-NH du 25 mai au 31 mai 2008.

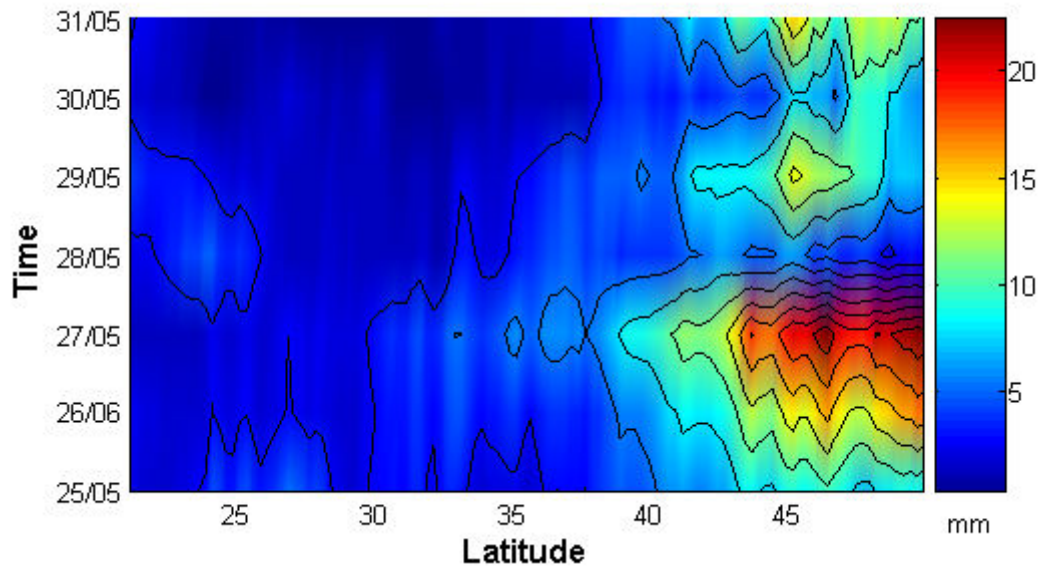
Compte tenu des conditions météorologiques présentées à la section 3.2, il n'est pas à exclure une contribution significative du dépôt humide dans les processus d'élimination des ces aérosols désertiques de l'atmosphère.

3.4.2 Evaluation du dépôt humide

L'évaluation du dépôt humide a été réalisée par l'intermédiaire de trois types de simulations: la simulation de référence (REF) qui inclut le schéma explicite et implicite de lessivage des aérosols, une simulation ne comprenant que le schéma de lessivage explicite (SCAV) et une simulation n'incluant aucun schéma de lessivage (NOSCAV). Afin de valider les simulations météorologiques présentées dans cette thèse (évolution de l'activité convective et la position des systèmes

convectifs), les produits satellitaires de TRMM ont été utilisés. Les résultats de la simulation de référence (REF) révèlent que les précipitations associées au passage du système frontal au sein de l'Europe centrale et du bassin méditerranéen, sont assez bien reproduites par Més0-NH.

a)



b)

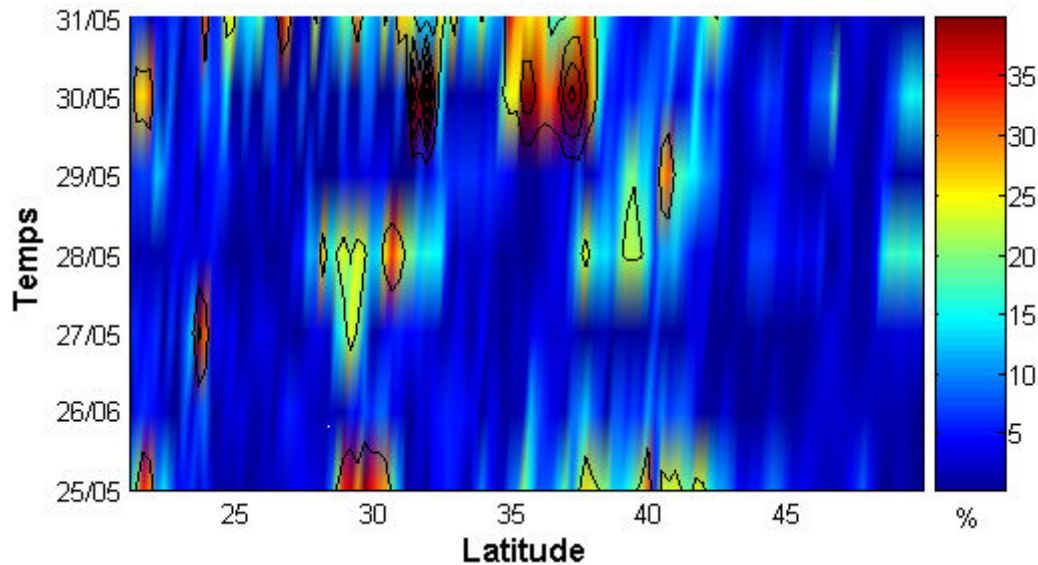


Figure 3.11 : Evolution temporelle (a) des précipitations modélisée par Més0-NH et (b) de l'écart relatif des précipitations entre TRMM et Més0-NH (REF) en fonction de la latitude du 25 au 31 mai 2008.

La figure 3.10a représente l'évolution temporelle des précipitations modélisées par Méso-NH du 25 au 31 mai 2008 en fonction de la latitude. Cette figure révèle que les précipitations les plus importantes sont modélisées entre 42° et 50°N de latitude. De plus, l'évolution obtenue par Méso-NH au sein de ce domaine latitudinal révèle que les précipitations sont maximales durant la journée du 27, et qu'elles diminuent légèrement ensuite. Ceci est en accord avec les observations de TRMM obtenues pour ce domaine latitudinal, et qui sont présentées à la figure 3.2a et 3.2b. Les observations de TRMM révèlent une intensification des précipitations du 27 au 29 mai entre 33° et 40°N de latitude (Fig. 3.2a et 3.2b). Cependant, cette intensification au cours du temps au sein de cette région des précipitations n'est pas bien reproduite par Méso-NH.

La figure 3.11b présente l'évolution temporelle de l'écart relatif des précipitations issues des observations de TRMM et du modèle en fonction de la latitude. Cette figure permet ainsi de quantifier les erreurs du modèle entre 33° et 40°. Ainsi il est possible de voir des écarts de 25 à 35% du 28 au 30 mai au sein de ce domaine latitudinal. Cependant entre 42° et 50°N les écarts sont inférieurs à 12%. Cela suggère que l'évolution temporelle des précipitations entre 42° et 50°N de latitude est assez bien reproduite.

Les divergences entre les observations et le modèle peuvent s'expliquer par une dérive numérique du modèle. En effet, comme pour tous les modèles atmosphériques, une dérive numérique peut apparaître et s'accroître au fur et à mesure que la simulation s'éloigne des conditions initiales. L'origine de ces divergences peut également être attribuée à la résolution avec laquelle la simulation a été réalisée. En effet, une résolution de 25 km peut être satisfaisante pour la modélisation du transport à longue distance du panache, mais peut ne pas être satisfaisante pour reproduire finement les structures convectives observées.

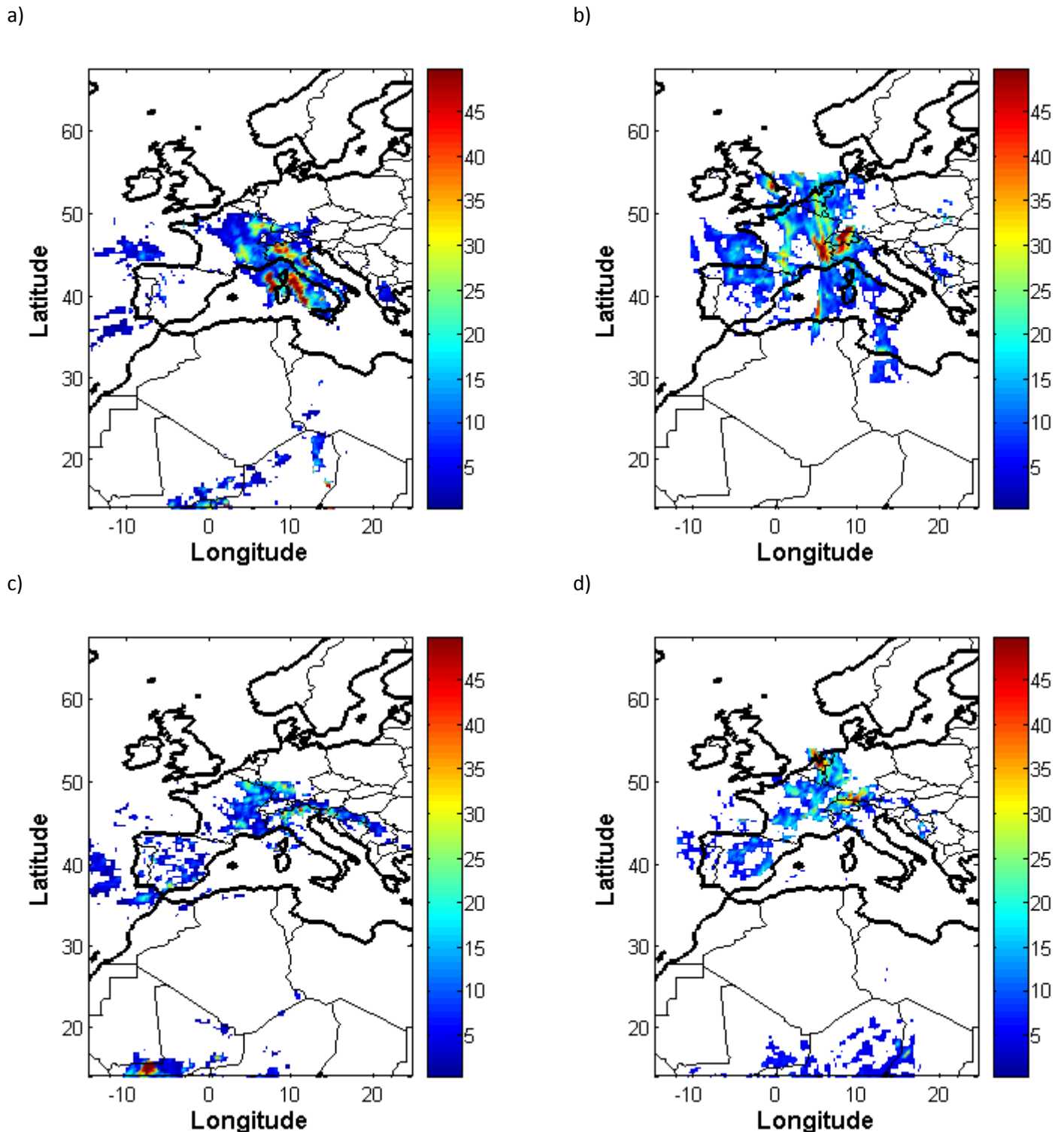


Figure 3.12 : Précipitations accumulées en 24 heures (en mm) observées par (a et c) TRMM et (b et d) estimées par Meso-NH par l'intermédiaire de la simulation REF pour les journées (au-dessus) du 29 mai et (au-dessous) du 30 mai 2008

Les précipitations accumulées estimées explicitement et implicitement par le modèle pour les journées du 29 et 30 mai sont présentées respectivement par les figures 3.12b et 3.12d. La distribution spatiale des précipitations simulées est cohérente avec celle observée par TRMM durant ces deux journées (Fig. 3.12a et 3.12c). Pour la journée du 29 mai, il est possible de voir que Méso-NH sous-estime les précipitations au sein de la région Est du bassin méditerranéen. En effet, à proximité de la Corse et de la Sardaigne, TRMM a observé 50 mm de précipitations accumulées en 24 heures, alors que le modèle a simulé que 20 mm. Les précipitations sont ainsi sous-estimées d'un facteur 2.5 par le modèle. Cependant la quantité de précipitation observée par TRMM dans le nord de l'Italie (45 mm) est bien restituée par Méso-NH (Fig. 3.12a et 3.12b).

Par ailleurs, il est possible de constater que la diminution de l'activité convective observée par TRMM le 30 mai dans le bassin méditerranéen, est également simulée par Méso-NH le même jour (Fig. 4.12c et 4.12d). Néanmoins, les précipitations simulées sont surestimées d'un facteur 2.3 au sein de la partie nord-est de la Suisse, le 30 mai. En effet, au sein de cette région, le modèle a simulé 35 mm alors que TRMM a observé 15 mm.

La figure 3.13 présente la distribution spatiale des différences de charge en aérosols accumulées du 25 au 31 mai entre les simulations NOSCAV et REF. Les différences les plus importantes sont principalement localisées au sein de la partie centrale de l'Europe (Sud de la France, l'Est de la Suisse, l'Ouest et le nord de l'Italie) et également au Pays-Bas (Fig. 3.13). Ces régions coïncident avec la localisation des systèmes convectifs présentés sur les figures 3.2a et 3.2b.

A partir de la différence de charge en aérosols désertiques entre chacune des simulations (REF, SCAV, NOSCAV), la masse d'aérosol lessivé au-dessus de l'Europe a été évaluée. Il ressort de cette évaluation que 57 Tg ont été lessivées par les précipitations implicites alors que 18 Tg par les précipitations explicites. La masse d'aérosols désertiques lessivés au-dessus de l'Europe est ainsi égale à 75 Tg. Ainsi le mécanisme de perte d'aérosols par lessivage est 7 fois plus important que le dépôt sec.

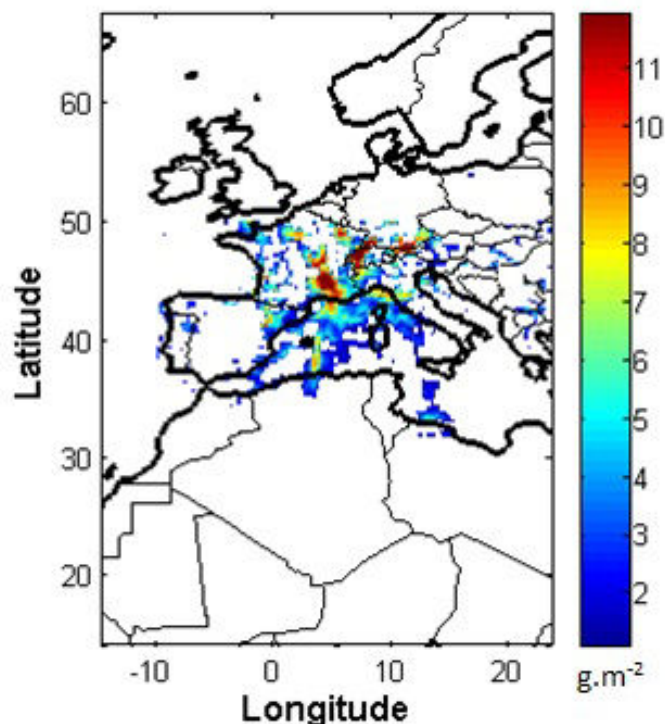


Figure 3.13 : Distribution spatiale des différences de la charge en aérosols accumulées (en $g.m^{-2}$) du 25 au 31 mai entre les simulations NOSCAV et REF (NOSCAV-REF).

L'activité convective associée au passage de ce système frontal au sein de l'Europe Centrale et du bassin méditerranéen est caractérisée par de fortes précipitations, mais aussi par une forte activité électrique. La figure 3.14 présente la localisation du nombre d'éclairs détectés durant les douze premières heures de la journée du 29 mai par les stations du réseau WWLLN. Le nombre d'éclairs détectés par ce réseau durant les douze premières heures du 29 mai est estimé à 2711. Il est intéressant de noter que cela est du même ordre de grandeur de la valeur climatologique du nombre d'éclair du mois de mai pour les Etats-Unis estimée par Orville et al (1996) à partir des observations de 1992 à 1995. Par ailleurs, l'étude climatologique de Manzato (2007) réalisée sur le bassin méditerranéen à partir de données de 1995 à 2004, révèle six évènements orageux très intenses qui s'est déroulés au cours de cette période. Ces six évènements sont caractérisés par un nombre d'éclairs supérieur à 1858 par jour. Cela souligne

ainsi le caractère intense de l'activité électrique mesurée par les stations du réseau WWLLN ce 29 mai 2008 au sein de cette région.

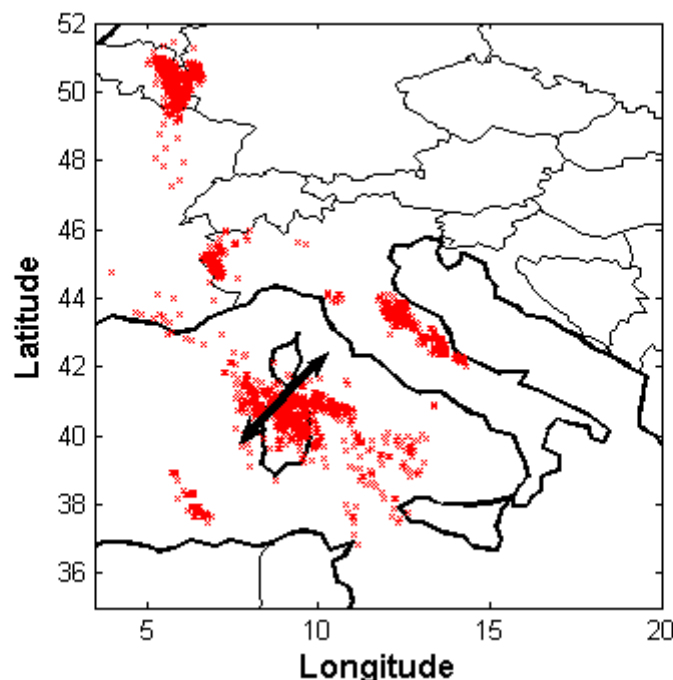


Figure 3.14 : Distribution spatiale du nombre d'éclairs détecté durant les douze premières heures par le réseau WWLLN le 29 mai 2008. Les deux doubles flèches représentent la localisation de la coupe verticale réalisée à la figure 3.15.

Les éclairs détectés par le réseau WWLLN sont essentiellement localisés au sein de l'Europe Centrale et du bassin méditerranéen (la Sardaigne, le sud de la France, la Belgique) durant le 29 mai à 1200 UTC. Il est intéressant de noter que ces régions d'activité électrique intense sont situées sur la trajectoire du panache.

La figure 3.15 présente une coupe verticale de la concentration en nombre des particules et le champ de vent vertical réalisée le 29 mai à 1200 UTC au dessus du bassin méditerranéen entre (39.5°N ; 7.5°E) et (42.5°N ; 10.5°E), à proximité de la Corse et de la Sardaigne (Fig. 3.14, double flèche noire).

Au-dessus la Corse et de la Sardaigne, où l'activité convective était plus intense, les aérosols désertiques ont été transportés jusqu'à 12-14 km d'altitude. La figure 3.15 illustre la coupe verticale de la concentration de particules en nombre et le champ de vent vertical pour le 29 mai à 1200 UTC au-dessus la Sardaigne (Fig.

3.14, double flèche noire). Ce transport d'aérosols désertiques en haute troposphère est associé à des vents verticaux importants ($15-20 \text{ m.s}^{-1}$).

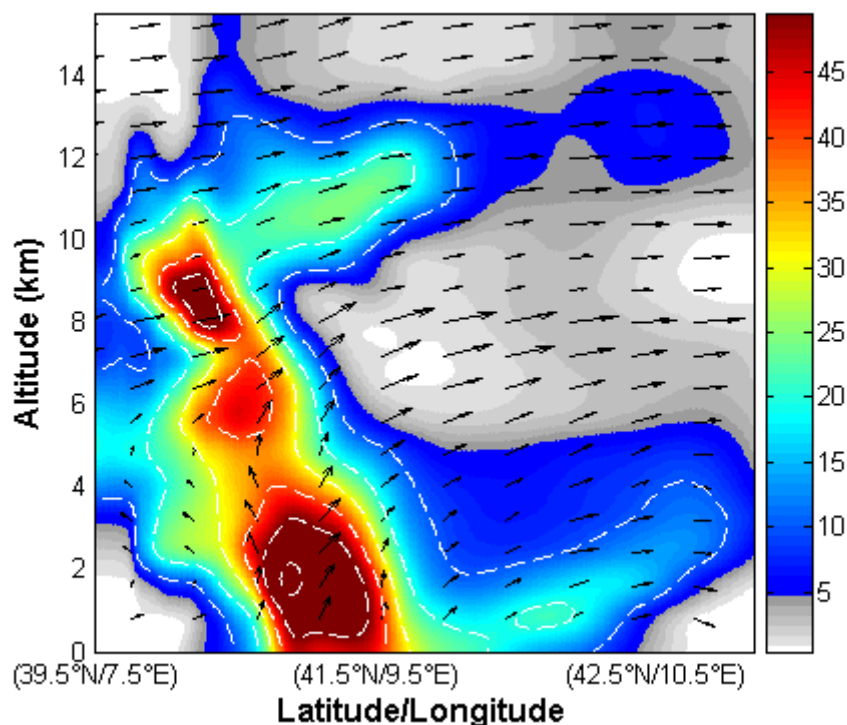


Figure 3.15 : Coupe verticale de concentration en nombre de particules (cm^{-3}) et le champ de vent vertical réalisée le 29 mai à 1200 UTC au-dessus du bassin méditerranéen entre (39.5°N ; 7.5°E) et (42.5°N ; 10.5°E) à proximité de la Corse et de la Sardaigne.

Les quantités d'aérosols désertiques transportés en altitude, sont respectivement 10 et 30 particules par centimètre cube au-dessus de l'Italie et de la Sardaigne. Ce qui représente 30 % des concentrations maximales simulées vers 2km d'altitude. Ces quantités d'aérosols transportés à ces hautes altitudes constituent des concentrations particulièrement importantes (DeMott et al., 2003 ; Tulet et al., 2010). Lors de la campagne AMMA, une forte émission d'aérosols désertiques au Niger induit par un système convectif méso-échelle a été étudiée par Tulet et al. (2010). Cette étude a mis en évidence qu'une concentration de 6 particules par centimètre cube a été transportée jusqu'à la tropopause sous l'action de la convection. Ainsi la quantité d'aérosols simulée à 12 km d'altitude au-dessus de la Sardaigne est cinq fois supérieure à la concentration rapportée

par Tulet et al (2010). Cette étude montrait pourtant que les concentrations d'aérosols désertiques en altitude étaient très élevées, de plusieurs ordres de grandeurs supérieurs à ce qui a été observé lors de la campagne Crystal-Face sur le golfe du Mexique (DeMott et al., 2003 ; Prenni et al., 2007 ; Tulet et al., 2010). Cela suggère ainsi que l'activité convective présente au sein de l'Europe Centrale et du bassin méditerranéen a contribué au lessivage des aérosols désertiques, mais également à l'injection de grande quantité d'aérosols désertiques dans la haute troposphère.

3.5 Discussion et conclusion

Ce chapitre a permis de mettre en évidence la première série de résultats de notre étude. L'objectif fut de proposer une analyse à grande échelle de cet épisode de transport d'aérosols désertiques. Les outils présentés dans le chapitre 2 ont été appliqués afin de réaliser notre analyse de la situation à grande échelle. Les simulations réalisées ont mis en évidence que le panache observé par OMI correspond effectivement à des aérosols désertiques nord africains. L'étude numérique réalisée a permis d'évaluer l'impact de l'activité convective sur les propriétés macroscopiques (localisation des sources, charge en aérosols, altitude de transport...) du panache d'aérosols désertiques. Les champs de vent simulés à 700 hPa sont en accord avec les travaux réalisés par Barkan et al. (2005) sur les conditions synoptiques caractérisant le transport des aérosols désertiques nord africains vers l'Europe (Cf. Chap. 2). Les simulations ont montré que le transport des aérosols vers l'Europe est modulé par la présence d'un système dépressionnaire s'étendant sur toute la côte ouest européenne jusqu'au nord-ouest de l'Afrique, et d'un système anticyclonique s'étendant de l'Europe de sud jusqu'au nord-est du continent africain (Fig. 3.16). L'action de ces deux systèmes ont généré un flux de sud-ouest favorisant le transport du panache vers la méditerranée. En plus de ces deux systèmes dynamiques, les conditions synoptiques de ce transport sont caractérisées par la présence d'un système anticyclonique au-dessus de l'Italie. Les résultats des simulations ont mis en évidence que l'intensité et la position de ce système anticyclonique ont favorisé le transport des aérosols désertiques vers l'Europe du Nord.

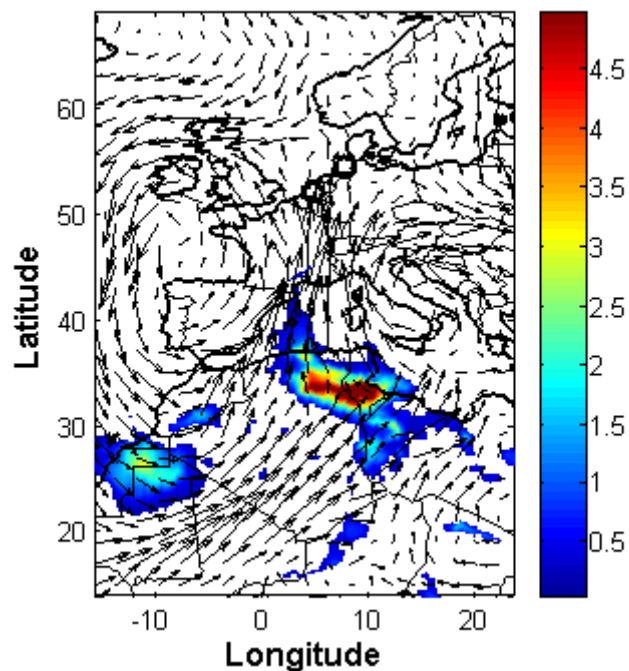


Figure 3.16 : Evolution des AOT dues aux aérosols désertiques et le champ à 700 hPa (vecteurs) issus de la simulation de référence (REF) du 25 mai 2008 à 1200 UTC.

Les simulations effectuées ont permis la réalisation du premier bilan massique de cet important épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains. Il résulte de ce bilan massique que la quantité émise représente 13% de la quantité d'aérosols désertiques émis annuellement par l'Afrique du Nord. Les aérosols désertiques produits lors de cet épisode proviennent des « Chott » tunisiens et algériens, qui constituent des sources particulièrement actives durant les mois d'avril et de mai (Prospero et al. 2002). Les résultats obtenus mettent également en évidence l'action du relief nord africain dans la formation et le transport des aérosols désertiques (Fig. 3.8 et 3.9). L'altitude du transport du panache vers l'Europe a favorisé l'interaction de celui avec les principales chaînes de montagne de l'Europe occidentale. Les simulations ont ainsi mis en évidence que les principales zones de dépôt sec des aérosols désertiques sur l'Europe sont essentiellement localisées autour des reliefs alpins et du massif central.

L'étude de sensibilité réalisée sur l'influence de l'activité convective sur la charge en aérosol du panache a révélée que 40 % de la quantité émise a été

éliminée de l'atmosphère par dépôt humide. La convection présente dans le bassin méditerranéen a également favorisé le transport d'importante concentration de particules d'aérosols en haute troposphère. La localisation de cette importante injection de particules en haute altitude coïncide avec la localisation des régions d'activité électrique importante.

DeMott et al (2003) ont mis en évidence que les aérosols désertiques génèrent d'une part une modification des propriétés microphysiques des nuages, et génère d'une autre part une augmentation de la concentration de IN (Ice Nuclei) dans la haute troposphère. De plus, Jenkis et al (2008) ont mis en évidence lors de la campagne AMMA que les aérosols désertiques peuvent intensifier l'activité électrique des cyclones tropicaux. Cela suggère que ces aérosols désertiques transportés à 12 km d'altitude ont provoqués une augmentation du nombre IN. A partir de ce constat, il est possible d'émettre l'hypothèse que cette importante activité électrique observée dans le bassin méditerranéen par le réseau WLLN peut être attribuée par l'injection de ces aérosols désertiques en haute troposphère. Sachant que le passage du panache au-dessus de l'observatoire de Taunus (Allemagne) a produit une augmentation de la concentration de IN 5 à 8 fois supérieure à la valeur habituellement observée (40 IN.L-1) au mois de mai (Klein et al., 2010). Cependant aucune mesure de la concentration de IN n'a été réalisée au sein du bassin méditerranéen afin de vérifier si le passage du panache au sein du bassin méditerranéen a produit comme en Allemagne une augmentation significative de la concentration de IN. D'Une évolution de ce travail pourrait être de coupler le schéma de dusts avec un schéma d'activation des IN. Couplé avec le schéma électrique de MesoNH (Barthe et al., 2005), il nous permettrait de vérifier l'hypothèse d'une connexion possible du panache de d'aérosols désertiques avec la forte production d'éclairs.

En conclusion de cette analyse à grande échelle de cet épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains, il ressort que l'activité convective présente en Europe Central et dans le bassin méditerranéen a eu un impact sur les propriétés macroscopique du panache d'aérosols.

Chapitre 4 : Etude du vieillissement des aérosols désertiques de l'épisode de mai 2008

4.1 Introduction

La première analyse des propriétés optiques du panache d'aérosols désertiques de l'épisode de mai 2008 a été réalisée par Pappalardo et al (2010). Cette analyse s'est appuyée sur les mesures LIDAR de CALIPSO et des stations italiennes et allemandes du réseau EARLINET. Bien que le panache ait atteint les Pays-Bas avec des AOT proches de 1, les propriétés de ces aérosols désertiques au sein de cette région n'ont pas encore été étudiées. Les mesures réalisées lors de la campagne EUCAARI-IMPACT aux Pays-Bas révèlent des caractéristiques optiques inhabituelles pour des aérosols désertiques. Alors que les caractéristiques optiques habituellement associées à la présence de ces derniers y figurent dans les mesures réalisées par Pappalardo et al (2010) au-dessus de l'Italie et de l'Allemagne. En effet, des coefficients d'Angström variant de 0 à 0.4 ont été mesurés au-dessus de ces deux régions. Ces résultats particuliers laissent présager une évolution des caractéristiques optiques du panache d'aérosol au-dessus des Pays-Bas. Il sera question dans ce chapitre d'étudier et de

discuter des causes de l'évolution des caractéristiques de ces aérosols désertiques nord africains au-dessus des Pays-Bas.

Dans une première partie ce chapitre se consacrera à l'étude des propriétés optiques du panache, et dans une deuxième, à l'analyse d'une possible influence du mélange sur les propriétés hygroscopiques du panache. Les résultats qui seront présentés au sein de cette première partie ont fait l'objet d'une publication au Journal of Geophysical Research (Cf. Annexe B).

4.2 La présence d'aérosols désertiques au-dessus des Pays-Bas

La présence des aérosols désertiques au-dessus de certaines régions, comme les Pays-Bas, n'est pas clairement mise en évidence par les observations satellitaires en raison de la présence de nuages. Cependant les mesures au sol et aéroportée réalisées aux Pays-Bas lors de la campagne EUCAARI-IMPACT fournissent des informations sur les propriétés optiques du panache au sein cette région. A partir des observations du LIDAR UV, les structures verticales des nuages et des aérosols ont été étudiées à Cabauw du 27 au 30 mai 2008. La présence d'aérosols peut être détectée par l'intermédiaire du LIDAR via, l'analyse du profile vertical d'extinction (Hamonou et al., 1999 ; Matthias et al., 2004 ; Mattis et al., 2002), et également via l'analyse du coefficient de rétrodiffusion (Gobbi et al., 2000 ; Mona et al., 2006).

La figure 4.1 décrit l'évolution du coefficient de rétrodiffusion à 353 nm du 27 au 30 mai 2008 à Cabauw. Les couches nuageuses sont identifiées par de fortes valeurs de rétrodiffusion ($> 5 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$) et également par des structures inhomogènes (Matthias et al., 2004). la présence d'aérosols désertiques au sein de la couche limite atmosphérique est caractérisée par des valeurs de $3 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$. Hamburger et al (2011) ont montré que les conditions synoptiques de la première quinzaine de mai 2008 ont conduit à une accumulation d'aérosols au sein de la couche limite atmosphérique des pays du nord de l'Europe.

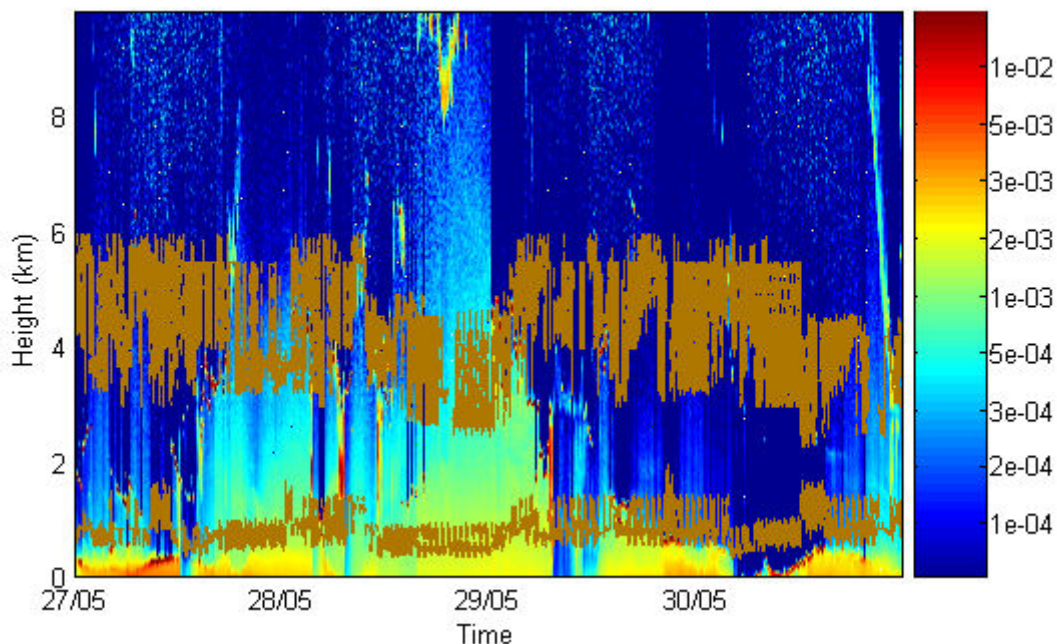


Figure 4.1 : Evolution temporelle du coefficient de rétrodiffusion ($\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$) à 353 nm à Cabauw entre le 27 et 30 mai 2008. Les traits marrons indiquent l'évolution de l'épaisseur de la couche d'aérosols désertiques.

Les valeurs de rétrodiffusion variant de $5 \cdot 10^{-4}$ à $2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{sr}^{-1}$ sont dues au panache d'aérosols désertiques. L'épaisseur de la couche d'aérosols désertiques a été évaluée en utilisant la méthode du gradient (« gradient method ») (Mattis et al, 2008 ; Mona et al., 2006 ; Papayannis et al., 2008). La base de la couche d'aérosols est détectée comme étant l'altitude la plus basse où se produit une forte augmentation de la rétrodiffusion, alors que le sommet est caractérisé comme étant l'altitude où la dérivée première du coefficient de rétrodiffusion s'annule. L'évolution de l'épaisseur de la couche d'aérosols désertiques est représentée sur la figure 4.1 (en marron). L'épaisseur de la couche d'aérosols désertiques décroît lentement à 3.4 km dans la nuit du 28 mai, ensuite augmente lentement à 3.9 km le 29 mai, et fini par décroître à 3.2 km le 30 mai. Cette figure met en évidence que la base de la couche d'aérosols désertiques est relativement constante au cours de la période d'observation. Il est cependant possible de voir tout de même une évolution de 1 km de la base durant la nuit du 28 au 29 mai. En moyenne la base et le sommet de la couche d'aérosols désertiques sont respectivement localisés à 0.9 et 4.5 km.

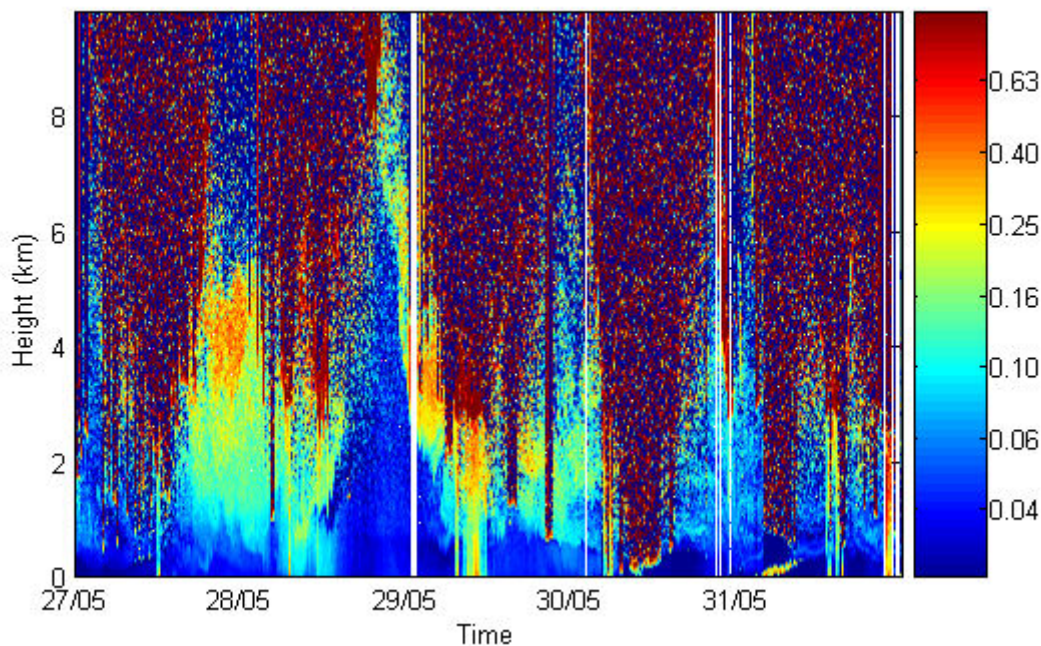


Figure 4.2 : Evolution temporelle du rapport de dépolarisation à 353 nm obtenu à partir du LIDAR UV à Cabauw du 27 au 30 mai 2008

La figure 4.2 présente l'évolution temporelle du rapport de dépolarisation obtenue avec le LIDAR UV à 353 nm du 27 au 30 mai 2008 à Cabauw. Les valeurs caractérisant la présence d'aérosols désertiques à 353 nm varient de 0.2 à 0.3 (Gobbi et al., 2000 ; Papayannis et al., 2008). La présence d'aérosols désertiques est ainsi localisée entre 3 et 4.3 km au cours de la nuit 27 mai (Fig. 5.2). Les valeurs du rapport de dépolarisation comprises entre 0 et 0.2, localisées entre 0.5 et 1.8 km, indiquent la possibilité de mélange entre les aérosols désertiques et des particules de pollution (Papayannis et al., 2008). Durant la journée du 29 mai, des aérosols désertiques sont également localisés à 0.5 km d'altitude. Il est intéressant de noter que la couche d'aérosols désertiques est masquée par la présence des nuages, caractérisés par des valeurs de rapport de dépolarisation supérieures à 0.6. En conséquence, la couche d'aérosols désertiques n'est plus visible sur la dépolarisation UV, et tout particulièrement lors de l'après-midi du 29 mai (figure 4.2). Néanmoins, malgré cette perturbation occasionnée par les conditions météorologiques, les valeurs du rapport de dépolarisation confirme la présence d'aérosols désertiques aux Pays-Bas, et

également la possibilité de processus de mélange entre les aérosols désertiques et les aérosols de pollution.

4.3 Evolution des propriétés optiques par lessivage

4.3.1 Les propriétés optiques du panache d'aérosols désertiques

La figure 4.3 présente l'évolution temporelle des AOT observées à 440 nm et du coefficient d'Angström calculé pour l'intervalle 440-870 nm à Cabauw entre le 28 et 31 mai 2008. Aucune mesure n'a été réalisée le 29 mai en raison de la présence de nuages. Les AOT sont inférieures à 0.4 uniquement dans l'après-midi du 28 mai, sinon celles-ci varient de 0.5 à 1, avec la valeur maximale observée le 31 mai. Ces valeurs sont deux fois supérieures aux valeurs moyennes (0.29) et médianes (0.25) habituellement observées à Cabauw (Schaap et al., 2009). Cela suggère ainsi une charge d'aérosols beaucoup plus importante que d'habitude au-dessus de Cabauw durant la période du 28 au 31 mai 2008.

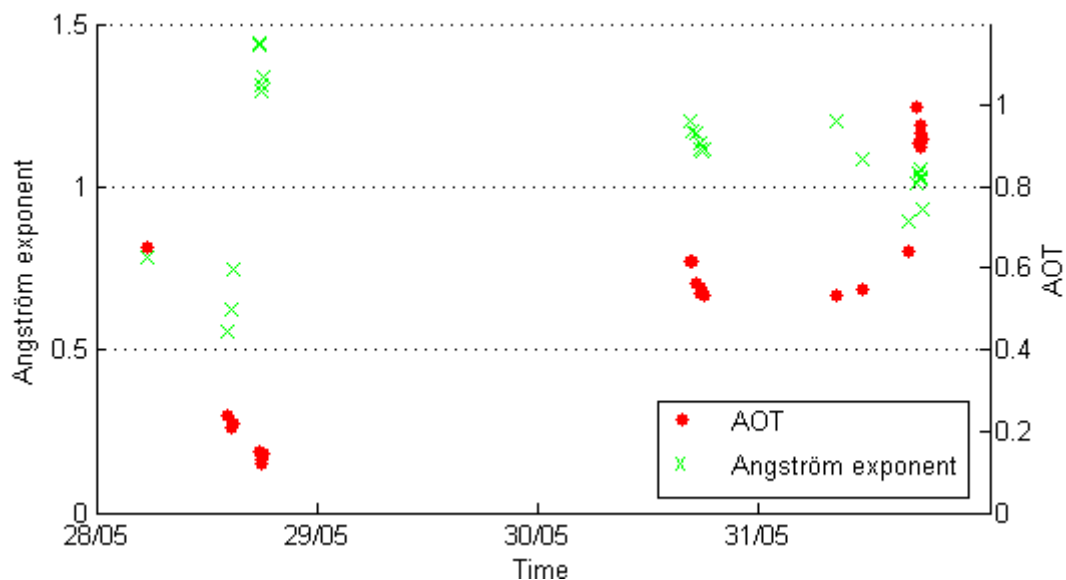


Figure 4.3 : Evolution temporelle des AOT observées à 440 nm (points rouges) et du coefficient d'Angström calculé pour l'intervalle 440-870 nm (croix verte) à Cabauw entre le 28 et 31 mai 2008.

Malgré la présence d'aérosols désertiques, les valeurs du coefficient d'Angström diffèrent des valeurs habituellement mesurées en présence d'aérosols désertiques. En effet, les valeurs du coefficient obtenues à Cabauw varient de 0.5 à 1.5 (Fig. 4.3), ce qui est supérieures aux valeurs habituellement mesurées en présence d'aérosols désertiques (Ansmann et al., 2003, 2011 ; Collaud Coen et al., 2004 ; Eck et al., 1999 ; Hamonou et al., 1999 ; Muller et al., 2003 ; Pappalardo et al., 2010). Il est intéressant de noter que les valeurs du coefficient d'Angström obtenues par Pappalardo et al (2010) pour le même panache d'aérosols au-dessus de l'Italie et de l'Allemagne sont inférieures à 0.5, ce qui est habituellement observé en présence d'aérosols désertiques (Ansmann et al., 2003, 2011). Les valeurs du coefficient d'Angström à Cabauw suggèrent ainsi une prédominance de particules submicroniques, dont l'extinction varie plus nettement entre les longueurs d'onde 440 et 870 nm.

La figure 4.4 présente l'évolution du coefficient de diffusion mesuré par le néphélomètre, embarqué à bord de l'ATR-42, le 30 mai 2008 de 1350 UTC à 1405 UTC (en trait plein). Ces mesures ont été réalisées au-dessus d'un domaine allant de 51.97°N à 51.88°N de latitude, et 6.05°E à 4.99°E de longitude. Le néphélomètre a mesuré le coefficient de diffusion suivant trois longueurs d'onde (450, 550 et 700 nm), et les valeurs obtenues varient de 0.01 à 0.08 km⁻¹ entre 0.6 et 2.6 km (Fig. 4.4). Le coefficient de diffusion augmente et atteint sa valeur maximale (0.05-0.08 km⁻¹) entre 1.8 et 2.5 km de 1350 UTC à 1355 UTC, et décroît aussitôt après à 0.01 km⁻¹ à 0.6 km. De plus, le coefficient de diffusion décroît fortement avec la longueur d'onde de 1350 UTC à 1355 UTC, ce qui diffère des résultats de Collaud Coen et al. (2004). Lors de l'étude d'un épisode de transport d'aérosols désertiques saharien au-dessus de Jungfraujoch, Collaud Coen et al. (2004) ont mis en évidence qu'en présence d'aérosols désertiques le coefficient de diffusion est indépendant de la longueur d'onde du fait que les propriétés optiques de ces derniers sont caractérisées par leur mode grossier.

Il est possible de voir que cette dépendance spectrale se produit uniquement entre 1.4 et 2.5 km d'altitude (Fig. 4.4). Ainsi, cela met en évidence le caractère particulier de cette masse d'air traversée par l'ATR-42 lors de sa phase descente entre 1350 et 1355 UTC. Cette dépendance spectrale observée aux Pays-Bas

suggère une évolution des propriétés physico-chimiques des aérosols désertiques et de leurs distributions en taille (Israelevich et al., 2003). En effet, l'amplitude de la dépendance spectrale dépend de la taille, de la forme et de la composition chimique des particules (Ackermann, 1998). Cette dépendance spectrale obtenue avec le néphélomètre révèle une prédominance des particules fines (rayon < 0.1 μ m). Collaud Coen et al (2004) ont montré que les particules du mode fin produisent une décroissance plus importante du coefficient de diffusion avec la longueur d'onde que les particules du mode grossier.

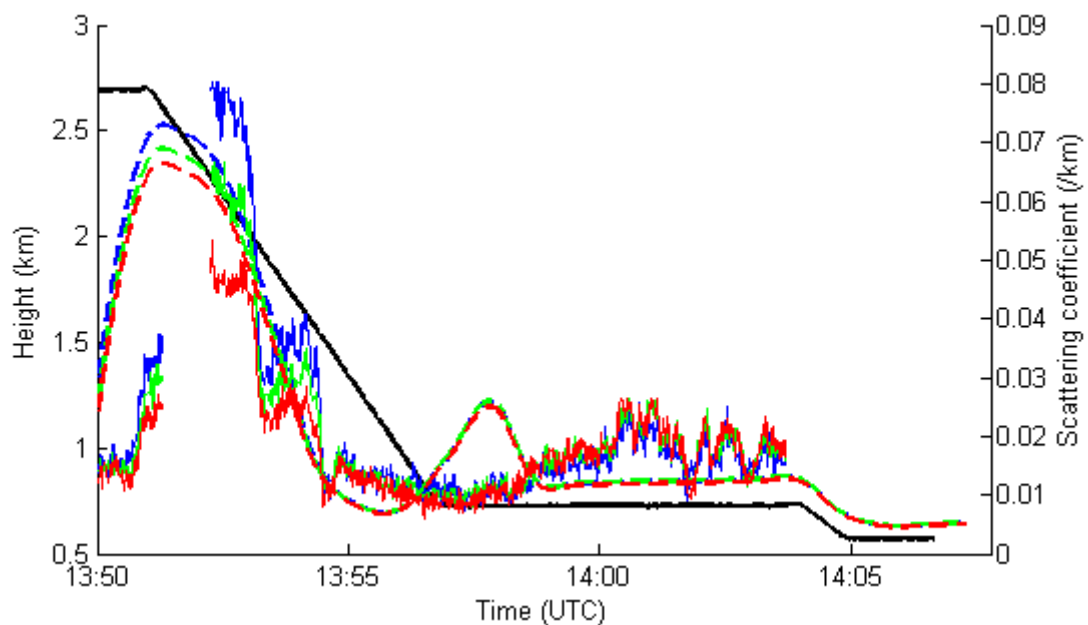


Figure 4.4 : Evolution du coefficient de diffusion mesuré avec le néphélomètre (trait plein) et simulée par la simulation de référence (REF) au-dessus des Pays-Bas entre 1350 UTC et 1410 UTC le 30 mai 2008. Le trait noir représente les paliers de vol de l'ATR-42.

Ainsi les valeurs inhabituelles de coefficient d'Angström et la présence d'une forte dépendance spectrale dans les mesures du coefficient de diffusion ne remettent pas en cause la présence d'aérosols désertiques aux Pays-Bas mais suggèrent une prédominance de particules de petites tailles. D'après les conditions météorologiques décrites au chapitre 3, cette évolution des caractéristiques optiques des aérosols désertiques peuvent s'expliquer comme étant la conséquence d'une efficacité de lessivage plus importante du mode grossier des aérosols désertiques au cours de leur transport vers les Pays-Bas. De

plus, Balis et al (2004) ont mis en évidence que les caractéristiques optiques des aérosols désertiques peuvent être modifiées quand ces derniers sont mélangés à d'autres types d'aérosols. Comme cela fut mentionné au chapitre 3, la modélisation de l'évolution des AOT à Cabauw est bien reproduite par Méso-NH. C'est donc dans la continuité de l'exploitation des simulations présentées au chapitre 3 que repose notre analyse des deux hypothèses énoncées précédemment. Il est intéressant de rappeler que les simulations réalisées ne tiennent compte uniquement que des aérosols désertiques.

L'évolution du coefficient de diffusion a été simulée par Méso-NH en suivant les mêmes conditions (paliers de vol, localisation géographique, durée de vol...) de vol de l'ATR-42 (Fig. 4.4, en pointillé). La figure 4.4 met ainsi en évidence que la modélisation de l'évolution du coefficient de diffusion par le modèle est en accord avec celle observée. La valeur maximale (0.07 km^{-1}) simulée à 450 nm est obtenue entre 1350 UTC et 1355 UTC. Néanmoins, la dépendance spectrale est insuffisamment reproduite par le modèle (Fig. 4.4). Cette divergence entre le modèle et les observations suggère que le vieillissement des aérosols désertiques n'est pas suffisamment pris en compte par le modèle. Tout particulièrement, cela suggère que les indices de réfraction déterminés à partir des mesures réalisées en Afrique du Nord lors de la campagne AMMA (Mallet et al., 2009 ; Tulet et al., 2008) ne permettent pas de prendre en compte suffisamment le vieillissement des aérosols désertiques. En effet, les études révèlent qu'à proximité des régions sources les propriétés optiques des aérosols désertiques sont caractérisées majoritairement par les particules du mode grossier (Kubilay et al., 2003 ; McConnell et al., 2008 ; Petzold et al., 2009). Afin d'améliorer la modélisation du coefficient de diffusion, de nouveaux indices de réfraction ont été introduits dans le modèle. La valeur des nouveaux indices de réfraction sont $1.470 - 1.399 \cdot 10^{-3}i$ pour l'intervalle 440-690 nm, et $1.453 - 1.32 \cdot 10^{-3}i$ pour l'intervalle 690-1190 nm. Ces nouveaux indices de réfraction résultent des inversions des mesures photométriques de la station de Lecce (Dubovik et al., 2000 ; Kim et al., 2011). La station de Lecce a été sélectionnée car elle est à la fois suffisamment proche des régions sources (Algérie, Tunisie, Libye), pour qu'on puisse conserver les caractéristiques des aérosols désertiques, et à la fois suffisamment éloignée des régions sources pour une meilleure prise en considération du

vieillissement des aérosols désertiques par le modèle. Il est intéressant de noter que les valeurs de la partie imaginaire de ces nouveaux indices sont en accord avec ceux déterminée lors de la campagne SAMUM (Petzold et al., 2009).

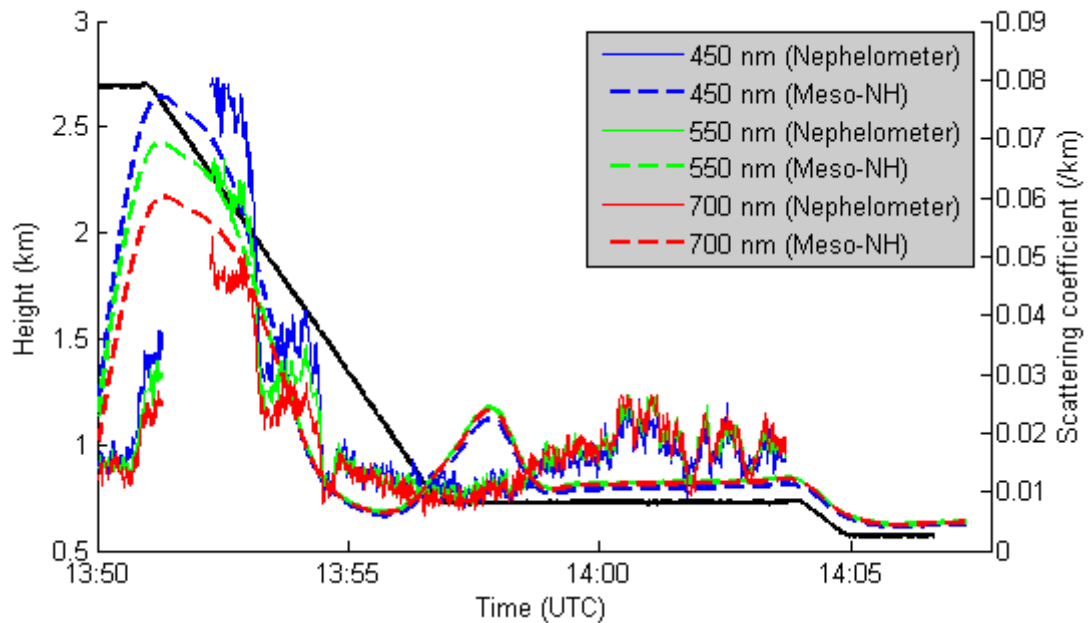


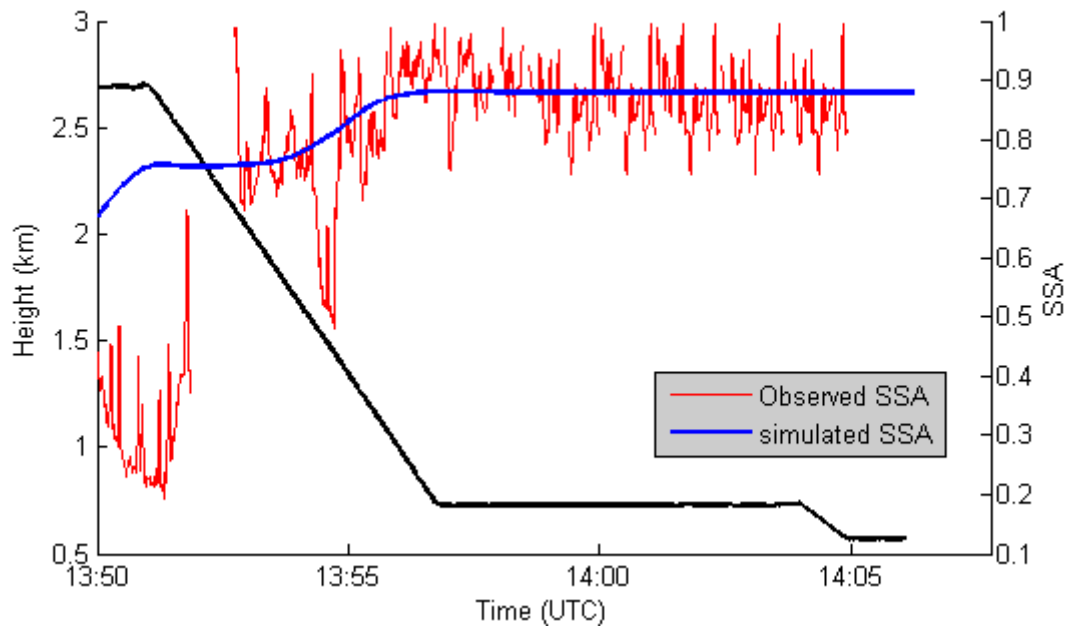
Figure 4.5 : Evolution du coefficient de diffusion mesuré avec le néphélomètre (trait plein) et simulée en utilisant les nouveaux indices de réfraction au-dessus des Pays-Bas entre 1350 UTC et 1410 UTC le 30 mai 2008. Le trait noir représente les paliers de vol de l'ATR-42.

L'évolution du coefficient de diffusion a été simulée en utilisant ces nouveaux indices de réfraction (Fig. 4.5, en pointillé). La nouvelle simulation reproduit correctement l'évolution du coefficient de diffusion au-dessus des Pays-Bas le 30 mai 2008 entre 1350 UTC et 1410 UTC. En particulier, la dépendance spectrale est cette fois mieux reproduite par Mésos-NH. De plus, il est possible de voir que la zone de dépendance et de non dépendance sont bien localisées (Fig. 4.5). Néanmoins, au sein de cette zone de dépendance le maximum de coefficient de diffusion à 700 nm est surestimé de 0.01 km^{-1} par le modèle.

L'albédo de simple diffusion (SSA) à 550 nm a été obtenu à partir des mesures du néphélomètre et du PSAP (Particle Soot Absorption Photometer, Bond et al., 1999) embarqués à bord de l'ATR-42. La figure 4.6a présente l'évolution du SSA à 550 nm le 30 mai de 1350 UTC à 1410 UTC. Les valeurs de SSA varient de 0.20 à 0.98 entre 0.6 et 2.6 km. Le SSA augmente et atteint sa valeur maximale

(0.98) à 2.4 km de 1350 UTC à 1355 UTC, et décroît ensuite rapidement à 0.70 à 2 km. Entre 0.6 et 1.5 km, le SSA augmente rapidement et reste constant à 0.90.

a)



b)

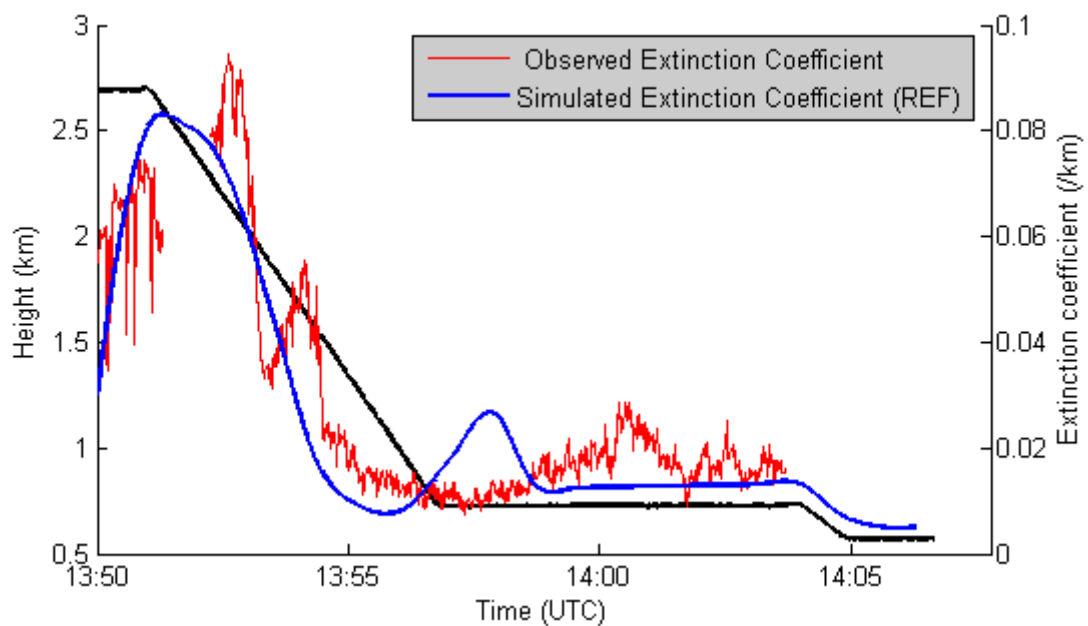


Figure 4.6 : Evolution (a) du SSA et (b) du coefficient d'extinction simulées à 550 nm (trait bleu) et observés à 550 nm (trait rouge) le 30 mai 2008 de 1350 UTC à 1410 UTC au-dessus des Pays-Bas à proximité de Cabauw entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.81°N ; 5.06°E). Le trait représente les paliers de vol de l'ATR-42.

Les valeurs de SSA localisées entre 0.6 et 2 km, indiquent la présence d'aérosols désertiques (El-Metwally et al., 2008 ; Kubilay et al., 2003 ; McConnell et al., 2008). Les très faibles valeurs de SSA (0.2-0.4) observées à 2.6 km indiquent la présence de particules très absorbantes, comme le carbone suie. Des valeurs de SSA inférieur à 0.4 sont tout de même sujette à interrogation, car même en milieu urbain pollué on observe rarement des SSA inférieur à 0.5 (Gomes et al., 2008). La figure 4.6a présente également l'évolution du SSA simulée par Méso-NH le 30 mai de 1350 UTC à 1410 UTC (trait bleu). L'évolution du SSA simulée est en accord avec les observations. Les valeurs de SSA simulée varient de 0.69 à 0.89, avec la valeur maximale simulée entre 1355 UTC et 1410 UTC. Le modèle ne retrouve pas les très faibles valeurs de SSA observé à 2,5 km d'altitude, mais simule tout de même une diminution de son SSA à 0.65. La divergence observée entre le modèle et les observations peut être attribuée au fait que la simulation est réalisée en tenant compte uniquement des aérosols désertiques.

Le coefficient d'extinction à 550 nm a été également obtenu à partir des mesures du néphélomètre et du PSAP embarqués à bord de l'ATR-42. La figure 5.6b présente l'évolution du coefficient d'extinction à 550 nm le 30 mai de 1350 UTC à 1410 UTC. Les valeurs varient de 0.02 à 0.09 km⁻¹ entre 0.6 et 2.6 km. Le coefficient d'extinction augmente et atteint sa valeur maximale (0.09 km⁻¹) entre 2 et 2.5 km de 1350 UTC à 1355 UTC, et décroît ensuite rapidement à 0.02 km⁻¹ à 0.6 km. La figure 4.6b présente également l'évolution du coefficient d'extinction simulée par le modèle pour la période (trait bleu). La simulation du coefficient d'extinction est accord avec les observations. Les valeurs simulées varient de 0.01 à 0.08 km⁻¹, avec le maximum simulé entre 1350 UTC et 1355 UTC. Le fait que l'évolution de l'extinction soit bien reproduite par le modèle révèle que cette évolution est due à la présence aérosols désertiques.

Une coupe verticale de l'extinction le long de la trajectoire suivie par l'ATR-42 le 30 mai de 1350 UTC à 1410 UTC a été réalisée (Figure 4.7). Au sein de cette coupe verticale, deux couches d'aérosols désertiques sont présentes et séparées par une zone de valeur de coefficient d'extinction plus faible (< 0.04 km⁻¹). Cette zone de faible valeur peut être attribuée à une zone de lessivage d'aérosols désertiques. La première couche d'aérosols désertiques est située entre 2.5 et 5.2

km avec un maximum (0.09 km^{-1}) situé à 3.2 km. La seconde couche d'aérosols désertiques est localisée entre 0.8 et 1.5 km, laquelle est séparée en deux par une zone de faible valeur de coefficient d'extinction ($< 0.03 \text{ km}^{-1}$). La première partie de cette deuxième couche d'aérosols désertiques est localisée entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.91°N ; 5.53°E) avec des valeurs maximales de 0.08 km^{-1} située à 1 km. Une troisième couche localisée entre (51.85°N ; 5.22°E) et (51.81°N ; 5.06°E) avec un maximum de 0.07 km^{-1} situé à 1 km, pourrait correspondre à la partie aval de la deuxième couche. Au dessus de certaines régions, tout particulièrement entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.91°N ; 5.53°E), les aérosols désertiques sont proches de la surface, avec des valeurs de 0.06 km^{-1} . Cela suggère ainsi la possibilité des processus de mélange entre les aérosols désertiques et des sources anthropiques de pollution, générées localement où transportées depuis des régions éloignées.

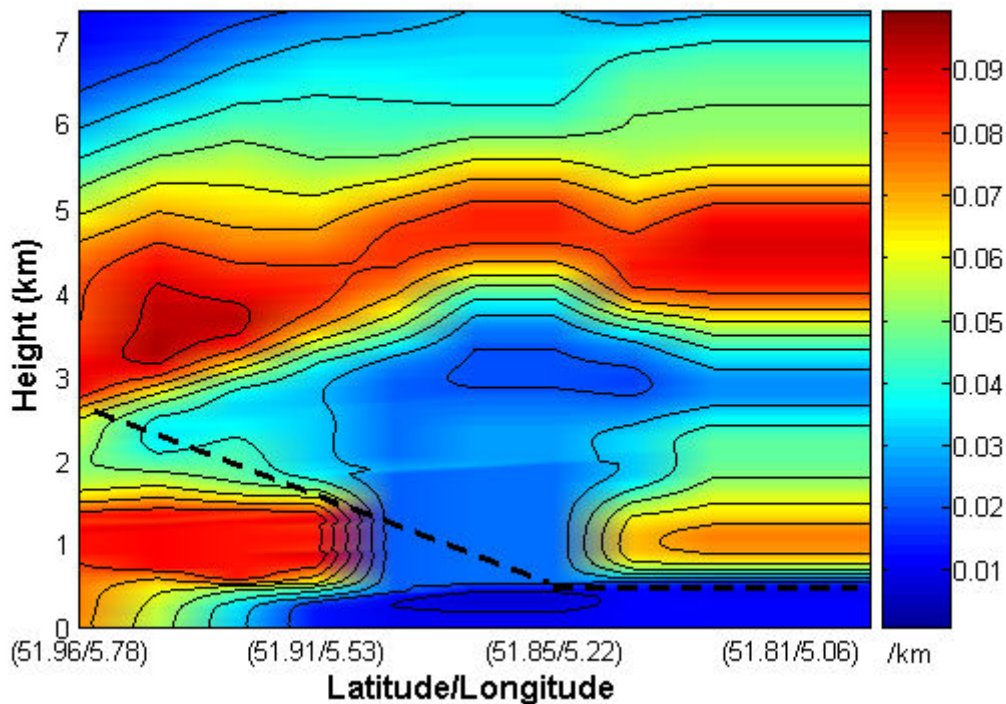


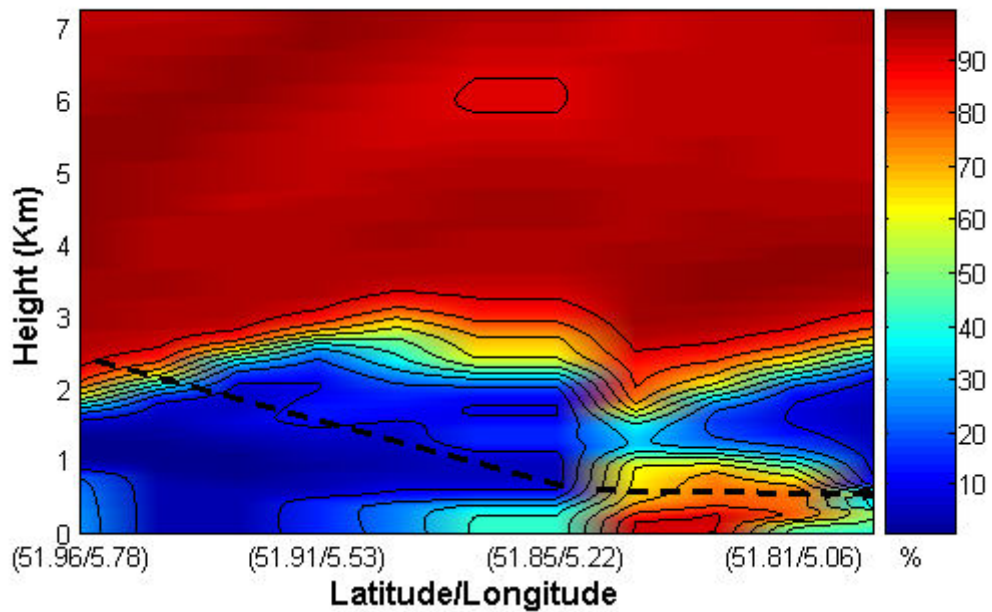
Figure 4.7 : Coupe verticale du coefficient d'extinction du 30 mai 2008 aux Pays-Bas entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.81°N ; 5.06°E) obtenue à partir de la simulation REF. Le trait représente le palier de vol de l'ATR-42.

La contribution du mode grossier et du mode d'accumulation sur l'extinction totale a été analysée au sein de la même région à partir de la simulation de

référence REF (Fig. 4.8a et 4.8b). La contribution de chaque mode est définie comme étant le rapport entre l'extinction obtenue pour chaque mode et l'extinction totale. Les simulations numériques montrent que plus 80% de l'extinction au-dessus de 2.5 km est due au mode grossier (Fig. 4.8a). En dessous de 2.5 km, l'extinction est principalement due au mode d'accumulation (70%), particulièrement entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.85°N ; 5.22°E). Ainsi le large pic d'extinction observé entre 1350 UTC et 1355 UTC se produit dans une région où 80% de l'extinction est due aux aérosols désertiques du mode d'accumulation (Fig. 4.8b). On observe aussi sur la figure 4.8a qu'une couche en surface d'un kilomètre d'épaisseur présente une dominante locale (75%) du mode grossier entre (51.88°N ; 5.22°E) et (51.81°N ; 5.06°E) . On retrouve ainsi la zone de dépendance spectrale de l'extinction lors de la descente de l'ATR dans la couche dominée par le mode d'accumulation, puis la zone sans dépendance spectrale observée dans la couche de surface dominé par le mode grossier. Cette variabilité dimensionnelle entre le mode grossier et d'accumulation suggère que le panache d'aérosols désertiques a subi un filtrage dimensionnel au cours de son transport. Compte tenu des interactions du panache avec différents système convectifs au-dessus de la Méditerranée et de l'Italie, ce filtrage dimensionnel peut en première approximation être attribué au lessivage du mode grossier.

Cependant, d'autres processus physiques peuvent modifier substantiellement les propriétés optiques des aérosols. Balis et al (2004) ont mis en évidence que les processus de mélange peuvent induire des modifications des caractéristiques optiques des aérosols désertiques. En s'appuyant sur les concentrations de BC et de CCN reportées par Hamburger et al (2011) pour la région européenne, des processus de mélange entre ces aérosols désertiques nord africains et des particules d'origine anthropiques ont très probablement eu lieu au cours de leur transport vers les Pays-Bas. Ainsi, il ne peut être ignorée la possible influence de ces mélanges sur l'évolution des caractéristiques optiques de ces aérosols désertiques. Ces deux hypothèses d'évolution des propriétés optiques seront étudiées dans les parties suivantes.

a)



b)

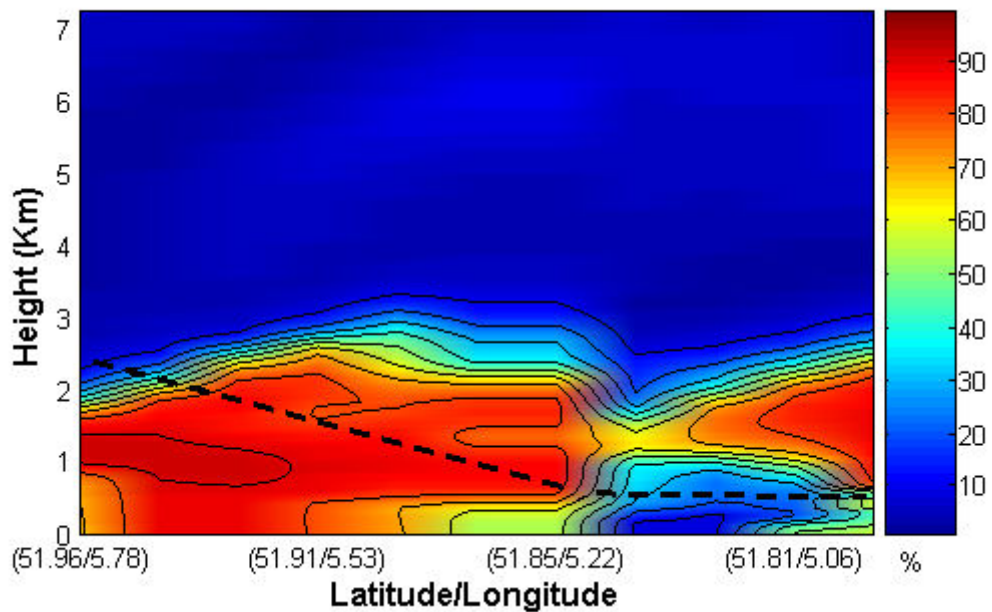


Figure 4.8 : Contribution (en %) (a) du mode grossier et (b) du mode d'accumulation sur l'extinction du 30 mai 2008 au Pays-Bas entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.81°N ; 5.06°E) calculée à partir de la simulation REF.

4.3.2 Mise en évidence d'un filtrage dimensionnel

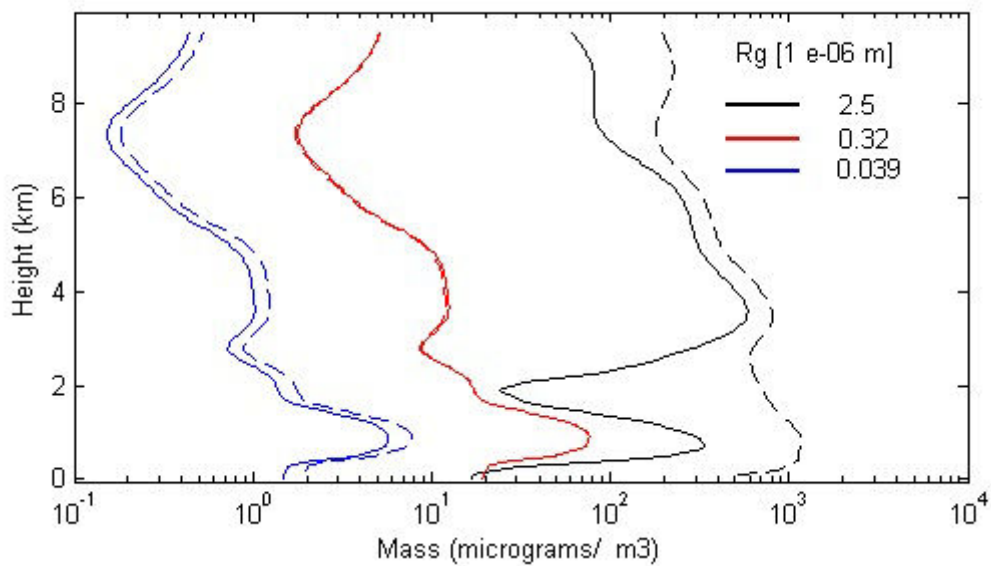
Les profils de concentration massique et en nombre de particules pour chacun des modes de Méso-NH ont été réalisés pour le 30 mai 2008 à 1400 UTC (Fig. 5.9). La figure 4.9 présente les profils de concentration provenant de la simulation de référence (REF, en trait plein) et NOSCAV (en pointillé) (Cf. Chapitre 3).

Les profils de concentration du mode d'accumulation (rayon médian = 0.32 μm) sont identiques pour les simulations REF et NOSCAV (Fig. 4.9a et 4.9b). Cela révèle que les particules du mode d'accumulation sont très peu affectées par le processus de lessivage. Cela peut s'expliquer par le fait que les particules sont trop grosses pour être collectées par diffusion brownienne et trop fines pour être collectées par processus inertiel. L'efficacité de collection est inférieure à 10^{-3} pour les particules du mode d'accumulation alors que pour le mode grossier (rayon médian = 2.5 μm) l'efficacité de collection est proche de 1.

Les différences entre les profils de REF et de NOSCAV pour le mode fin (rayon médian = 0.039 μm) sont faibles (collectées par diffusion brownien). Ces figures mettent en évidence que la concentration du mode grossier a été particulièrement affectée par le processus de lessivage alors que la concentration des deux modes des particules submicroniques a été pratiquement préservée.

Les précipitations ont légèrement diminué la concentration du mode grossier au-dessus de 4 km, de 700 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ à 500 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Cependant cette diminution est plus significative en dessous de 4 km (Fig. 4.9). En effet, en dessous de 4 km, la concentration du mode grossier est réduite de 1100 à 380 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ à proximité de la surface, et de 600 à 50 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ à 2 km. Les résultats révèlent que 85% de la quantité d'aérosols désertiques lessivés sont dues au mode grossier. Comme le décrit la figure 5.9b, la concentration en nombre des deux modes submicroniques sont supérieures à celui du mode grossier. En effet, à 1 km d'altitude, les concentrations en nombre du mode d'accumulation et du mode fin sont respectivement de $5 \cdot 10^7$ et $2 \cdot 10^9$ particules par mètre cube, alors que la concentration en nombre du mode grossier est de $5.5 \cdot 10^5$ particules par mètre cube.

a)



b)

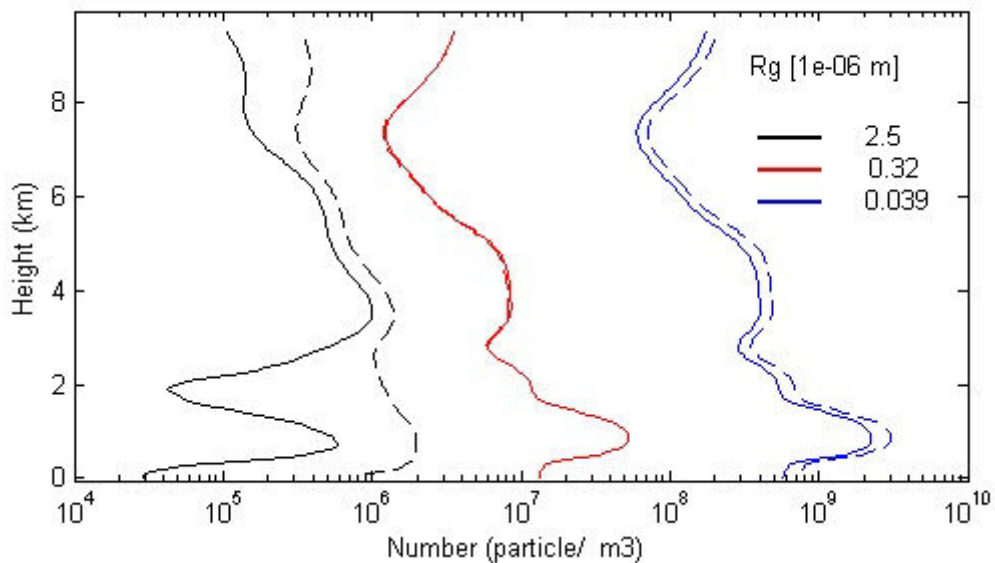


Figure 4.9 : Profils verticaux de (a) concentration en masse ($g.m^{-3}$) et (b) en nombre de particules (m^{-3}) à Cabauw le 30 mai 2008 à 1400 UTC obtenus à partir de la simulation REF (trait plein) et NOSCAV (en pointillé). Les concentrations sont calculées pour les trois modes d'aérosols désertiques de Méso-NH ayant des rayons médians de 0.039 m (bleu), 0.32 m (rouge) et 2.5 m (noir)

Il est intéressant de noter que l'intervalle d'altitude où le mode grossier est significativement lessivé (0-2.5 km) coïncide avec le domaine d'altitude où la dépendance spectrale est observée à proximité de Cabauw.

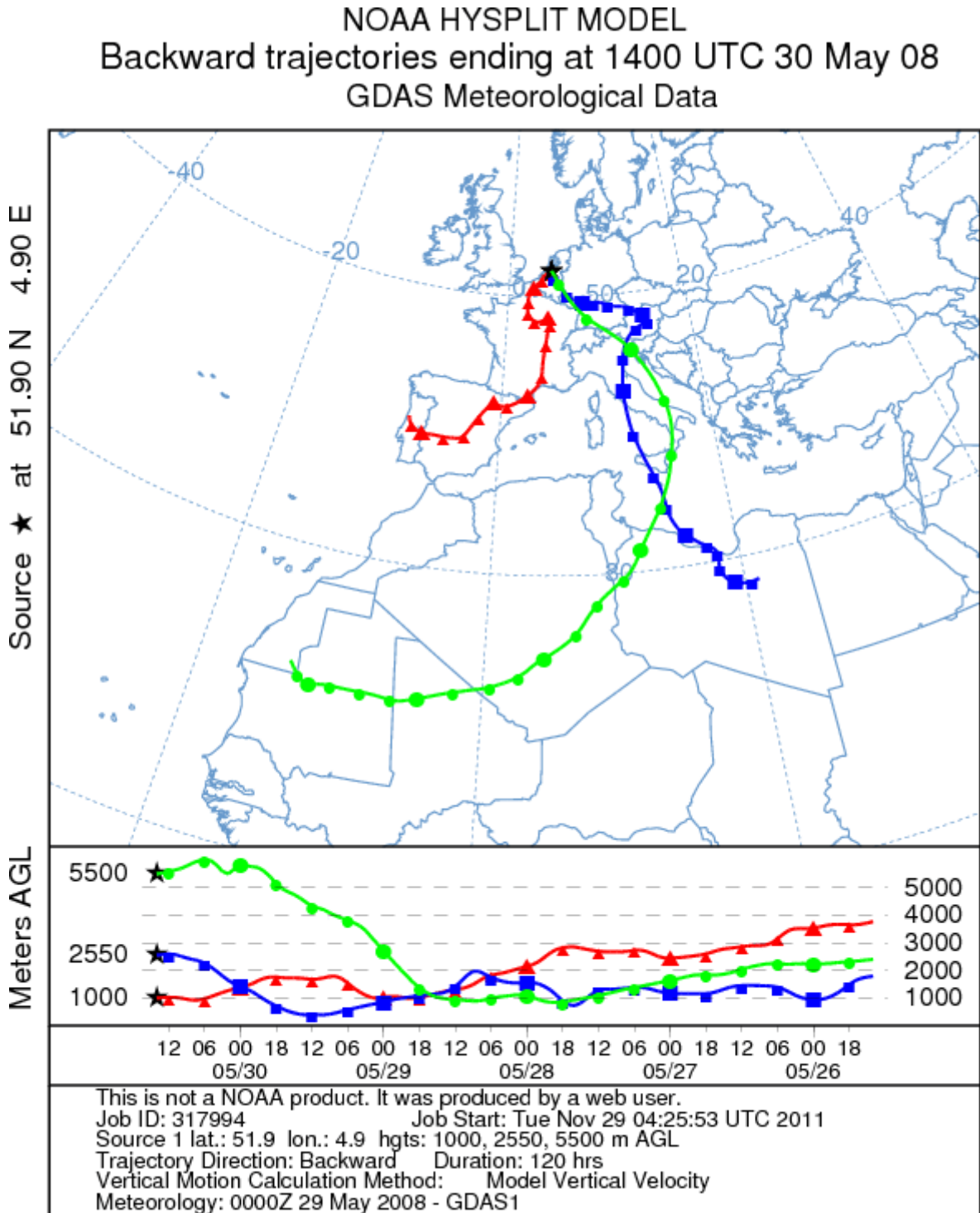


Figure 4.10 : Rétrojectoire calculée sur cinq jours à partir du 30 mai 2008 à 1400 UTC par le modèle HYSPLIT à 5500 m (vert), 2550 m (bleu) et à 1000 m (rouge).

Afin de vérifier l'origine des masses d'air observé le 30 mai 2008 à Cabauw à 1400 UTC des calculs de rétrotrajectoires ont été réalisées. La figure 4.10 présente les résultats de ces calculs de rétrotrajectoires réalisés sur cinq jours avec le modèle HYSPLIT (Draxler and Rolph, 2003) pour trois niveaux d'altitude différents (5500, 2550 et 1000 m). La couche située à 1 km au-dessus de Cabauw n'a pas une origine désertique, et provient de l'Espagne. Cependant la position verticale de cette couche permet la mise en contact avec la couche limite de mélange au-dessus de la France, sur la Belgique et sur les Pays-Bas. Cette couche a du ainsi être affectée par la pollution anthropique. Les masses d'air localisées à 2550 et 5500 mètres au-dessus de Cabauw à 1400UTC proviennent des régions désertiques de l'Afrique du Nord (Libye, Algérie, Tunisie, Mali, Mauritanie). Cela confirme la présence d'aérosols désertiques à Cabauw le 30 mai à 1400 UTC entre 2550 et 5500 m. Il est intéressant de noter que l'origine des masses d'air déterminée par HYSPLIT est en accord avec les régions sources estimées au chapitre 3 par l'intermédiaire de la simulation de référence (REF).

La figure 4.10 révèle que la masse d'air localisée à 2550 m au-dessus de Cabauw était située au-dessus de l'Italie de 28 mai entre 1 et 2 km. Cette masse d'air s'est déplacée entre l'Allemagne et la Suisse, puis au-dessus de l'Autriche le 29 mai. Au sein de ces régions, des précipitations de 30 mm ont été observées par TRMM au cours de la journée du 29 mai (Fig. 3.2). Le 30 mai, cette masse d'air arrive au-dessus de Cabauw à 2550 m en passant par le nord-ouest de la France, où des précipitations de 20 mm ont été observées par TRMM (Fig. 3.7). Cette figure révèle également que la masse d'air localisée à 5500 m au-dessus de Cabauw était positionnée le 29 mai au-dessus de l'Afrique du Nord ; cette couche a donc été épargnée par les précipitations. Le 30 mai, cette masse d'air est localisée à 5500 m au-dessus de Cabauw en passant par le nord-ouest de la France. Il ressort de cette figure que la masse d'air localisée à 2550 m au-dessus de Cabauw a été plus à sujet à être lessivées, de part la trajectoire suivie par celle-ci, que la masse d'air localisée à 5500 m. Cela corrobore ainsi les résultats présentés à la figure 4.9, c'est-à-dire que les aérosols désertiques situés en dessous de 4 km au-dessus de Cabauw le 30 mai à 1400 UTC ont été plus affectés par les processus de lessivage que ceux situés au-dessus de 4 km.

L'absence des caractéristiques optiques habituellement associées aux aérosols désertiques dans les données résulte ainsi du fait que les propriétés optiques de ces derniers ne sont plus caractérisées majoritairement par leur mode grossier, comme c'est le cas à proximité des sources.

4.3 Influence possible du mélange sur l'évolution des propriétés hygroscopiques du panache d'aérosols désertiques

La figure 4.11 présente la concentration de CCN mesurée du 25 au 31 mai 2008 à Cabauw pour des niveaux de sursaturation allant de 0.10 à 0.63. Les concentrations de CCN mesurées pour cette période varient de 1500 à 14 000 particules par centimètre cube (Fig. 4.11). Les concentrations de CCN mesurées sont quasi constantes pour chaque niveau de sursaturation (2000-3700 cm^{-3}) du 25 au 29 mai 2008. A partir de la mi-journée du 29 mai, la concentration de CCN commence à croître et atteint rapidement sa valeur maximale (4000-14 000 cm^{-3}) le 30 mai à 1400 UTC, et décroît jusqu'au 31 mai à 0900 UTC et se stabilise ensuite pour chaque niveau de sursaturation (2000-6000 cm^{-3}).

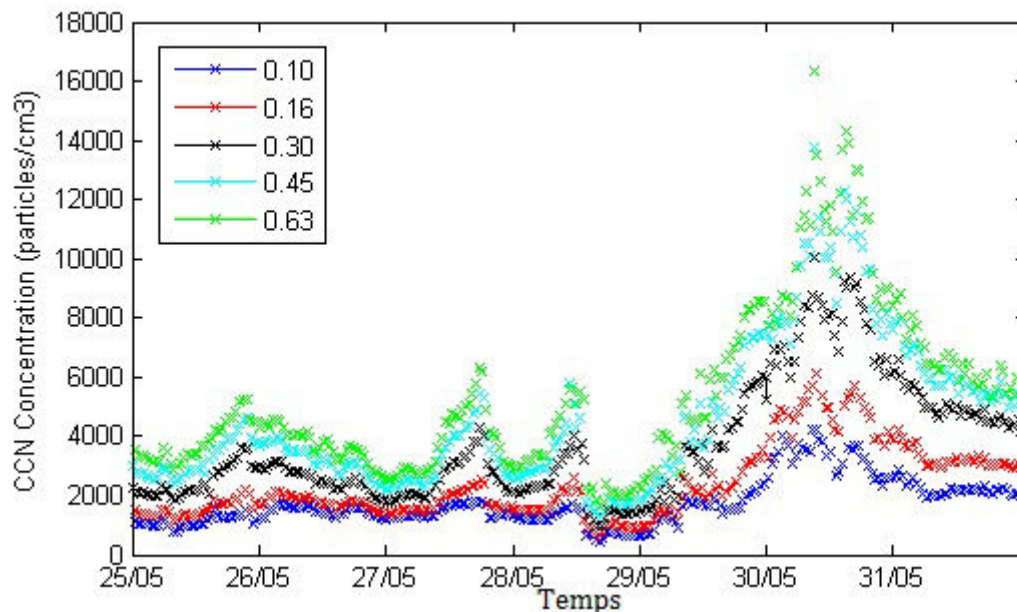


Figure 4.11 : Evolution de la concentration en nombre de CCN (en cm^{-3}) pour cinq niveaux de sursaturation à Cabauw du 25 au 31 mai 2008

La concomitance de ce pic de CCN et la présence d'aérosols désertiques à Cabauw le 30 mai, laisse à penser que cette augmentation soudaine est due à la présence de ces aérosols désertiques. Levin et al (1996) ont mis en évidence que les aérosols désertiques peuvent agir sur la formation nuageuse en tant que CCN, après interaction avec des masses d'air urbaines. En effet, au cours de ces interactions avec des masses d'air urbaines, les aérosols désertiques peuvent être entourés d'une pellicule de sulfate, de nitrate ou autres sels solubles leurs permettant d'agir en tant que CCN. Zhuang et al (1999) ont montré que la présence de sulfate et de nitrate dans les aérosols était sensible à l'humidité de l'air, et qu'au dessus de 70% d'humidité relative, les concentrations de sulfate et de nitrates sont maximales. De même, ils prouvent qu'après le passage d'un système convectif fortement précipitant, les concentrations sont toujours très élevées malgré les processus de dépôt par les précipitations. Les travaux réalisés par Crumeyrolle (2008) en Afrique de l'Ouest révèlent l'augmentation des capacités hygroscopiques des aérosols désertiques lors du passage d'un système convectif. Le mélange en phase aqueuse et l'évaporation des précipitations peut favoriser la formation de matière secondaire.

La figure 4.12 présente l'évolution des concentrations de nitrate, de sulfate et de sel d'ammonium mesurées avec un AMS au-dessus de Cabauw du 25 mai 00 UTC au 31 mai à 0700 UTC. La concentration de nitrate mesurée durant cette période varie de 1 à 17 g.m^{-3} . A la fin de la journée du 29 mai, les observations révèlent une augmentation rapide de la concentration de nitrate, et qui atteint sa valeur maximale (17 g.m^{-3}) le 30 mai 2008. Cette figure met en évidence que la concentration de sulfate varie peu (1 à 4.5 g.m^{-3}) du 25 au 31 mai. Cependant comme pour le nitrate, la concentration de sulfate augmente rapidement à partir du 29 mai et atteint sa valeur maximale (4.5 g.m^{-3}) au cours de la journée du 30 mai. L'évolution du sel d'ammonium obtenue avec l'AMS révèle une évolution similaire à celle du sulfate (1 à 4.5 g.m^{-3}). Comme pour les espèces précédemment présentées, la concentration de NH_4 augmente rapidement à partir du 29 mai et atteint sa valeur maximale (4.5 g.m^{-3}) le 30 mai. La figure 4.12 révèle donc la présence de sels solubles au-dessus de Cabauw durant la journée du 30 mai. Renforçant ainsi l'hypothèse d'une augmentation des capacités hygroscopiques des aérosols désertiques après le mélange de ces derniers avec

ces sels présents à Cabauw. Cependant il ne peut être ignorée la possibilité que du mélange ait pu également se produire au cours du transport du panache au-dessus de l'Europe.

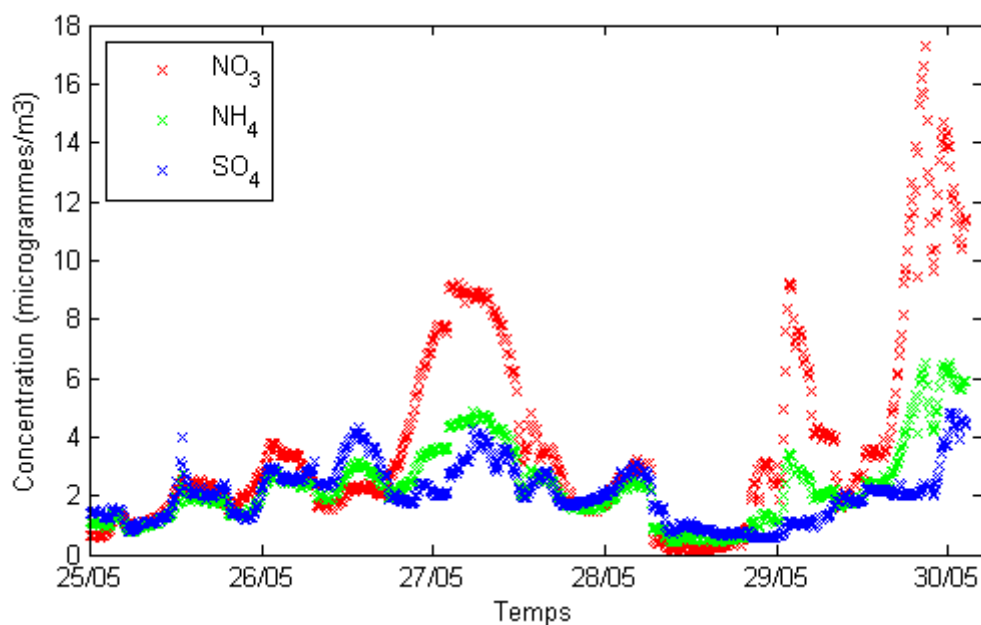


Figure 4.12 : Evolution de la concentration ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) de nitrate (rouge), de sulfate (bleu) et de l'ammonium (vert) mesurée avec l'AMS de la station de Cabauw du 25 mai à 00 UTC au 31 mai 0700 UTC.

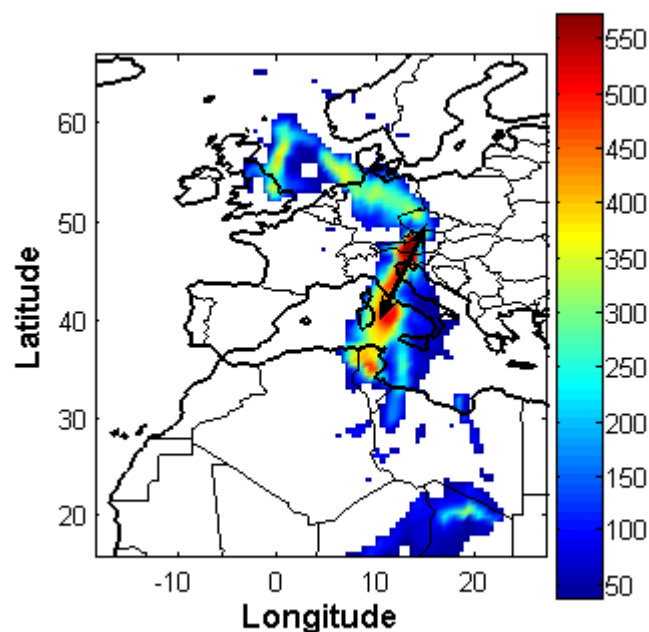
Afin d'évaluer cette hypothèse, une simulation de la situation a été réalisée en incluant la chimie hétérogène d'ORILAM. La configuration de la nouvelle simulation est identique à la simulation de référence (REF) sauf que celle-ci a été réalisée avec une résolution de 50 km et sur un domaine plus petit (128 x 128 points) en raison de la capacité du ordinateur utilisé. Les émissions chimiques ont été initialisées à partir des mesures provenant du TNO (Organisation Néerlandaise pour la recherche scientifique appliquée) réalisée lors de la campagne MEGAPOLI. Les espèces (VOC, SO_2 , OC, NO_x , CO_2 , BC) ont été mesurées sur le continent européen au sein d'un domaine allant de 34.02°N et 51.95°N de latitude et 9.93°O et 19.93°E de longitude. Notons que cette simulation ne présente pas d'émission biogéniques, ni d'émissions par les activités agricoles (ammoniac). Les conditions limites latérales ont été initialisées à partir des données MOCAGE. Au sein du modèle Mésos-NH les différentes espèces sont en mélange interne. Par ailleurs, cette simulation a

nécessité l'ajout de la masse des aérosols désertiques du mode fin (rayon médian = 0.039 μm) et accumulation (rayon médian = 0.32 μm) aux aérosols de pollution du modèle (Cf. Chapitre 2). Ainsi pour cette simulation deux sources possibles d'aérosols primaires sont considérées : les aérosols anthropiques (BC et OC) et les aérosols désertiques.

La figure 4.10 mettait en évidence le passage du panache au-dessus de l'Italie au cours de la journée du 28 mai entre 1 et 2 km d'altitude, suggérant du mélange possible au sein de cette région. Ainsi une coupe verticale le long de cette trajectoire a été réalisée (Fig. 4.13a et 4.13b). Cette coupe verticale révèle la présence d'importante concentration d'aérosols désertiques (500 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) entre 2 et 4 km d'altitude au-dessus de la région italienne et autrichienne, lors du 28 mai à 1200 UTC.

La somme des concentrations d'aérosols anthropiques et des sels chimiques est reportée sur la figure 4.13b (iso-lignes blanches). La concentration totale de ces différents aérosols décroît avec l'altitude et varie de 40 à 80 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Cette figure met en évidence l'existence de zone commune de coexistante entre les aérosols désertiques et les aérosols de pollution. Cela suggère ainsi l'existence de zone de mélange entre le panache et les aérosols localement présents au-dessus de cette région. Il est possible de voir qu'entre 2 et 4 km d'altitude, il y a coexistence d'aérosols désertiques, d'aérosols anthropiques dont la teneur en espèce secondaire (sels) est non négligeable. Par le biais de cette simulation, il est possible maintenant de conclure qu'il y a eu mélange entre les aérosols désertiques et les aérosols localement présents sur l'Europe, au cours de leur transport vers Cabauw, le 30 mai à 1400 UTC.

a)



b)

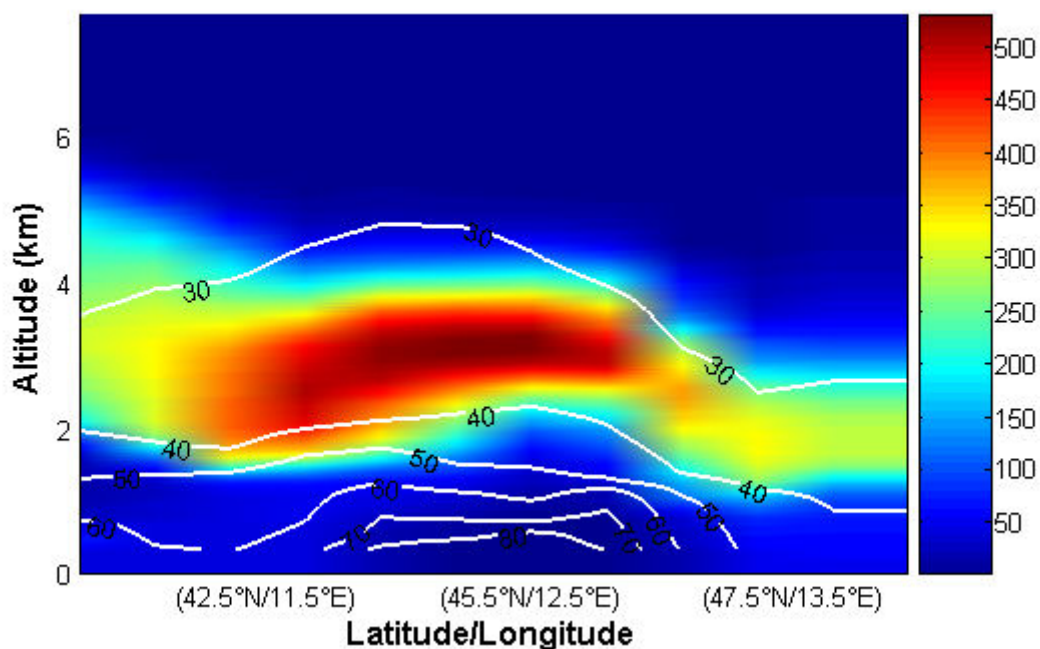


Figure 4.13 : Coupe verticale de la concentration massique ($g \cdot m^{-3}$) réalisée le 28 mai 2008 à 1200 UTC entre $(42.5^{\circ}N ; 11.5^{\circ}E)$ et $(47.5^{\circ}N ; 13.5^{\circ}E)$ suivant (a) la trajectoire obtenue par HYSPLIT pour la le 28 mai 2008. La concentration du panache d'aérosols désertiques (mode fin et accumulation) est indiquée les champs de couleur. La somme des concentrations des aérosols anthropiques et des sels chimiques sont indiquées par les iso-lignes blanches.

Une coupe verticale, centrée sur Cabauw, de la concentration massique en aérosols désertiques et en aérosols localement présents au-dessus de cette région le 30 mai à 1400 UTC a été réalisée. Cette figure révèle deux zones présentant des concentrations massiques élevées en aérosols désertiques, localisées respectivement entre la surface et 1 km, et entre 2 et 4 km. La concentration en aérosols désertiques au sein de ces deux couches est respectivement estimée à 450 et 350 g.m^{-3} (Fig. 4.14). Il est intéressant de noter que la concentration d'aérosols désertiques est plus important au sein de la couche localisée à proximité de la surface.

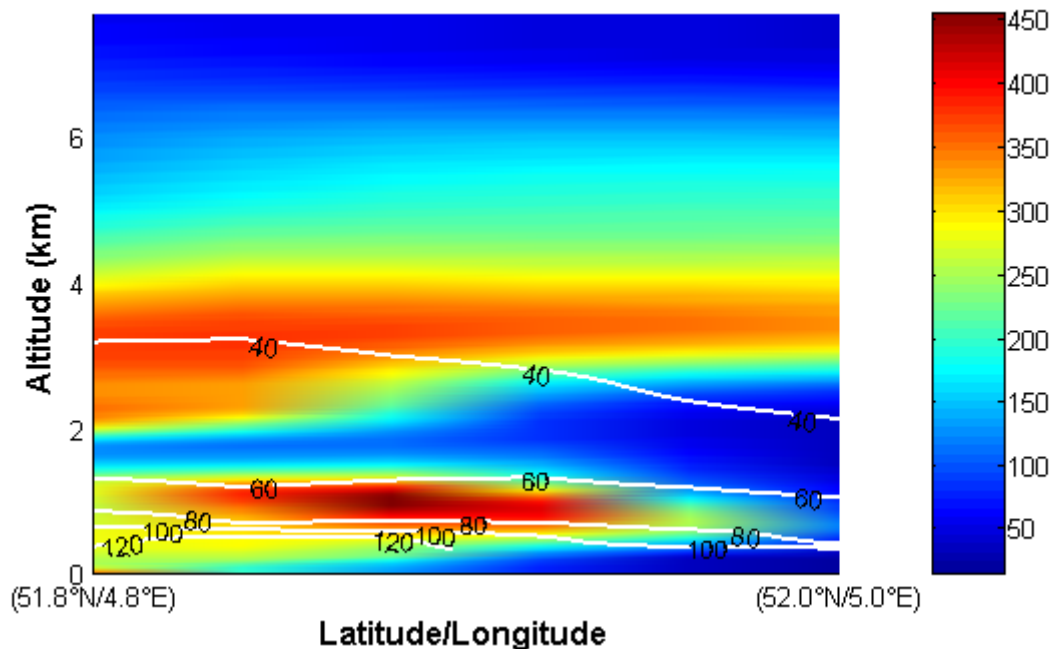


Figure 4.14 : Coupe verticale centrée sur Cabauw de la concentration massique (g.m^{-3}) centrée sur Cabauw le 30 mai 2008 à 1400 UTC. La concentration des aérosols désertiques (mode fin et accumulation) est indiquée les champs de couleur. La somme des concentrations des aérosols anthropiques et des sels chimiques sont indiquées par les iso-lignes blanches.

Le partage du panache d'aérosols désertiques en deux couches au-dessus de Cabauw peut s'expliquer d'une part comme étant la conséquence d'un lessivage plus important des particules du mode grossier, comme cela fut exposé à la section 4.3.2. D'autre part, cela peut également être la conséquence de la production locale d'aérosols. Par ailleurs, il ne peut également être exclu la possibilité que des aérosols provenant des zones d'érosion (terres arables)

européennes ait été transportés jusqu'à Cabauw. Lors de l'étude d'un évènement de transport d'aérosols désertiques sahariens vers l'Ukraine, Bessagnet et al (2008) ont mis en évidence l'importance des aérosols provenant des sols arables ukrainiens dans le bilan de masse de cet évènement.

La somme des concentrations des aérosols anthropiques et des sels chimiques (SO_4 , NO_3 , SOA dissociés) est reportée sur la figure 4.14 (iso-lignes blanches). La concentration totale de ces différents aérosols décroît avec l'altitude et varie de 40 à 120 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Cette figure met également en évidence la présence de zone commune entre les aérosols désertiques et les autres aérosols localement présents. Cela suggère également l'existence de zone de mélange entre le panache et les aérosols localement présents au-dessus de la région de Cabauw le 30 mai à 1400 UTC. La figure 4.14 met en évidence que cette zone de mélange est comprise entre la surface et 1 km d'altitude. Au sein de cette tranche atmosphérique, il y a ainsi coexistence d'une couche particulièrement chargée en aérosols (entre 300 et 450 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) et une couche également fortement chargée en aérosols (60 à 120 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Cette figure révèle donc que l'interaction entre le panache et les aérosols présents à Cabauw a eut lieu majoritairement à proximité de la surface, contrairement à ce qui s'est produit au-dessus de l'Italie (Fig. 4.13b).

Les estimations du modèle pour le 30 mai au-dessus de Cabauw révèlent que 95% de la masse des aérosols urbains proviennent des aérosols anthropiques (BC et OC) et seulement 5% des sels chimiques. Comme l'illustre la figure 4.15, La masse des sels chimiques estimée par le modèle est dominée par le nitrate, qui représente 73 % de la masse des sels chimiques modélisée au-dessus de Cabauw. Ce qui est implicitement en accord avec les mesures de l'AMS (Fig. 4.12). En effet, les mesures de l'AMS mettent en évidence que la concentration du nitrate est 3 fois supérieure à celle du sulfate. Cependant la proportion du sel d'ammonium qui est équivalente à celle du sulfate (Fig. 4.12) est nulle pour le modèle. L'absence du sel d'ammonium au-dessus de Cabauw par le modèle s'explique par l'absence de l'ammoniac parmi les espèces chimiques présentes dans le cadastre d'émission utilisé par le modèle. Cela suggère ainsi une sous-estimation de la quantité totale des sels chimiques présents au-dessus de Cabauw

le 30 mai par le modèle (les performances du modèle seront discutées plus en détails à la section 4.4).

Malgré cette sous-estimation de la quantité des sels chimiques par le modèle, la simulation réalisée met en évidence l'existence de zone de mélange entre le panache d'aérosols désertiques et les aérosols présents sur le continent européen. Cela renforce ainsi grandement la possibilité que suite à ces interactions avec ces aérosols urbains, les propriétés hygroscopiques de ces aérosols désertiques ont évoluées (Levin et al., 1996), pouvant ainsi expliquer l'augmentation soudaine du nombre de CCN au-dessus de Cabauw le 30 mai.

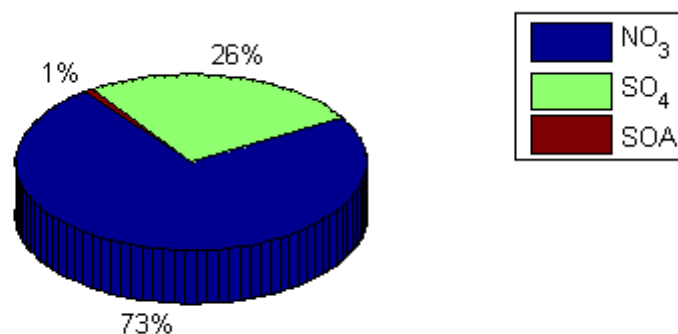


Figure 4.15 : Répartition (en %) de la masse des sels modélisée par Méso-NH entre la surface et 1km au-dessus de Cabauw le 30 mai à 1400 UTC.

4.4 Discussion et conclusion

Les résultats précédemment présentés révèlent une possible évolution des capacités hygroscopiques des aérosols désertiques due à l'interaction du panache avec les aérosols urbains présents au-dessus du continent européen. Comme cela fut mentionné précédemment, les aérosols désertiques en interagissant avec des masses d'air polluées peuvent être enrobés d'une pellicule de sulfate, de nitrate ou d'autres sels solubles leur permettant d'agir en tant que CCN (Levin et al., 1996). Roberts et al (2002) ont mis en évidence que les proportions du mélange sont importants afin de pouvoir conclure réellement si l'aérosol peut être considéré comme un CCN. En particulier, leurs travaux révèlent l'importance de la fraction des sels solubles, et notamment celles des sulfates, sur la capacité de

l'aérosol à agir en tant que CCN. Il ressort de ces travaux que la capacité de l'aérosol à agir en tant que CCN est faible lorsque la fraction des sels est bien inférieure à 15% (Roberts et al., 2002).

La figure 4.16 présente la coupe verticale centrée sur Cabauw de la fraction des sels solubles par rapport à la masse totale des sels et des aérosols désertiques modélisé en mélange interne le 30 mai à 1400 UTC. La fraction des sels au sein de ce mélange interne avec les aérosols désertiques diminue avec l'altitude (Fig. 4.16). Cette figure met en évidence que la fraction des sels varie de 15 à 22 % entre la surface et 1 km. Il est intéressant de rappeler que la figure 4.14 mettait en évidence une forte concentration d'aérosols désertiques ($2200 \text{ particules.cm}^{-3}$) et d'aérosols urbains ($60 \text{ à } 120 \text{ g.m}^{-3}$) au sein de cette tranche atmosphérique. Les résultats de la figure 4.16 révèlent que la quantité de sels mélangée aux aérosols désertiques peut être suffisante pour permettre à ces aérosols désertiques d'agir en tant que CCN. Cependant au-delà de 2.5 km d'altitude, la fraction de sels solubles ne dépasse pas les 6%. La quantité de sel ainsi mélangée aux aérosols désertiques à cette altitude est bien insuffisante pour qu'ils puissent agir en tant que CCN. Du moins, cela suggère ainsi qu'au-delà de 2.5 km d'altitude, les aérosols désertiques sont très peu mélangés aux sels.

Cependant ces fractions de sels présentées à la figure 4.16 sont à considérer avec précaution du fait que les concentrations de nitrate et de sulfate à Cabauw sont sous-estimées par le modèle. En effet, en moyenne la concentration de sulfate est sous-estimée d'un facteur 2 par le modèle (Fig. 4.17a). Cette sous-estimation est particulièrement importante lors du début de journée du 30 mai. En effet, au début du 30 mai, une concentration de 4.5 g.m^{-3} est mesurée par l'AMS alors que le modèle a simulé que 1.2 g.m^{-3} . Pour le nitrate, la concentration est sous-estimée d'un facteur 3 par le modèle (Fig. 4.17b). Comme pour le sulfate, la sous-estimation est importante au début de la journée du 30 mai. En effet, au début du 30 mai, une concentration de nitrate de 14 g.m^{-3} est obtenue par l'AMS alors que le modèle ne simule que 1.8 g.m^{-3} . Néanmoins, malgré cette sous-estimation l'évolution temporelle de la concentration du nitrate est en accord avec les observations. L'origine de cette sous-estimation peut être attribuée au fait qu'une résolution de 50 km n'est peut être pas suffisante pour reproduire

avec précision l'évolution de la concentration de ces espèces chimiques. La concentration estimée par le modèle correspond à une valeur calculée sur l'ensemble d'une maille de 50 km par 50 km. Ainsi les concentrations du modèle calculées pour une maille aussi importante sont lissées et donc sous-estimées par rapport à celles mesurées dans un domaine plus petit (Cabauw). L'origine de cette sous-estimation peut également être attribuée à l'absence de l'ammoniac dans la simulation. En effet, le sulfate, le nitrate et l'ammonium résultent de la condensation des acides sulfurique et nitrique, d'une part, et de celle de l'ammoniac d'autre part. L'ion ammonium est une base qui va neutraliser une partie de l'acide nitrique pour former du nitrate d'ammonium particulaire. Les sulfates sont aussi des particules d'acide sulfurique neutralisées partiellement ou totalement par l'ammoniac. La présence de cette sous-estimation peut aussi être attribuée à une sous-estimation des flux d'émissions des espèces chimiques au sein du modèle. Il conviendra ultérieurement d'affiner cette simulation chimique pour préciser et calculer convenablement le nombre de CCN dans le modèle.

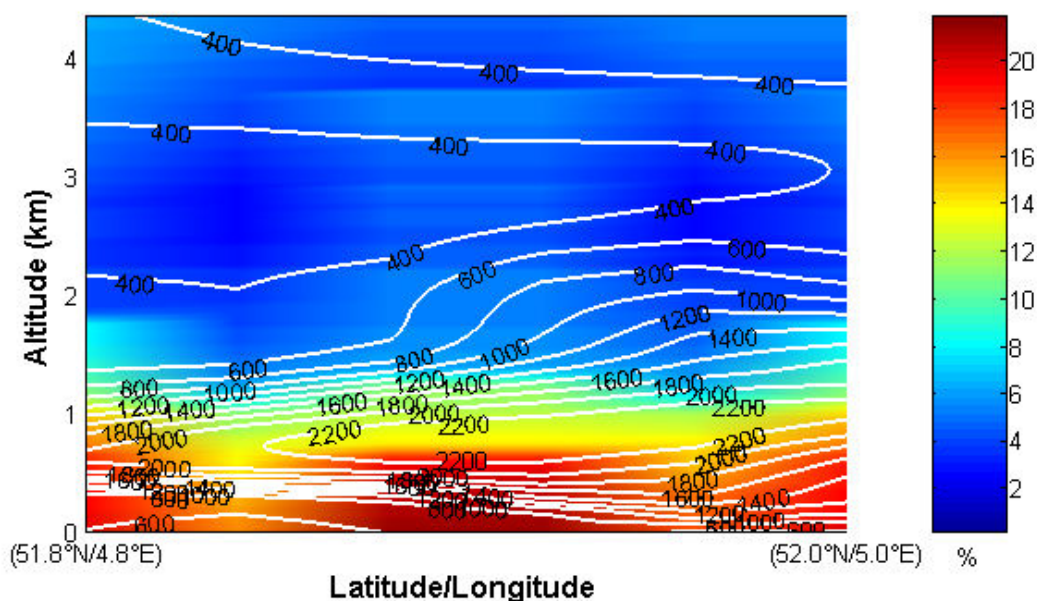
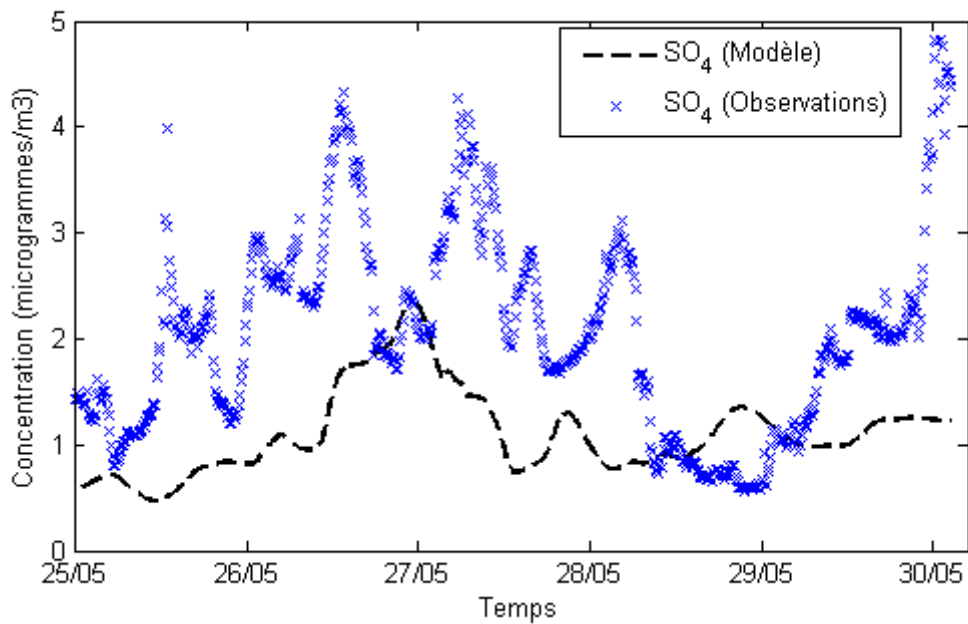


Figure 4.16 : Coupe verticale centrée sur Cabauw de la fraction de sels (SOA, NO₃, SO₄) par rapport à la masse totale sels et d'aérosols désertiques simulés en mélange interne le 30 mai 2008 à 1400 UTC.

La sous-estimation de la concentration des sels par le modèle ne remet pas en cause l'existence du mélange entre le panache et les aérosols urbains, mais

seulement les proportions du mélange qui s'est produit. La simulation et les observations permettent d'estimer avec un bon degré de confiance, que ces fortes concentrations en CCN observés le 30 Mai résultent du mélange entre aérosols désertiques et pollution anthropique locale.

a)



b)

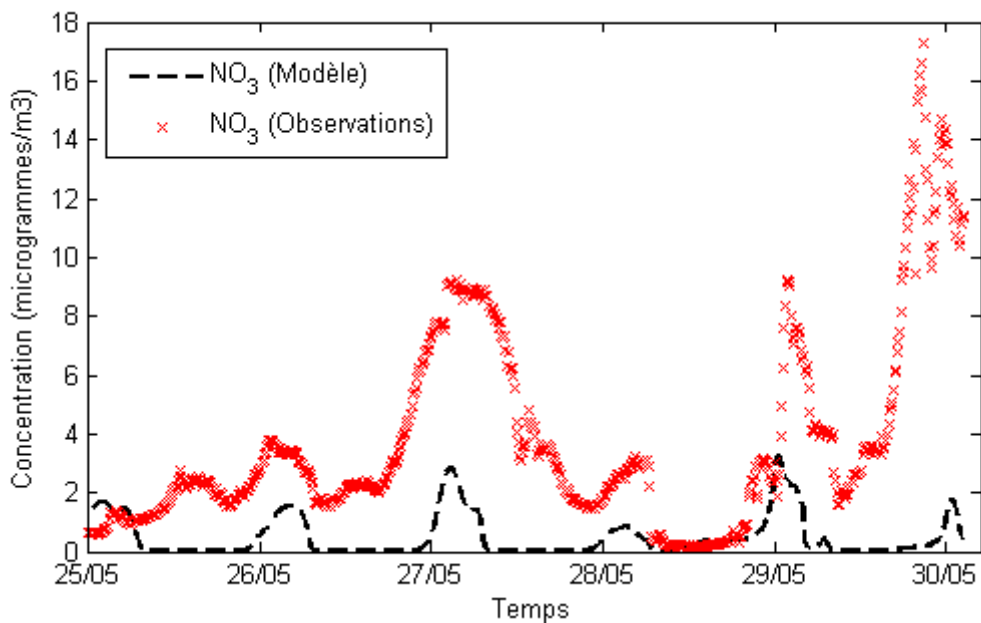


Figure 4.17 : Evolution de la concentration de (a) sulfate et de (b) nitrate obtenue à partir de l'AMS et simulée par Méso-NH du 25 mai 00 UTC au 30 mai 0700 UTC à Cabauw.

Conclusions générales et perspectives

Conclusions générales

L'objectif principal de ce travail était d'étudier l'évolution des propriétés physico-chimiques des aérosols désertiques. L'analyse d'un important épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains vers l'Europe nous a permis d'étudier deux éléments d'évolution dimensionnelle et chimique d'un panache d'aérosol ; (i) le filtrage dimensionnel par les précipitations, et (ii) le mélange des aérosols désertiques avec la pollution anthropique.

L'analyse de cet événement inhabituel, de part l'étendue du panache et du contexte météorologique, a nécessité une approche combinant les observations (sols, aéroportées, satellitaires) et la modélisation numérique via l'utilisation du modèle Méso-NH. Pour les besoins de cette étude, un schéma de lessivage implicite des aérosols a été développé. De plus, dans le but d'étudier le vieillissement des aérosols désertiques en contact avec les masses d'air polluées, la masse d'aérosols désertiques (mode fin et accumulation) a été ajoutée aux aérosols de pollution dans le schéma d'aérosols ORILAM.

Les simulations réalisées ont permis de mettre en évidence que les aérosols observés par OMI sur le nord de l'Europe étaient bien des aérosols désertiques.

L'analyse à grande échelle de la situation a clairement révélé l'Algérie, la Tunisie et la Libye comme les principales régions sources. Le transport du panache vers l'Europe fut modulé par la présence d'un système dépressionnaire s'étendant sur toute la côte ouest européenne jusqu'au nord-ouest de l'Afrique, et un système anticyclonique s'étendant du sud de l'Europe jusqu'au nord-est du continent africain. De plus, les conditions synoptiques de ce transport ont été caractérisées par la présence d'un système anticyclonique au-dessus de l'Italie. Les travaux réalisés au cours de cette thèse ont mis en évidence que l'intensité et la position de ce système ont favorisé le transport du panache vers l'Europe du Nord. Par ailleurs, le bon accord entre les résultats du simulateur LIDAR de Méso-NH et CALIPSO a permis d'une part d'évaluer la charge d'aérosols désertiques simulée, et d'une autre part, de confirmer que le transport du panache vers l'Europe s'est effectué entre 2 et 4 km. Cette altitude a favorisée l'interaction du panache avec les chaînes de montagne européennes, telles que les Alpes. Ces interactions font que les principales zones de dépôt sec sont localisées sur les massifs européens.

Les simulations effectuées ont permis la réalisation du premier bilan massique de cet important épisode de transport d'aérosols désertiques. Il résulte de ce bilan massique que la quantité émise représente 13% de la quantité d'aérosols désertiques émis annuellement par l'Afrique du Nord. Il ressort de ce bilan que la quantité éliminée par dépôt sec et humide représente respectivement 7 et 40 % de la quantité de la quantité émise. L'activité convective présente au sein de l'Europe Centrale et du bassin méditerranéen a ainsi largement contribué au lessivage des aérosols désertiques, mais également à l'injection de particules en haute troposphère (12-14 km). De plus, la localisation de l'injection de ces particules en haute troposphère coïncide avec une région où une forte activité électrique a été mesurée par le réseau WWLLN.

Une analyse du panache à l'échelle locale, au-dessus des Pays-Bas (région de Cabauw), a été également réalisée. Malgré les perturbations occasionnées par le contexte météorologique perturbé, les observations lidar ont permis de caractériser la présence d'aérosols désertiques et également d'obtenir une estimation de la structure verticale du panache. A partir des observations et des

simulations, il a été mis en évidence que le panache d'aérosols désertiques s'est scindé en deux couches distinctes. Une première située entre 0.5 et 1.1 km d'altitude, et une deuxième localisée entre 2.5 et 5.2 km d'altitude. Les mesures réalisées à Cabauw ne présentaient pas les caractéristiques optiques habituellement associées à la présence d'aérosols désertiques. Tout particulièrement, la présence d'une importante décroissance du coefficient de diffusion avec la longueur d'onde, a été observée au cours du vol du 30 mai 2008 de l'ATR-42 à proximité de Cabauw. Malgré la distance séparant les régions sources des Pays-Bas et la résolution (25 km), l'évolution des propriétés optiques et cette dépendance spectrale ont été bien reproduites par le modèle. L'exploitation des simulations ont ainsi permis de montrer que cela résultait du filtrage du mode grossier dans le panache d'aérosol par les précipitations convectives.

L'ajout de la chimie hétérogène (schéma d'aérosol ORILAM) aux simulations a permis de mettre en évidence l'existence d'une zone de mélange entre le panache et des masses d'air polluées en surface. En particulier, il a été montré l'existence de zone de mélange au-dessus de l'Italie et de Cabauw. De plus à Cabauw, l'existence de cette zone de mélange coïncide avec une augmentation de la concentration de CCN. Malgré la faible résolution de cette simulation (50 km), les résultats obtenus suggèrent fortement que les concentrations élevées de CCN résultent du mélange des aérosols désertiques et des aérosols de pollution anthropique.

Plus globalement, il ressort des analyses réalisées à grande échelle et à l'échelle locale que l'activité convective présente sur l'Europe Centrale et dans le bassin méditerranéen a eu un impact sur les propriétés macroscopiques et les caractéristiques optiques de ces aérosols désertiques. De plus, l'interaction du panache avec les aérosols de pollution a conduit à une très probable augmentation des capacités hygroscopiques de ces aérosols désertiques. Ces résultats confirment ainsi que les conditions physico-chimiques de l'atmosphère régissent le cycle de vie des aérosols et leurs interactions avec les nuages

Perspectives

Dans la continuité de l'analyse de ce cas d'étude de nombreuses perspectives s'ouvrent. Parmi elles, il y a la nécessité de compléter cette étude par une analyse plus approfondie des capacités hygroscopiques des ces aérosols désertiques. Dans le but d'affiner le lien entre la chimie et l'hygroscopicité des particules établi dans cette étude, il est nécessaire de réaliser une nouvelle simulation à une résolution meilleure et avec un ajustement des émissions anthropiques et l'ajout des émissions biogéniques et agricoles. De plus, l'utilisation des mesures réalisées avec les instruments embarqués à bord de l'ATR-42, tels que le LEANDRE, permettait d'enrichir cette analyse. Par ailleurs, les mesures aéroportées révèlent des valeurs du rapport de $CCN_{0.2}/CN$ variant de 20 à 50% (Fig. 5.1) au sein de cette région où la dépendance spectrale a été observée (Fig. 4.4).

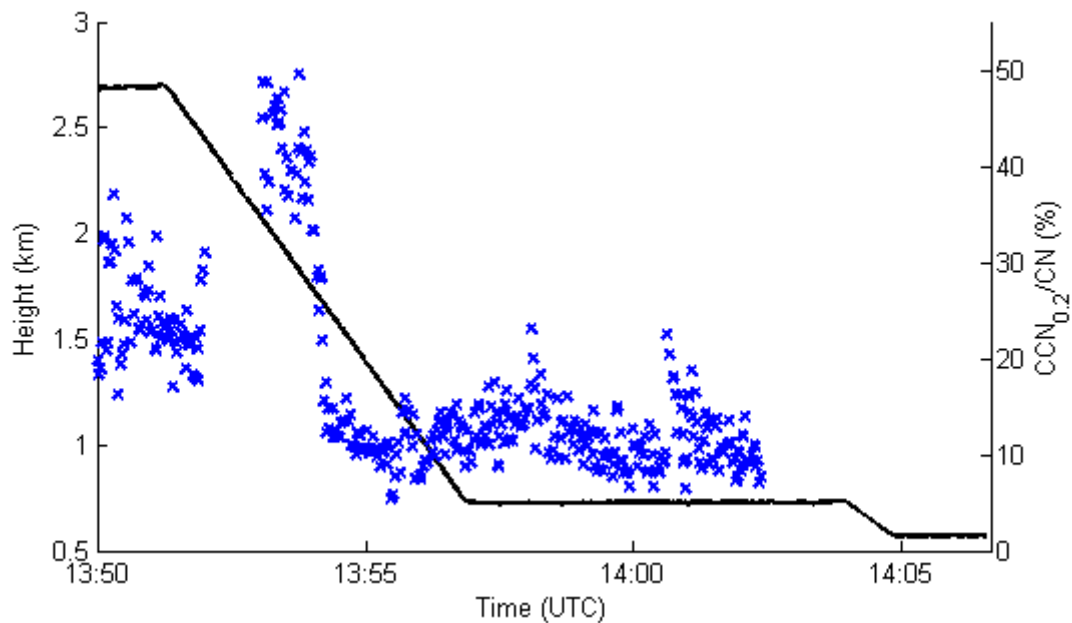


Figure 5.1 : Evolution du rapport CCN/CN à niveau de sursaturation de 0.2 au-dessus des Pays-Bas entre 1350 UTC et 1410 UTC le 30 mai 2008. Le trait noir représente les paliers de vol de l'ATR-42.

Ces valeurs révèlent ainsi une augmentation des capacités hygroscopiques des particules présentes au sein de cette région. Compte tenu des résultats présentés au chapitre 4, cela suggère une éventuelle augmentation des capacités

hygroscopiques des aérosols désertiques du mode d'accumulation présents en abondance au sein de cette région. La figure 5.1 et les éléments de discussion présentés au chapitre 4 justifient amplement l'intérêt de poursuivre et d'approfondir cette analyse sur les capacités hygroscopiques de ces aérosols désertiques au-dessus des Pays-Bas.

A moyen terme, il a été mis en évidence dans cette thèse la coexistence entre d'importantes quantités d'aérosols désertiques en haute altitude et une activité électrique importante mesurée par le réseau WWLLN. Ainsi dans la perspective d'établir un lien possible entre ces aérosols désertiques et cette activité électrique mesurée par le réseau WWLLN, il serait intéressant d'activer le schéma d'électricité atmosphérique du modèle MésoNH en le couplant avec un schéma d'activation de la glace (IFN). Ce couplage permettrait de quantifier le rôle des aérosols désertiques comme noyaux glaçogène et d'utiliser l'électricité comme proxy facilement mesurable.

Les interactions aérosols/nuages sont au cœur des préoccupations actuelles de la communauté scientifique. Les interactions indirectes des aérosols avec le rayonnement qui sont dues à leur rôle actif en tant que noyaux de condensation (CCN) et noyaux glaçogènes (IFN) restent une des sources d'incertitudes majeures du changement climatique. Actuellement, les modifications du forçage radiatif des aérosols ont des conséquences encore mal estimées sur la dynamique atmosphérique et également sur le cycle de l'eau. Concernant ces thématiques, le bassin méditerranéen mobilise en ce moment plus que jamais la recherche française et internationale dans le cadre du programme de recherche Mistrals (Mediterranean Integrated STudies at Regional And Local Scales, <http://www.mistrals-home.org>).

Le bassin méditerranéen constitue un véritable réceptacle des aérosols continentaux (aérosols désertiques, aérosols de pollution, feux de biomasse) ayant une influence sur le bilan radiatif du système Terre-Atmosphère. Ces différents types d'aérosols suivant leurs propriétés hygroscopiques peuvent modifier les propriétés radiatives (comme la réflectivité) et microphysiques des nuages. ChArMEx (CHemistry Aerosol Mediterranean EXperiment) qui est le volet chimie atmosphérique du programme Mistrals, à notamment pour objectif

CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

l'étude des processus chimiques associés aux aérosols de la région, en particulier les aérosols désertiques, au cours de leur transport. La campagne d'observation actuelle est donc en lien direct avec le travail de recherche qui a été effectué au cours de cette thèse. Une des perspectives de ce travail pourrait s'inscrire dans la valorisation d'une situation de ChArMEx sur le vieillissement des aérosols du bassin méditerranéen. L'étude des interactions entre aérosols désertiques et feux de biomasse serait une voie intéressante qui compléterait les résultats de ce travail de thèse.

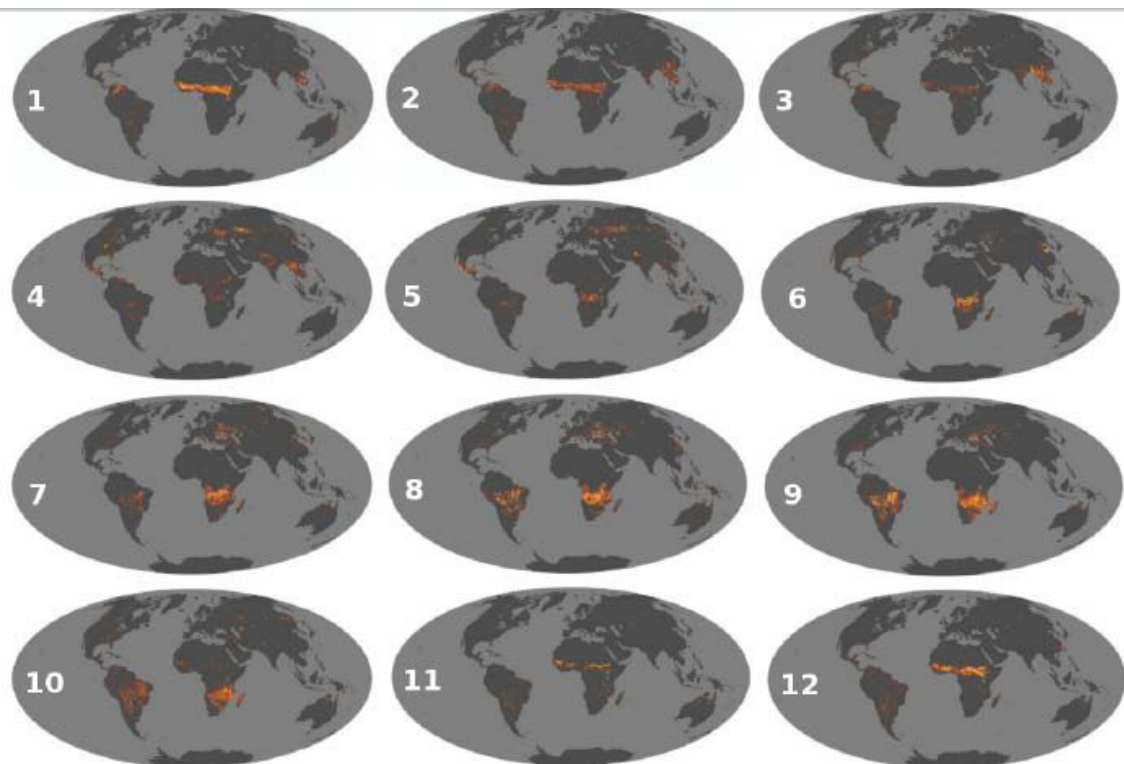


Figure 5.2 : Localisation des foyers d'incendie au cours de l'année 2010 à partir des observations MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer). (source : <http://earthobservatory.nasa.gov/GlobalMaps>).

Un autre contexte intéressant serait d'étudier le vieillissement des aérosols de feux lors de la saison des feux australe (Fig. 5.2). Chaque année, de juillet à octobre, les régions de l'Afrique du Sud et de Madagascar présentent une activité importante de feux de biomasse (Cooke et al., 1999 ; Edwards et al., 2006 ; Generoso et al., 2003 ; Marengo et al., 1990). La figure 5.2 montre la localisation des foyers d'incendie détectés au cours de l'année 2010 par MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) à bord des plateformes Terra et Aqua.

L'intérêt pour la région océan Indien résulte du fait que peu d'études sont portées sur l'évolution régionale des aérosols africains transportés au-dessus de cette région. Or via les feux de biomasse, des quantités importantes de composés gazeux et aérosols sont fréquemment transportés au-dessus de la couche d'alizés pendant l'hiver austral (Garstang et al., 1996 ; Tyson et al., 1997). De plus, au sein de cette région des questions clés sur la thématique des aérosols subsistent en ce qui concerne la métrologie des particules (distribution en taille, relation masse-nombre), l'identification de la nature des particules (spéciation de la matière organique) et mais aussi dans la compréhension des processus de formation et d'évolution des particules (tant sur le plan de la chimie que de la physique).

Références bibliographiques

Ackerman, T. P., and O. B. Toon, Absorption of visible radiation in atmosphere containing mixtures of absorbing and nonabsorbing particles, *Applied Optics*, 20(20), 3661–3667, 1981

Ackermann, J: The extinction-to-Backscatter Ratio of tropospheric Aerosol: A numerical study, *J. Atmos. Ocean Technol*, 15, 1044-1050, 1998

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

Ackerman, A. S., M. P. Kirkpatrick, D. E. Stevens, and O. B. Toon, The impact of humidity above stratiform clouds on indirect aerosol climate forcing, *Nature*, 432, 1014–1017, 2004

Agence Française de Sécurité Sanitaire et Environnementale (AFSSE) : Estimation de l'impact sanitaire d'une pollution environnementale et évaluation quantitative des risques sanitaires Eds. InVS/Afsse, 157, 2006

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

Alfaro, S. C., and L. Gomes, Modelling mineral aerosol production by wind erosion : Emission intensities and aerosol size distributions in source areas, *Geophysical Research Letter*, 106(D16), 991–994, 2001

Alexander, D. T. L., P. A. Crozier, and J. R. Anderson, Brown carbon spheres in east asian outflow and their optical properties, *Science*, 321(5890), 833 –836, 2008

Alpert, P., and B. Ziv, The Sharav Cyclone: Observations and some theoretical considerations, *J. Geophys. Res.*, 94, 18,495– 18,514., 1989

Alpert, P., B. I. Neeman, and Y. Shay-el , Climatological analysis of Mediterranean cyclones using ECMWF data, *Tellus, Ser. A*, 42, 65– 77, 1990

Alpert, P., Herman, J., Kaufman, Y.J and Carmona, I: Response of the climatic temperature to dust forcing, inferred from Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) aerosol index and NASA assimilation model, *Atmos. Res.*, 53(1-3), 3-14, 2000

Alpert, P and Ganor, E: Sahara dust measurements from TOMS: Comparison to surface observation over Middle East for the extreme dust storm, March 14-18 1998, *J. Geophys. Res.*, 106, 18275-18286, 2001

Anderson, T. L., and J. Ogren, Determining aerosol radiative properties using the TSI 3563 integrating nephelometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 29, 57–69, 1998

Anderson, T. L., et al. (1996), Performance characteristics of a high-sensitivity, three-wavelength, total scatter/backscatter nephelometer, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, 13, 967–986.

Anderson, T.L, Charlson, R.J, Schwartz, S.E, Knutti, R., Boucher., O, Rodhe., H and Heintzenberg, J: Climate forcing by aerosols-a hazy picture, *science*, 300 1103, 2003

Andreae, M. O., Rosenfeld, D., Artaxo, P., Costa, A. A., Frank, G. P., Longo, K. M.,and Silva-Dias, M. A. F. : Atmospheric science : smoking rain clouds over the Amazon, *Science*, 303, 1337–1341, 2004.

Andreae, M. O., and A. Gelencser, Black carbon or brown carbon ?, the nature of light-absorbing carbonaceous aerosols, *Atmos.Chem. Phys.*, 6(10), 3131–3148, 2006

Andreae, M. O. (1991), Biomass burning : Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate, pp. 3–21, MIT Press, Cambridge, Mass. 10, 11, 44

Ansmann, A., Bösenberg, J., Chaikovsky, A., Comeron, A., Eckhardt, S., Eixmann, R., Freudenthaler, V., Ginoux, P., Komguem, L., Linné, H., Marquez, M.A.L, Matthias, V., Mattis, I., Mitev, V., Müller, D., Music, S., Nickovic, S., Pelon, J., Sauvage, L., Sobolewsky, P., Srivastava, M.K., Sthol, A., Torres, O., Vaughan, G., Wandinger, U and Wiegner, M: Long-range transport of Saharan dust to northern Europe: The 11-16 October 2001 outbreak observed with EARLINET, *J. Geophys. Res.*, 108(D24), 4783, doi: 10.1029/2003JD003757, 2003

Ansmann, A., A. Petzold, K. Kandler, I. Tegen, M. Wendisch, D. Müller, B. Weinzierl, T. Müller, and J. Heintzenberg, Saharan mineral dust experiments SAMUM-1 and SAMUM-2 : what have we learned ?, *Tellus B*, 63(4), 403–429, 2011

Aouitzerats, B: Impacts radiatifs des aerosols sur la dynamique en couche limite urbaine : Application à la campagne CAPITOU, thèse de doctorat , Université Paul Sabatier, 2010

Arakawa, A and Schubert, W : Interaction of a cumulus cloud ensemble with large scale environment, *J Atmos. Sci.*, 31, 71, 74201, 1974

Arola, A., G. Schuster, G. Myhre, S. Kazadzis, S. Dey, and S. N. Tripathi, Inferring absorbing organic carbon content from AERONET data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(1), 215–225, 2011

Ashkenazy, Y, Yizhaq, H and Tsoar, H : Sand dune mobility under climate change in the Kalahari and Australian deserts, *Clim. Change*, doi: 10.1007/S10584-011-0264-9, 2011

Balis, D.S., Amiridis, V., Nickovic, S., Papayannis and Zerefos, C: Optical properties of Saharan dust layers as detected by a Raman lidar at Thessaloniki, Greece, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L13014, doi: 10.1029/2004GL019881, 2004

- Bangert, M, A. Nenes, A, Vogel, B, Vogel,H., Barahona, D., Karydis, V.A, P. Kumar, P, Kottmeier,C, and Blahak, U : Saharan dust event impacts on cloud formation and radiation over Western Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 4045-4063, 2012
- Banta, R. M., Y. L. Pichugina, and W. A. Brewer (2006), Turbulent velocity variance profiles in the stable boundary layer generated by a nocturnal low level jet, *J. Atmos. Sci.*, 63, 2700– 2719, 2006
- Barkan, J., Kutiel, H., Alpert, P and Kishcha, P: The synoptic of dust intrusion days from the African continent into the Atlantic Ocean, *J. Geophys. Res.*, 109, D08201, doi:10.1029/2003JD004416, 2004
- Barkan, J., Alpert, P., Kutiel, H and Kishcha, P : Synoptics of dust transportation days from Africa toward Italy and central Europe, *J. Geophys. Res.*, 110, D07208, doi: 10.1029/2004JD005222, 2005
- Barnard, J. C., R. Volkamer, and E. I. Kassianov, Estimation of the mass absorption cross section of the organic carbon component of aerosols in the Mexico city metropolitan area, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(22), 6665–6679, 2008
- Barthe, C., Molini, G and Pinty, J: Description and first result of an explicit electrical scheme in a 3d cloud resolving model, *Atmos. Res.*, 76(1-4), 95-113, 2005
- Bechtold, P., E. Bazile, F. Guichard, P. Mascart, and E. Richard, A mass-flux convection scheme for regional and global models, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 127, 869–886, 2001
- Beucher, F: Manuel de meteorologie Tropicale : des alizés au cyclone, Tomes 1 et 2, Météo-France, 868 PP, 2010
- Behnert, I., Matthias, V and Doerffer, R: Aerosol climatology from ground-based measurements for the southern North Sea, *Atmos. Res.*, 84, 201-220, 2007

- Bhattachan, A., Paolo D'Odorico, Baddock, M, Zobeck, T Okin, G and Cassat, N: The Southern Kalahari : a potential new dust source in the Southern Hemisphere?, *Env. Res. Lett*, 7, doi: 10.1088/1748-9326/7/2/024001, 2012
- Bobely-Kiss, I., Kiss, A.Z., Koltay, E., Szabo, G and Bozo, L: Saharan dust episodes in Hungarian aerosol: Elemental signatures and transport trajectories, *J. Aerosol. Sci.*, 35(10), 1205-1224, 2004
- Bond, T. C., T. L. Anderson, and D. Campbell, Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols, *Aerosol Science and Technology*, 30, 18, 1999
- Bond, T. C., and R. W. Bergstrom (2006), Light absorption by carbonaceous particles : An investigative review, *Aerosol Science and Technology*, 40(1), 2006
- Bouet, C: Modélisation multi-échelle de la dynamique des panache d'aérosols naturels en Afrique, thèse de doctorat, Université Blaise Pascale de Clermont-Ferrand, 2007
- Bou Karam, D., Flamant, C., Knippertz, P, Reitebuch, O, Chong, M, Pelon, J and Dabas, A: Dust emission over Sahel associated with the West African Monsoon Inter-tropical discontinuity region: a representative case study, *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 134, 621-634, 2008
- Bou Karam, D., Flamant, C., Tulet, P., Todd, M.C., Pelon, J and Williams, E: Dry cyclogenesis and dust mobilization in the intertropical discontinuity of the West Africa Monsoon: A case study, 114, D05115, doi: 10.1029/2008JD010952, 2009
- Bourgeault, P., Lacarrere, P: Parametrization of orography-induced turbulence in a meso-beta model, *Mon. Weather. Rev.*, 117, 1872-1890, 1989
- Brioude, J., et al. (2009), Effect of biomass burning on marine stratocumulus clouds off the California coast, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(22), 8841–8856

Cakmur, R.V, Miller, R.L, Perlwitz, J., Geogdzhayev, I.V, Ginoux, P., Koch., D., Kohfeld, K.E, Tegen, I and Zender, C.S: Constraining the magnitude of the global dust cycle by minimizing the difference between a model and observation, *J. Geophys. Res.*, 111, D06207, doi: 10.1029/2005JD005791, 2006

Callot, Y., B. Marticorena, and G. Bergametti, Geomorphologie approach for modeling the surface features of arid environments in a model of dust emissions: Application to the sahara desert, *Geodinamica Acta*, 13, 245–270, 2000

Caniaux G., J.-L. Redelsperger and J.-P. Lafore. A numerical study of the stratiform region of a fast-moving squall line. Part I. General description, and water and heat budgets. *Journal of Atmospheric Sciences*, 51, 2046-2074, 1994.

Caquineau, S., A. Gaudichet, L. Gomes, and M. Legrand, Mineralogy of saharan dust transported over northwestern tropical atlantic ocean in relation to source regions, *Journal of Geophysical Research*, 107, 12, 2002

Carlson T.N. and J.M. Prospero. The large scale movements of Saharan air outbreaks over the northern equatorial atlantic, *J. Appl. Meteorol.*, 11, 283-297, 1972.

Chaboureau, J.P., Richard, E., Pinty, J.P., Flamant, C., Di Girolamo, P., Kiemle, C., Behrendt, A., Chepfer, H., Chiriaco, M and Wulfmeyer, V : Long-range transport of Saharan dust and its radiative impact on precipitation forecast: a case study during the Convective and Orographically-induced Precipitation Study (COPS), *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, doi: 10.1002/qj.719, 2011

Chaipello, I and Moulin, C: TOMS and METEOSAT satellite record of the variability of Saharan dust transport over the Atlantic during the last two decades (1979-1997), *Geophys. Res. Lett.*, 29(8), 1176, doi: 10.1029/2001GL013767, 2002

Chen, Y., and T. C. Bond, Light absorption by organic carbon from wood combustion, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(4), 1773–1787, 2010

- Chin, M., Rood, R., Lin, S.J., Muller, J.F and Thompson, A: Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCARD: model description and global properties, *J. Geophys. Res.*, 105, 24, 671-24, 687, 2000
- Chou, C., P. Formenti, M. Maille, P. Ausset, G. Helas, M. Harrison, and S. Osborne, Size distribution, shape, and composition of mineral dust aerosols collected during the african monsoon multidisciplinary analysis special observation period 0 : Dust and Biomass-Burning experiment field campaign in niger, january 2006, *Journal of Geophysical Research*, 113, 17 PP. 12, 15, 19, 49, 54, 2008
- Chou, C., O. Stetzer, E. Weingartner, Z. Juranyi, Z. Kanji, and U. Lohmann, Ice nuclei properties within a Saharan dust event at the Jungfraujoch in the Swiss Alps, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 4725–4738, 2011
- Chow, J. C., J. G. Watson, H. Kuhns, V. Etyemezian, D. H. Lowenthal, D. Crow, S. D. Kohl, J. P. Engelbrecht, and M. C. Green, Source profiles for industrial, mobile, and area sources in the big bend regional aerosol visibility and observational study, *Chemosphere*, 54(2), 185 – 208. 14, 2004
- Chylek, P., and J. Wong: Effect of absorbing aerosols on global radiation budget. *Geophys. Res. Lett.*, 22(8), 929–931, 1995
- Clain, M. (1995), Etude de la composante organique de l'aérosol atmosphérique, thèse de doctorat, Université de Chambéry. 11
- Clarck, T., and R. Forley, 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, 1989
- Cohard, J and Pinty, J: A comprehensive two moment warm microphysical bulk scheme. II: 2d experiments with a non-hydrostatic model, *Q. J. R. Meteor. Soc.*, 126, 1843-1859, 2000
- Collaud Coen, M., Weingartner, E., Schaub, D., Hueglin, C., Corrigan, C., Henning, S., Schwikowski, M. and Baltensperger: Saharan dust events at the

Jungfraujoch: detection by wavelength dependence of the single scattering albedo and first climatology analysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 2465-2480, 2004

Cooke, W. F., C. Liousse, H. Cachier, and J. Feichter , Construction of a 1 ° x 1 ° fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model, *Journal of Geophysical Research*, 104(D18), 162., 1999

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

Crumeyrolle, S, Impacts des systemes convectifs sur les propriétés hygroscopiques des aérosols : Analyse de deux cas d'étude durant la campagne AMMA, thèse de doctorat, Université de Toulouse III, 2008

Crumeyrolle, S., P. Tulet, L. Garcia-Carreras, L. Gomes, C. Flamant, D. J. Parker, A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, and P. Formenti, Transport of dust particles from the bodele region to the monsoon layer. amma case study of the 9-14 june 2006 period, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2010

Dayan, U., J. Heffter, J. Miller, and G. Gutman , Dust intrusion into the Mediterranean Basin, *J. Appl. Meteorol.*, 30, 1185– 1199, 1991

D'Almeida, G.A: A model for Saharan dust transport, *J. Clim. Applied. Meteorol.*, 25, 903-916, 1986

D'Almeida, G.A, On the variability of desert aerosol radiative characteristics, *J. Geophys. Res*, 92, 3017-3026, 1987

D'Almeida, G. A., P. Koepke, and E. P. Shettle, *Atmospheric Aerosols Global Climatology and Radiative Characteristics*, A. Deepak Pub., 1991

De Decker, P., Norman, M, Goodwin, I, Wain, A and Gingele, X.F : Lead isotopic evidence for an Australia source of Aeolian dust to Antarctica at times

over the last 170 000 years, *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 205–223, 2010

DeLeeuw, G., E. L. Andreas, M. D. Anguelova, C. W. Fairall, E. R. Lewis, C. O'Dowd, M. Schulz, and S. E. Schwartz (2011), Production flux of sea spray aerosol, *Reviews of Geophysics*, 49, 39 PP., doi :201110.1029/2010RG000349. 10

Delmas, R, Mégie, G., Peuch, V.-H.: *Physique et Chimie de l'Atmosphère*, éditions Belin, 640 pages, 2005

DeMott, P., K. Sassen, M. Poellot, D. Baumgardner, D. Rogers, S. Brooks, A. Prenni, and S. Kreidenweis, African dust aerosols as atmospheric ice nuclei, *Geophys. Res. Lett.*, 30(14), 1732, doi:10.1029/2003GL017410, 2003

Dietrich, R.V, Impact abrasion of harder by softer materials, *J. Geol*, 85, 242-246, 1977

Dinar, E., A. A. Riziq, C. Spindler, C. Erlick, G. Kiss, and Y. Rudich , The complex refractive index of atmospheric and model humic-like substances (HULIS) retrieved by a cavity ring down aerosol spectrometer (CRD-AS), *Faraday Discussions*, 137, 279–295., 2008

Donaldson, K., Stone, V., Seaton, A., and MacNee, W. : Ambient particle inhalation and the cardiovascular system : potential mechanisms, *Environ. Health Perspect.*, 109, 523–527, 2001.

Draxler, R.R and G.D Rolph : HYSPLIT (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://arl.noaa.gov/ready/hysplit4/html>), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, M.D, 2003

Drewnick, F., Hings, S. S., DeCarlo, P. F., Jayne, J. T., Gonin, M., Fuhrer, K., Weimer, S., Jimenez, J. L., Demerjian, K. L., Borrmann, S., Worsnop, D. R.: A new Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer (ToF-AMS) – Instrument Description and First Field Deployment, *Aerosol Sci. Tech.*, 39, 637–658, 2005.

Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B., King, M., Kaufman, Y., Eck, T and Slutsker, I : Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from AERONET Sun and sky-radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 9791-9806, 2000

Dubovik, O and King., M: A flexible inversion algorithm inversion for retrieval aerosol optical properties from sky and sun radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 20673-20696, 2000

Dubovik, O., Holben, B., Eck, T., Smirnov, A., Holben, B., Kaufman, Y., King, M, Tanre, D and Slutsker, I : Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590-608, 2002

Dubovik, O, Sinyuk, A, Lapyonok, T, Holben, BN, Mishchenko, M, Yang, P, Eck, TF, Volten, H, Muñoz, O, Veihelmann, B, Van der Zande, WJ, Leon, JF, Sorokin, M and Sluster, I: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111:D11208, doi:10.1029/2005JD006 619, 2006

Dubovik, O., M. Herman, A. Holdak, T. Lapyonok, D. Tanr ´ e, J. L. Deuze, F. Ducos, A. Sinyuk, and A. Lopatin: Statistically optimized inversion algorithm for enhanced retrieval of aerosol properties from spectral multi-angle polarimetric satellite observations, *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(5), 975–1018, 2011

Eck, T.F., Holben, B.N., Reid, J.S., Dubovik, O., Smirnov, A., O’Neill, N.T., Slutsker, I and Kinne, S: Wavelength dependence of the optical depth of biomass burning, urban and desert dust aerosols, *J. Geophys. Res.*, 104, D24, 31, 333-31, 349, 1999

Eck, T. F., et al. (2010), Climatological aspects of the optical properties of fine/coarse mode aerosol mixtures, *Journal of Geophysical Research*, 115, 20

Eckardt, F.D and Kuring, N: SeaWiFS identifies dust sources in the Namib Desert, *Int. J. Remote Sens*, 26, 4159-4167, 2005

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Edwards, D. P., L. K. Emmons, J. C. Gille, A. Chu, J.-L. Attie, L. Giglio, S. W. Wood, J. Haywood, M. N. Deeter, S. T. Massie, and D. C. Ziskin, and J. R. Drummond, Satellite-observed pollution from Southern Hemisphere biomass burning, *J. Geophys. Res.*, 111, D14312, doi :10.1029/2005JD006655, 2006
- El-Metwally, M., S. Alfaro, M. A. Wahab, and B. Chatenet, Aerosol characteristic over urban Cairo: Seasonal variations as retrieved from sunphotometer measurements, *J. Geophys. Res.*, 113, D14219, doi:10.1029/2008JD009834, 2008
- Engelstaedter, S., I. Tegen, and R. Washington, North african dust emissions and transport, *Earth-Science Reviews*, 79(1-2), 73–100, 2006
- Engelstaedter, S and Wahsington, R: Atmospheric controls on the annual cycle of North African dust, *J. Geophys. Res.*, 112, D03103, doi: 10.1029/2006JD007195, 2007a
- Engelstaedter, S and Wahsington, R: Temporal controls on global dust emission: the role of surface gustiness, *Geophys. Res. Lett.*, 34, doi: 10.1029/2006JD007195, 2007b
- Fécan, F., B. Marticorena, and G. Bergametti , Parameterization of the increase of the aeolian erosion threshold wind friction velocity due to soil moisture for arid and semi-arid areas, *Ann. Geophysicae*, 17, 149–157, 1999
- Fernald, F.G., Analysis of atmospheric lidar observations - Some comments, *Appl. Opt.*, 1984
- Feng, Q., P. Yang, G.W. Kattawar, C. N. Hsu, S. Tsay, and I. Laszlo, Effects of particle nonsphericity and radiation polarization on retrieving dust properties from MODIS observations, *Journal of Aerosol Science*, 40(9), 776–789, 2009
- Feingold, G., Jiang, H., and Harrington, J. Y. : On smoke suppression of clouds in Amazonia, *Geophysical Research Letters*, 32, 102804, doi :10.1029/2004GL021369, 2005.

- Flamant, C., J.-P. Chaboureau, D. J. Parker, C. M. Taylor, J.-P. Cammas, O. Bock, P. Timouk, and J. Pelon, Airborne observations of the impact of a convective system on the planetary boundary layer thermodynamics and aerosol distribution in the inter-tropical discontinuity region of the West African monsoon, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 133, 1–28, 2007
- Flamant, C., Knippertz, P., Parker, D. J., Chaboureau, J. P., Lavaysse, C., Agustí-Panareda, A and Kergoat, L : The impact of meso-scale convective system cold pool on the northward propagation of the inter-tropical discontinuity over Western Africa, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, doi/10.1002/qj.357
- Formenti, P., J. L. Rajot, K. Desboeufs, F. Sad, N. Grand, S. Chevaillier, and C. Schmechtig , Airborne observations of mineral dust over western africa in the summer monsoon season : spatial and vertical variability of physico-chemical and optical properties, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(13), 6387–6410, 2011
- Fouquart, Y and Bonnel, B : Computation of solar heating of the Earth's atmosphere: A new parametrization, *Contrib. Atmos. Phys.*, 53(1), 35-62, 1980
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Dorland, R. V. : Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. In : *Climate Change 2007 : the physical science basis. Contribution of working group I to the fourth assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)]., IPCC report, 2007.
- Franzen, L.G., Hjelmroos, M., Kallberg, P., Brorstrom-Lunden, E., Junnto, S., Savolainen, A.-L: The 'yellow snow' episode of northern Fennoscandia, March 1991—a case study of long-distance transport of soil, pollen and stable organic compounds. *Atmospheric Environment* 28 Ž22., 3587–3604, 1994

- Garstang, M, Tyson, P.D, Swap, R, Edwards, M, Kalleberg, P, and Lindsay, J.A: Horizontal and vertical transport of air over Southern Africa, *J.Geophys. Res.*, 101, 23721-23736, 1996.
- Ganor, E and Mamane, M : Transport of Saharan dust across the eastern Mediterranean, *Atmos. Env*, 16, 581-587, 1982
- Generoso, S., F.-M. Bréon, Y. Balkanski, O. Boucher, and M. Schulz, Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources, *Atmos.Chem. Phys.*, 3, 1211-1222., 2003
- Gillette, D. A., J. Adams, D. R. Muhs, and R. Khil, Threshold friction velocities and rupture moduli for crusted desert soils for the input of soil particles into the air, *J. Geophys.Res.*, 87 (C11), 9003–9015., 1982
- Gobbi, G.P., Barnaba, F., Giorgi, R and Santacasa, A: Altitude-resolved properties of a Saharan dust event over the Mediterranean, *Atmos. Environ.*, 34, 5119-5127, doi: 10.1016/S1352-2310(00)00194-1, 2002,
- Gomes, L., G. Bergametti, G. Coud' e-Gaussen, and P. Rognon, Submicron desert dusts : A sandblasting process, *Journal of Geophysical Research*, 95(D9), PP. 13,927–13,935, 1990
- Goudie, S.A, Dust storms: Recent developments, *Journal of Environmental Management*, 90, 89-94, 2009
- Goudie, A.S and Middleton, N.J: Sahran dust storms: nature ans consequences, *Earth-Science Reviews*, 56 (1-4), 179-204, 2001
- Ginoux, P., M. Chin, I. Tegen, J. Prospero, B. Holben, O. Dubovik, and S. J. Lin : Global simulation of dust in the atmosphere : Model description and assessment, *Journal of Geophysical Research*, 106, 20,255–20,273, 2001
- Ginoux, P., Prospero, J.M, Torres, O and Chin, M: Long-term simulation of global distribution with the GOCART model: correlation with North Atlantic Oscillation, *Environmental Modelling & Software*, 19, 113-128, 2004

Giorgi, F., M. R. Marinucci, G. T. Bates, and G. D. Canio (1993), Development of a Second-Generation regional climate model (RegCM2). part II : convective processes and assimilation of lateral boundary conditions, *Monthly Weather Review*, 121(10), 2814–2832. 79, 80

Griffin, R., D. Dabdub, and J. Seinfeld, Secondary organic aerosol. 1. Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents, *J. Geophys. Res.*, 107(D17), 4332, doi :10.1029/2001JD000,541, 2002

Griffin, R., D. Dabdub, and J. Seinfeld, 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, 2005

Grini, A., Tulet, P and Gomes, L: Dusty weather forecast using the MesoNH atmospheric model, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:10.1029/2005JD007007, 2005

Hamblin, K and Christiansen, H: *Earth's Dynamic Systems*, chapter 16, Eolian system, Tenth editions, 2001

Hamburger, T., McMeeking, G., Birmili, W., Dall'Osto, M., O'Dowd, C., Flentje, H., Henzing, B., Junninen, H., Kristensson, A., de Leeuw, G., Stohl, A., Burkhardt, J.F, Coe, H., Krejci., R and Petzold, A : Overview of the synoptic and pollution situation over Europe during the EUCAARI-LONGREX field campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 1065-1082, 2011

Hamonou, E., Chazette, P., Bali, D., Dulac, F. Schneider, X., Galani, F., Ancelett, G and Papayanis, A : Characterization of the vertical structure of the Sharan dust transport to the Mediterranean basin, *J. Geophys. Res.*, 104(D22), 256-270, 1999

Hänel, G: the properties of atmospheric aerosols particles as function of the relative humidity at thermodynamic equilibrium with surrounding moist air, *Adv. In. Geophys*, 19, 73-188, 1976

- Haywood, J., Radiative properties and direct radiative effect of saharan dust measured by the c-130 aircraft during SHADE :1. solar spectrum, *Journal of Geophysical Research*, 108(D18), 2003
- Haywood, J et Boucher, O. :Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols : a review, *Review of Geophysics*, 38, 4; 513-543, paper number 1999RG000078, 2000
- Haywood, J. M., et al. (2011), Motivation, rationale and key results from the GERBILS Saharan dust measurement campaign, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(658), 1106–1116
- Herman, J.R and Celarier, E: Earth surface reflectivity climatology at 340-380 nm from TOMS data, *J. Geophys. Res.*, 102(D23), 28, 003-28, 011, 1997a
- Herman, J.R., Bhartia, P.K., Torres, O., Hsu, C., Seftor, C and Celarier, E: Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, 102(D14), 16, 911-16, 922, doi: 10.1029/96JD03680, 1997b
- Hess, M., P. Koepke, and I. Schult, Optical properties of aerosols and clouds : The software package OPAC, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 79(5), 831–844, 1998
- Hill, A. A. and Dobbie, S. : The impact of aerosols on nonprecipitating marine stratocumulus. 2 : The semi-direct effect, *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 134, 1155–1165, 2008
- Holben, B.N., Tanré., D., Smirnov, A., Eck, T.K., Slutsker, I., Abuhassan, N., Newcomb, W.W., Schafer, J.S., Chatenet, B., Lavenue, F., Kaufman, Y.J., Vande Castle., J., Setzer., A., Markham, B., Clark, D., Frouin, R., Haltore, R., Karneli, O'Neill, N.T., Pietras, C., Pinker, R.T., Voss, K and Zibordi, G: An emerging ground-based aerosol climatology: Aerosol optical depth from AERONET, *J. Geophys. Res.*, 106, D11, 12, 067-12, 097, 2001
- Hoyningen-Huene, W. V., T. Dinter, A. A. Kokhanovsky, J. P. Burrows, M. Wendisch, E. Bierwirth, D. Muller, and M. Diouri, Measurements of desert dust

optical characteristics at porte au sahara during SAMUM, *Tellus B*, 61(1), 206–215, 2009

Huffman, G.F., Alder, R.F., Bolvin, D.T., Gu, G., Nelkin, E.J and Bowman, K.P : The TRMM multi-satellite precipitation Analysis : Quasi-Global, Multi-Year, Combined-Sensor Precipitation Estimate a fine scale, *J. Hydrometeor*, 8, 35-55, 2007

Hsu, N.C., Herman, J.R., Torres, O, Holben, B.N., Tanre, D, Eck, T.F., Sirminov, A, Chatenet, B and Lavenu, F: Comparisons of the TOMS aerosol index with Sunphotometer aerosol optical thickness: Result and applications, *J. Geophys. Res.*, 104, 6269-6280, 1999

Hsu, N., S. Tsay, M. King, and J. Herman, Aerosol properties over bright-reflecting source regions, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 42(3), 557–569, 2004

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

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

Ishizuka, M., M. Mikami, Y. Yamada, F. Zeng, and W. Gao, An observational study of soil moisture effects on wind erosion at a Gobi site in the Taklimakan desert, *J. Geophys. Res.*, 110, D18S03, doi :10.1029/2004JD004709, 2005

Israelevich, P.L., Levin, Z., Joseph, J.H and Ganor, E: Desert aerosol transport in the Mediterranean region as inferred from the TOMS aerosol index, *J. Geophys. Res.*, 107(D21), 4572, doi: 10.1029/2001JD002011, 2002

Israelevich, P., E. Ganor, Z. Levin, and J. Joseph, Annual variations of physical properties of desert dust over Israel, *J. Geophys Res.*, 108(D13), 4381, doi:10.1029/2002JD003163, 2003

Iversen, J. D., and B. R. White : Saltation threshold on Earth, Mars and Venus, *Sedimentology*, 29, 111–119, 1982

Jayne, J. T., Leard, D. C., Zhang, X., Davidovits, P., Smith, K. A., Kolb, C. E., and Worsnop, D. R.: Development of an Aerosol Mass Spectrometer for Size and Composition Analysis of Submicron Particles, *Aerosol Sci. Tech.*, 33, 49–70, 2000.

Johnson, B. T., Shine, K. P., and Forster, P. M. : The semi-direct aerosol effect : Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 130, 1407–1422, 2004.

Johnson, B.T and Osborne.,R : Physical and Optical properties of mineral dust aerosol measured by aircraft during GERBILS campaign, *Quarterly Journal of the Meteorological Society*, 137, 1117-1130, 2011

Jones, C., Mahowald, N and Luo, C : The role of easterly waves on African desert dust transport, *J. Climate*, 16, 3617-3628, 2003

Jones, C., Mahowald, N and Luo, C : Observational evidence of African desert dust intensification of easterly waves, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L17208, 2004

Joseph, J., Wiscombe, W and Weinman: The Delta-Eddington approximation for radiative flux transfer, *J. Atmos. Sci.*, 33, 2452-2459, 1976

Jaenicke, R., Tropospheric Aerosols, in *Aerosol-Cloud-Climate Interactions*, 1–27 pp., Academic Press, San Diego. 15, 1993

Kacenenbogen-Tilot, M, Application de la télédétection spatiale à la surveillance de la pollution en aérosols, thèse de doctorat, Université de Lille, 2008

Kandler, K., et al. (2009), Size distribution, mass concentration, chemical and mineralogical composition and derived optical parameters of the boundary layer aerosol at tinfou, morocco, during SAMUM 2006, *Tellus B*, 61(1), 32–50.

Kain, J., and J. Fritsch, Convective parameterization for mesoscale models: The Kain-Fitsch scheme, in *The Representation of Cumulus Convection in Numerical*

Models, AMS Monogr. Ser., vol. 46, edited by K. A. Emanuel and D. J. Raymond, pp. 165–170, Am. Meteorol. Soc., Providence, R. I., 1993

Kaufman, Y. J., D. Tanré, O. Dubovik, A. Karnieli, and L. A. Remer, Absorption of sunlight by dust as inferred from satellite and groundbased remote sensing, *Geophysical Research Letter*, 28(8), PP. 1479–1482, 2001

Kessler, E., On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulations. *Meteor. Monogr.* 32, 84, 1969

Klaver, A., et al. (2011), Physico-chemical and optical properties of sahelian and saharan mineral dust : in situ measurements during the gerbils campaign, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(658), 1193–1210.

Kiehl, J. T., T. L. Schneider, P. J. Rasch, M. C. Barth, and J. Wong, Radiative forcing due to sulfate aerosols from simulations with the national center for atmospheric research community climate model, version 3, *Journal of Geophysical Research*, 105(D1), 2000

Kim, D., M. Chin, H. Yu, T. Eck, A. Smirnov, and B. Holben , Dust optical properties over North Africa and Arabian Peninsula derived from the AERONET dataset, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10,733–10,741, 2011

Kinne, S., et al. (2003), Monthly averages of aerosol properties : A global comparison among models, satellite data, and AERONET ground data, *Journal of Geophysical Research*, 108, 42

Klein et al (2010), Saharan dust and ice nuclei over Central Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 10211-10221

Klett, J. D., Stable analytical inversion solution for processing lidar returns. *Appl. Opt.*, 20, 211-220, 1981

Klett, J. D., Lidar inversion with variable backscatter/extinction ratios. *Appl. Opt.*, 24, 1638-1643, 1985

Knippertz, P: Dust emission in the West African heat through-the role of the diurnal cycle and of extratropical disturbance , *Meteorol. Z.*, 17, 1-11, 2008

- Koch, D. and Genio, A. D. D. : Black carbon semi-direct effects on cloud cover : review and synthesis, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 7685–7696, 2010
- Köhler, H., The nucleus in the growth of hygroscopic droplets, *Trans. Faradar. Soc.*, 32, 1152-1161., 1936
- Koren, I., Joseph, J.H and Israelevich, P.L: Detection of dust plumes ans their sources in northeastern Libya, *Can. J. Remote Sens.*, 29(6), 792-796, 2003
- Koren, I., J. V. Martins, L. A. Remer, and H. Afargan, Smoke invigoration versus inhibition of clouds over the amazon, *Science*, 321, 2008
- Krekov, G., *Aerosols effects on climate*, University of Arizona, Tuscon, 1993
- Kubilay, N., T. Cokacar, and T. Oguz, Optical properties of mineral dust outbreak over the northeastern Mediterranean, *J. Geophys. Res.*, 108(D21), 4666, doi:10.1029/2003JD003798, 2003
- Kumala, M., Asmi, A., Lappalainen, H.K., Carslaw, K.S., Pöschl, U., Baltenspergerger, U., Hov, ø., Brenguier, 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 (EUCAARI)-intergrating aerosol research from nano to global scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2825-2841, 2009
- Kulmala et al (2011) : General overview: European Integrated project on Aerosol Cloud Climate and Air Quality interactions (EUCAARI) – integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 13061-13143, 2011
- 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.VG: The Meso-NH atmospheric simulation system, Part I: adiabatic formulation and control simulations, *Ann. Geophys.* 16, 90-109, 1998
- Laurent, B., B. Marticorena, G. Bergametti, J. F. Léon, and N. M. Mahowald, Modeling mineral dust emissions from the sahara desert using new surface properties and soil database, *Journal of Geophysical Research*, 113(D14), 2008

- Lohmann, U., and J. Feichter, Global indirect aerosol effects : a review, *Atmos. Chem. Phys.*, 5(3), 715–737., 2005
- Lenoble, J, Atmospheric radiative transfert, A Deepak Publishing, Hampton, 532 pages, 1993
- Lesins, G., A study of internal and external mixing scenarios and its effect on aerosol optical properties and direct radiative forcing, *Journal of Geophysical Research*, 107(D10). 14, 2002
- Levelt, P and the OMI Science Team, Science Requirement Document for OMI-EOS, Report RS-OMIE-KMNI-001, KMNI, De Bilt, The Netherlands, December 2000
- Levin Z., E. Ganor, and V. Gladstein, The effects of desert particles coated with sulfate on rain formation in the eastern Mediterranean, *J. Appl. Meteor.*, 35, 1511-1523, 1996.
- Liousse, C., et al. (2004), Deriving global quantitative estimates for spatial and temporal distributions of biomass burning emissions, in *Emissions of atmospheric trace compounds*, edited by C. Granier, P. Artaxo, and C. E. Reeves, chap. 3, Kluwer Academic Publ. 10, 43, 118
- Madronich, S., and G. Weller, Numerical integration errors in calculated tropospheric photodissociation rate coefficients, *J. Atmos. Chem.*, 10, 289-300, 1990
- Malavelle, F: Effets direct et indirect des aérosols en Afrique de l'ouest pendant la saison sèche, thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2011
- Mallet, M., J. C. Roger, S. Despiou, O. Dubovik, and J. P. Putaud, Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE, *Atmospheric Research*, 69(1-2), 73–97, 2003
- Mallet, M., J. C. Roger, S. Despiou, J. P. Putaud, and O. Dubovik, A study of the mixing state of black carbon in urban zone, *Journal of Geophysical Research*, 109, 11 PP. 14, 2004

- Mallet, M., Pont, V., Lioussé, C., Gomes, L., Pelon, J., Osborne, S., Haywood, J., Roger, J. C., Dubuisson, P., Mariscal, A., Thouret, V., and Goloub, P. : Aerosol direct radiative forcing over Djougou (northern Benin) during the African Moosoon Multidisciplinary Analysis dry season experiment (special observation Period-0, *Journal of Geophysical Research*, 113, doi :10.1029/2007JD009419, 2008.
- Mallet, M., Tulet, P., Serça, D., Solmon, F., Dubovik, O., Pelon, J., Pont, V and Thourou : Impact of dust aerosols on the radiative budget, surface heat fluxes, heating rate profiles and convective activity over West Africa during March 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7143-7160, 2009
- Manzato, A : The 6 h climatology of thunderstorms and rainfalls in the Friuli Venezia Giulia Plain, *Atmospheric Research*, 83, 2-4, 336-348, 2007
- Mahowald, N.M., Bryant, R.G., Del Corra, J and Steinberger, L: Ephemeral lakes and dust sources, *Geophys. Res. Lett.*, 30(2), 1074, doi:10.1029/2002GL016041, 2003
- Marenco, A., J. C. Medale, and S. Prieur, Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOZ and TROPOZ campaigns, *Atmos. Environ.*, 11, 2823-2834., 1990
- Mari., C, Jacob, D. and Bechtold, P : Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.*, 105, 255-263, 2000
- Maring, H., D. L. Savoie, M. A. Izaguirre, L. Custals, and J. S. Reid , Mineral dust aerosol size distribution change during atmospheric transport, *Journal of Geophysical Research*, 108, 2003
- Marley, N.A, Graffney, S.G, Baird, J.C, Blazer, C.A, Drayton, P.J, and Frederick, J.E : An empirical method for the determination of the complex radiative index of size fractionated aerosols for radiative transfer calculation, *Aerosol. Sci. Technol*, 34, 535-549, 2001

- Martcorena, B and Bergametti, G: Modeling of the atmospheric dust cycle: 1.Design of a soil derived dust emission scheme, *J. Geophys. Res.*, 100, 16415-16429, 1995
- Martin, J.H., Fitzwater, S.E : Iron-deficiency limits phytoplankton growth in the northeast Pacific subarctic. *Nature* 331 (6154), 341–343, 1988
- Martins, J. V., P. Artaxo, C. Liousse, J. S. Reid, P. V. Hobbs, and Y. J. Kaufman, Effects of black carbon content, particle size, and mixing on light absorption by aerosols from biomass burning in Brazil, *Journal of Geophysical Research*, 103(D24), PP. 32,041–32,050, 1998
- Martins, J. V., P. Artaxo, Y. J. Kaufman, A. D. Castanho, and L. A. Remer, Spectral absorption properties of aerosol particles from 350-2500nm, *Geophysical Research Letter*, 36, 5, 2009
- M. Masmoudi, M. Chaabane, D. Tanre´ , P. Gouloup, L. Blarel and F. Elleuch : Spatial and temporal variability of aerosol: size distribution and optical properties, *Atmospheric Research*, 66, 1– 19, 2003
- Masson, V., A physically-based scheme for the urban energy balance in atmospheric models, *Boundary-Layer Meteorology*, 94, 357-397, 2000
- Masson, V., J. Champeaux, F. Chauvin, C. Meriguet, and R. Lacaze, A global database of land surface parameters at 1-km resolution in meteorological and climate models, *Journal of Climate*, 16 (9), 1261-1282, 2003
- Matsuki, A., Schwarzenboeck, A., Venzac, H., Laj, P., Crumeyrolle, S., and Gomes, L.: Cloud processing of mineral dust: direct comparison of cloud residual and clear sky particles during AMMA aircraft campaign in summer 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 1057–1069, doi:10.5194/acp-10-1057-2010, 2010.
- Matthias, V., et al. (2004), Vertical aerosol distribution over Europe: Statistical analysis of Raman lidar data from 10 European Aerosol Research Lidar Network (EARLINET) stations, *J. Geophys. Res.*, 109, D18201, doi:10.1029/2004JD004638

Mattis, I., Ansmann, A., Müller, D., Wandinger, U and Althausen, D: Dual-wavelength Raman lidar observations of the extinction-to-backscatter ratio of Saharan dust, *Geophys. Res. Lett.*, 29(9),1306, doi: 10.1029/2002GL014721, 2002

McConnell, C. L., et al. (2008), Seasonal variations of the physical and optical characteristics of Saharan dust : Results from the Dust Outflow and Deposition to the Ocean (DODO) experiment, *Journal of Geophysical Research*, 113, 19

McConnell, C. L., P. Formenti, E. J. Highwood, and M. A. J. Harrison, Using aircraft measurements to determine the refractive index of saharan dust during the dodo experiments, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(6), 3081–3098, 2010

McNaughton, C. S., Clarke, A. D., Howell, S. G., Pinkerton, M., Anderson, B., Hornhill, L. T., Hudgins, C., Winstead, E., Dibb, J. E., Sceuer, E., and Maring, H.:Results from the DC-8 Inlet Characterization Experiment (DICE): Airborne Versus Surface Sampling of Mineral Dust and Sea Salt Aerosols, *Aerosol Sci. Tech.*, 41, 136–159, 2007.

McPeters, R.D., Bhartia, P.K., Krueger, A.J., Herman, J.R., Wellemeyer, C.G., Seftor, C.J., Jaross, G., Torres, O., Moy, L., Labow, G., Bierly, S.L., Taylor, W., Swissler, T., et Cebula, R.P. Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data Products User's Guide. NASA, 1998.

Measures, R. M. (1984), *Laser Remote Sensing*, Wiley-Interscience, New York, pp 217.

Metzger, S., F. Dentener, S. Pandis, and J. Lelieveld, Gas/aerosol partitioning : 1. A computationally efficient model, *J. Geophys. Res.*, 107(D16), doi :10.1029/2002GL014,769, 2002

Miller, R. L., and I. Tegen, Climate response to soil dust aerosols, *Journal of Climate*, 1998

- Mishchenko, M. I., L. D. Travis, and D. W. Mackowski (1996), T-matrix computations of light scattering by nonspherical particles : A review, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 55(5), 535–575, 1996
- Mitchell, R.M, Campbell, S.K, and Qin, Y : Recent increase in aerosol loading over the Australian arid zone, *Atmos. Chem. Phys*, 10, 1689–1699, 2010
- Mona, L., Amodeo, A., Pandofi, M and Pappalardo, G: Saharan dust intrusion in the Mediterranean area: Three years of Raman lidar measurements, *J. Geophys. Res.*, 111, D16203, doi:10.1029/2005JD006569, 2006
- Mondelain, D : LIDAR linéaire et non-linéaire dans l’infra-rouge moyen, these de doctorat, Université de Lyon I, 2001
- Mondon, S., and J. L. Redelsperger , 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, 1998
- Morcette, J and Fouquart, Y: The overlapping of cloud layers in shortwave radiation parametrization, *J. Atmos. Sci.*, 43(4), 321-328, 1996
- Moulin, C and Chiapello, I: Evidence of the control of summer atmospheric transport over African dust over Atlantic by Sahel sources from TOMS satellites (1979-2000), *Geophys. Lett. Res.*, 31, doi: 10.1029/2003GL018931, 2004
- Moulin, C., Lambert, C.E., Dayan, U., Ramonet, M., Bouquet, P., Legrand, M., Balkansky, Y.J., Guelle, W., Marticorena, B and Dulac, F: Satellite climatology of African dust transport in the Mediterranean atmosphere, *J. Geophys. Res.*, 103(D11), 13, 137-13, 144, 1998
- Moosmüller, H., R. Chakrabarty, and W. Arnott, Aerosol light absorption and its measurement : A review, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 110(11), 844–878, 2009
- Müller, D., Mattis, I., Wandinger, U., Ansmann, A and Althausen, D: Saharan dust over a central European EARLINET-AERONET site: Combined observations

with Raman lidar and Sun Photometer, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 4345, doi: 10.1029/2002JD002918, 2003

Müller, T., Schladitz, A., Kandler, K., and Wiedensohler, A.: Spectral particle absorption coefficients, single scattering albedos, and imaginary parts of refractive indices from ground-based in-situ measurements at Cape Verde Island during SAMUM-2. *Tellus* **63B**, 2011

Nakajima, T., Sekiguchi, M., Takemura, T., Uno, I., Higurashi, A., Kim, D., Sohn, B. J., Oh, S. N., Nakajima, T. Y., Ohta, S., Okada, I., Takamura, T., and Kawamoto, K. :Significance of direct and indirect radiative forcings of aerosols in the East China Sea region, *Journal of Geophysical Research*, 108, 8658, doi :10.1029/2002JD003261, 2003.

Nowottnick , E, P. Colarco , A. da Silva , D. Hlavka , and M. McGill : The fate of saharan dust across the atlantic and implications for a central american dust barrier, *Atmos. Chem. Phys*, 11, 8415-8431, 2011

Nemmar, A., Hoet, P.H, Dinsdale, D., Vermeylen, J., Hoylelaerts, M.F, and Nemery, B.: Diesel exhaust particles in lung acutely enhance experimental peripheral thrombosis circulation, 107, 1202-1208, 2003

Noel, V., Winker, D.M., Garrett, T.J and McGill, M: Extinction coefficients retrieved in deep tropical ice clouds from lidar observations using a CALIPSO-like algorithm compared to in-situ measurements from the cloud integrating nephelometer during CRYSTAL-FACE, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1415-1422, 2007

Noilhan, J., and S. Planton, A simple parameterization of land surface processes for meteorological models, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 536-549, 1989

Orville. R and Silver., C, Lightning Ground Flash Density in the Contiguous United States: 1992-95, *Monthly weather review*, 125, 631-638, 1996

Osborne, S., and J. Haywood, Aircraft observations of the microphysical and optical properties of major aerosol species, *Atmospheric Research*, 73(3-4), 173-201, 2005

Osborne, S., B.T., Johnson., J., Haywood., A. Baran., M., Harrison and C.L., McConnell: Physical and Optical properties of mineral dust aerosol during the Dust and Biomass-burning experiment, *J. Geophys. Res.*, 113, doi:1029/2007JD009551, 2008

Otto, S., T. Trautmann, and M. Wendisch, On realistic size equivalence and shape of spheroidal saharan mineral dust particles applied in solar and thermal radiative transfer calculations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(9), 4469–4490, 2011

Ozer, P. : Les lithométéores en region Sahélienne, *Revue internationale d'écologie et de géographie tropicale*, 24, 1-317, 2001

Pandithurai, G., S. Dipu, K. K. Dani, S. Tiwari, D. S.Bisht, P. C. S. Devara, and R. T. Pinker, Aerosol radiative forcing during dust events over new delhi, india, *Journal of Geophysical Research*, 113, 13 PP, 2008

Papayannis, A., Amiridis, V., Mona, L., Tsaknakis, G., Balis, D., Bösenberg, J., Chaikovski, A., De Tomasi, F., Grigorov, I., Mattis, I., Mitev, V., Müller, D., Nickovic, S., Pérez, C., Pietruczuk, A., Pisani, G., Ravetta, F., Rizi, V., Sicard, M., Trickl, T., Wiegner, M., Gerding, Manouri, R.E., D'Amico, G and Pappalardo, G: Systematic lidar observations of Saharan dust over Europe in the frame of EARLINET (2000-2002), *J. Geophys. Res.*, 113, D10204, doi:10.1029/2007JD009028, 2008

Pappalardo, G., Wandinger, Ulla., Mona, L., Hiebsch, A., Mattis, I., Amodeo, A., Ansmann, A., Seifert, P., Linné, H., Apituley, A., Arboledas, L.A., Balis, D., Chaikovsky, A., D'Amico, G., De Tomasi, F., Freudenthaler, V., Giannakaki, E., Giunta, A., Grigorov, I., Iarlori, M., Madonna, F., Mamori, R-E., Nasti, L., Papayannis, A., Pietruczuk, A., Pujadas, M., Rizi, V., Rocadenbosch, F., Russo, F., Scnell, F., Spinelli, N., Wang, X and Wieger, M: EARLINET correlative measurements for CALIPSO: First intercomparison results, *J. Geophys. Res.*, 115, D00H19, doi:10.1029JD012147, 2010

- Patterson, E. M, Optical properties of the crustal aerosol : Relation to chemical and physical characteristics, *Journal of Geophysical Research*, 86(C4), PAGES 3236–3246,15, 1981
- Petit, R. H., M. Legrand, I. Jankowiak, J. Molinié, C. Asselin de Beauville, G. Marion, and J. L. Mansot , Transport of Saharan dust over Caribbean Island : study of an event , *J. Geophys. Res.*, 110, doi:10.1029/2004JD004748, 2005
- Péré, J.C: Simulation de l’impact radiatif des aerosols en Europe, thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2010
- Perrone, M.R, Santese, M., Tafuro, A.M., Holben, B and Smirnov, A: Aerosol load characterization over South-East Italy for one year of AERONET sun-photometer measurements, *Atmos. Res.*, 75, 111-133, 2005
- Perry, K.D, Cahill, T.A, Eldred, R.A, Dutcher, D.D, and Gill, T.E: Long-range of North African dust to the eastern United States, *J. Geophys. Res.*, 102, D(10), 225-238, 1997
- Petzold, A., et al. (2009), Saharan dust absorption and refractive index from aircraft-based observations during SAMUM 2006, *Tellus, Ser. B*, 61, 118–130.
- Pinty, J and Jabouille, P: A mixed-phase cloud parametrization for use in mesoscale non hydrostatic model: simulations of a squall line and of orographic precipitations, *Conference of Cloud Physics Evrett, WA, USA*, pp. 217-220, 1998
- Platt, CMR: LIDAR and radiometric observations of cirrus clouds, *J. Atmos. Sci*, 30, 1191-1204, 1973
- Prenni et al (2007) : Examination of ice formation processes in Florida cumuli using ice nuclei measurements of anvil ice crystal particle residues, *J. Geophys. Res.*, 112, doi: 10.1029/2006JD007549, 2007
- Prezerakos, N. G., S. C. Michaelides, and A. S. Vlassi, Atmospheric synoptic conditions associated with the initiation of north-west African depression, *Int. J. Climatol.*, 10, 711 –729, 1990

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Priestley, C. H. B., Turbulent transfer in the lower atmosphere, University of Chicago Press, 130, 1959
- Prodi, F and Fea, G: A case of transport of Saharan dust over the Italian peninsula and Southern Europe, *J. Geophys. Res.*, 84, C11, 6951-6960, 1989
- Prospero, J.M., Ginoux, P., Torres, O., Nicholson, S.E and Gill, T.E: Environmental characterization of global sources of atmospheric soil dust identified with the NIMBUS 7 Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) absorbing aerosol product, *Rev. Geophys.*, 40(1), 102, doi:10.1029/2000RG000095, 2002
- Prospero, J.M, Glaccum, R.A and Nees, R.T: Atmospheric transport of soil dust from Africa to South America, *Nature*, 289, 570-572, 1981
- Pruppacher, H., and J. Klett, *Microphysics of Cloud and Precipitation*, 2d ed. Kluwer Academic Publishers, 1997
- Ramanathan, V., P. J. Crutzen, J. T. Kiehl, and D. Rosenfeld , Aerosols, climate, and the hydrological cycle, *Science*, 294(5549), 2119 –2124, 2001
- Ramgolam, K., Favez, O., Cachier, H., Gaudichet, A., Marano, F., Martinon, L., and Baeza-Squiban, A. : Size-partitioning of an urban aerosol to identify particle determinants involved in the proinflammatory response induced in airway epithelial cells, *Particle and Fibre Toxicology*, 6 :10, doi :10.1186/1743-8977-6-10, 2009.
- Redelsperger, J.-L., et al. (2006), Amma, une étude multidisciplinaire de la mousson ouestafricaine, *La meteorologie*, 54
- Reid, J. S., and P. V. Hobbs, Physical and optical properties of young smoke from individual biomass fires in Brazil, *Journal of Geophysical Research*, 103(D24), 1998
- Reid, J. S., et al. (2003), Analysis of measurements of saharan dust by airborne and groundbased remote sensing methods during the puerto rico dust experiment (pride), *Journal of Geophysical Research*, 108(D19),

Reiff, J., Forbes, G.S., Spieksma, F.T.M. and Reynders, J.J: African dust reaching north-western Europe: a case study to verify trajectory calculations. *Journal of Climate and Applied Meteorology* 25, 1543–1567, 1986

Revel-Rolland, M, De Deckker, Delmonte, B, Hesse, P.P, Magee, J.W, Basile-Doelsch, Grousset, F and Bosch, D: Eastern Australia: A possible source of dust in East Antarctica interglacial ice, *Earth and Planetary Science Letters*, 249, 1-13, 2006

Roberts G.C., P. Artaxo, J. Zhou, E. Swietlicki and M.O. Andreae. Sensitivity of CCN spectra on chemical and physical properties of aerosol: A case study from the Amazon Basin. *J Geophys Res*, 107 (D20), Art. No. 8070, 2002.

Roberts, G.C and A. Nenes : A Continuous-Flow Streamwise Thermal-Gradient CCN Chamber for Atmospheric Measurements, *Aerosol Science and Technology*, 1–16, 2005

Roger, J. C., Mallet, M., Dubuisson, P., Cachier, H., Vermote, E., Dubovik, O., and Despiiau, S. : A synergetic approach for estimating the local direct aerosol forcing : Application to an urban zone during the Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution et de Transport d’Emission (ESCOMPTE) experiment, *Journal of Geophysical Research*, 111, d13208, doi :10.1029/2005JD006361, 2006

Rosenfeld, D., Rudich, Y and Lahav, R: Desert dust suppressing precipitation: A possible desertification loop, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 98, 5975-5980, 2002

Salgado, R., and P. L. Moigne , Coupling of the Fake model to the surfex externalized surface model, *Boreal Environment Research*, 15,ISSN 1239-6095, 2010

Sander, R : Modeling atmospheric chemistry : Interactions between gas-phase species and liquid cloud/aerosol particles, *Surv. Geophys.*, 20, 1-31, 1999.

Sandu, I., J. L. Brenguier, O. Geoffroy, O. Thouron, and V. Masson (2008), Aerosol impacts on the diurnal cycle of marine stratocumulus, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 65, 2705-2718, doi :10.1175/2008JAS2451, 2008.

- Schaap, M., Apituley, A., Timmermans, R.M.A., Koelemeijer, R.B.A and de Leeuw, G: Exploring the relation between aerosol optical depth and PM_{2.5} at Cabauw, the Netherlands, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 909-925, 2009
- Schepanski, K., I. Tegen, B. Laurent, B. Heinold, and A. Macke (2007), A new Saharan dust source activation frequency map derived from MSG-SEVIRI IR-channels, *Geophysical Research Letter*, 34, 2007
- Schepanski, K., I. Tegen, and A. Macke, Saharan dust transport and deposition towards the tropical northern Atlantic, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(4), 1173–1189, 2009
- Schepanski, K, Tegen, I and Macke, A: Comparison of satellite based observations of Saharan dust source areas, *Remote Sensing of Environment*, 123, 90-97, 2012
- Schmidt, K. S., Pilewskie, P., Bergström, R., Coddington, O., Redemann, J., Livingston, J., Russell, P., Bierwirth, E.,Wendisch, M., Gore, W., Dubey, M. K., and Mazzoleni, C. : A new method for deriving aerosol solar radiative forcing and its first application within MILAGRO/INTEX-B, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 10, 2731–2767, 2010.
- Seinfeld, J and Pandis, S: *Atmospheric Chemistry and Physics*. Wiley Interscience Pub, 1998
- Shao, Y.: Northeast Asia dust storms: real-time numerical prediction and validation, *J. Geophys. Res.*, 108 (22D), 4691, doi:10.1029/2003JD003667, 2003
- Shure, K., Mari, C., Bates, T., Johnson, J., Rosset, R., Wang, Q., Bandy, A., Blake, D., Businger, S., Eisels, F., Huebert, B., Kok, G., Mauldin, R.I., Prevot, A., Schillawski, R., Tanner, D and Thornton, D: Physico-chemical modeling of the first Aerosol Characterization Experiment (ACE 1) Lagrangian B, 1.A moving column approach, *J. Geophys. Res.*, 103, 16433-16455, 1998
- Schütz L. and M. Seibert. Mineral aerosols and source identification. *J. Aerosol Sci.* 18(1):1–10, 1987

- Slinn, W: Atmospheric sciences and power production, Precipitation Scavenging. U.S, Departement of Energy, Washington, D.C. chap. 11, 1979
- Slingo, A., et al. (2006), Observations of the impact of a major saharan dust storm on the atmospheric radiation balance, *Geophysical Research Letter*, 33.
- Solmon, F., M. Mallet, N. Elguindi, F. Giorgi, A. Zakey, and A. Konaré, Dust aerosol impact on regional precipitation over western africa, mechanisms and sensitivity to absorption properties, *Geophysical Research Letters*, 35(24), 2008.
- Sow, M., S. C. Alfaro, and J. L. Rajot, Comparison of the size-resolved dust emission fluxes measured over a sahelian source with the dust production model (DPM) predictions, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 11(4), 11,077–11,107, 2011
- Steiner, A.L and Chameides, W.L : Aerosol induced thermal effect increase modeled terrestrial photosynthesis and transpiration, *Tellus*, 57B, 404-411, 2005
- Stevens, B., and G. Feingold, Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system, *Nature*, 461(7264), 607–613, 2009
- Stohl, A., et al. (2011), Determination of time- and height-resolved volcanic ash emissions and their use for quantitative ash dispersion modeling : the 2010 eyjafjallajökull eruption, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(9), 4333–4351, 10
- Sun, H., L. Biedermann, and T. C. Bond (2007), Color of brown carbon : A model for ultraviolet and visible light absorption by organic carbon aerosol, *Geophysical Research Letter*, 34(17).
- Tanaka, T and Chiba, M: A numerical study of contributions of dust source region to the global dust budget, *Global and Planetary changes*, 52, 88-104, 2006
- Tanré, D., F. M. Bréon, J. L. Deuzé, M. Herman, P. Goloub, F. Nadal, and A. Marchand, Global observation of anthropogenic aerosols from satellite, *Geophysical Research Letter*, 28(24), 4555–4558., 2001

Tanré, D., et al. (2001a), Climatology of dust aerosol size distribution and optical properties derived from remotely sensed data in the solar spectrum, *Journal of Geophysical Research*, 106(D16), PP. 18,205–18,217

Tanré, D., J. Haywood, J. Pelon, J. F. Léon, B. Chatenet, P. Formenti, P. Francis, P. G. Abd E. J. Highwood, and G. Myhre, Measurement and modeling of the Saharan dust radiative impact : Overview of the Saharan Dust Experiment (SHADE), *J. Geophys. Res.*, 108(D18), 2003

Tegen, I., and A. A. Lacis, Modeling of particle size distribution and its influence on the radiative properties of mineral dust aerosol, *J. Geophys. Res.*, 101, 19,237–19,244, 15, 1996

Thorncroft, C. D., and H. A. Flocas , A case study of Saharan cyclogenesis, *Mon. Weather Rev.*, 125, 1147– 1165, 1997

Todd, M.C., Bou Karam, D., Cavazos, C., Bouet, C., Heinold, B., Baldasano, J.M., Cautenet, G., Koren, I., Perez., C., Solomon, F., Tegen, I., Tulet, P., Washington, R and Zakey, A: Quantifying uncertainty in estimates of mineral dust flux: An intercomparison of model performance over the Bodélé Depression northern Chad, *J. Geophys. Res.*, 113, D24107, doi:10.1029/2008JD010476, 2008

Torres, O., Bhartia, PK., Herman, JR and Ahmad, Z: Derivation of aerosol properties from satellite measurements of backscattered ultraviolet radiation. Theoretical basis, *J. Geophys. Res.*, 103, 17 099-17 110, 1998

Torres, O., Barthia, PK., Herman, JR., Sinyuk, A and Holben, B: A long term record of aerosol optical thickness from TOMS observations and comparison to AERONET measurements, *J. Atmos. Sci.*, 59, 398-413, 2002a

Torres, O., Decae, R., Veefkind, J.P and de Leeuw, G: OMI Aerosol Retrieval Algorithm, Algorithm Theoretical Baseline Document: Clouds, Aerosols, and Surface UV Irradiance, P. Stammes (ed), Vol. III, ATBD-OMI-03, Version 2.0, Aug.2002b

Torres, O., Tanskanen, A., Veihelmann, B., Ahn, C., Braak, R., Bhartia, P. K., Veefkind, P., et Levelt, P. Aerosols and surface UV products from Ozone

Monitoring Instrument observations : An overview. *J. Geophys. Res.*, 112(D24S47),. doi :10.1029/2007JD008809, 2007

Tost, H., P. Jockel, A. Kerckweg, R. Sander, and J. Lelieveld , Technical note: A new comprehensive scavenging submodel for global atmospheric chemistry modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 565–574, 2006

Trochkin D., Y. Iwasaka, A. Matsuki, M. Yamada, Y. S. Kim, T. Nagatani, D. Zhang, G. Y. Shi and Z. Shen. Mineral aerosol particles collected in Dunhuang, China, and their comparison with chemically modified particles collected over Japan, *J. Geophys. Res.*, 108, 8642, doi:10.1029/2002JD003268, 2003

Trigo, I. F., G. R. Bigg, and T. D. Davies , Climatology of cyclogenesis mechanisms in the Mediterranean, *Mon. Weather Rev.*, 130, 549– 569., 2002

Tulet, P., V. Crassier, F. Solmon, D. Guedalia, and R. Rosset, 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., A. Grini, R. Gri_n, and S. Petitcol, Orilam-soa : A computationally efficient model for predicting secondary organic aerosols in 3d atmospheric models., *J. Geophys. Res.*, 111, doi :10.1029/2006JD007152, 2006

Tulet, P., Crahan-Kahu, K., Leriche, M. Aouizerats, B and Crumeyrolle, S: Mixing of dust aerosols into a mesoscale convective system Generation, filtering and possible feedbacks on ice anvils, *Atmos. Res.*, 96, Issues 2-3, 302-314, 2010

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 MesonNH-C model and validation on the Escompte campaign, *J. Geophys. Res.*, 110, doi:10.1029/2004JD005716, 2005

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

- Tyson, P.D, M. Garstang, A.M. Thompson, P.D'Abreton, R.D. Diab and E.V. Browell : Atmospheric transport and photochemistry of ozone over central southern Africa during the southern Africa Fire Atmosphere Research Initiative, *J. Geophys. Res.*, 102, 10, 623-10, 635, 1997
- Twohy, C. H., M. D. Petters, J. R. Snider, B. Stevens, W. Tahnk, M. Wetzel, L. Russell, and F. Burnet , Evaluation of the aerosol indirect effect in marine stratocumulus clouds : Droplet number, size, liquid water path, and radiative impact, *Journal of Geophysical Research*, 110(D8), 2005
- Twomey, S. , The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 34, 1149–1152., 1977
- Tyson, P, Odada, E, Schultze, R and Vogel, C : Regional change linkages : Southern Africa In *Global-Regional linkages in earth system*, IGBP series, 3-73, 2002
- Van Ulden, A.P and Wieringa, J: Atmospheric boundary layer research at Cabauw, *Boundary layer Meteorology*, 78, 39-69, 1996
- Veihlmann, B., Levelt, P.F., Stammes, P. and Veeffkind, J.P: Simulation study of the aerosol information content in OMI spectral reflectance measurements, *Atm. Chem. Phys.*, 7, 3115-3127, 2007
- Verhaege, C : Restitution de l'indice de refraction complexe et de la granulométrie d'une population de particules sphériques à partir de l'indice de diffusion de la lumière, thèse de doctorat, Université Blaise Pascal, 2008
- Warner J. and S. Twomey, The production of cloud nuclei by cane fires and the effect on cloud droplet concentration, *J. Atmos. Sci.*, 24, 704–706, 1967.
- Warren et al (2007): Dust-raising in the dustiest place on Earth, *Geomorphology*, 92, 25-37
- Washington, R and Todd, M.C: Atmospheric control on mineral dust emission from the Bodélé depression, Chad: the role of the low level jet, *Geophys. Res. Lett*, 32, doi: 10.1029/2005GL023597, 2005

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Washington, R., Todd, M.C, Engelstaedter, S, M'Bainayel, S and Mitchell, F: Dust and the low level circulation over the bodele depression , Chad: Observations from Bodex 2005, J. Geophys. Res, 111, doi: 10.1029/2005JD006502, 2006
- Washington, R., M. Todd, N. J. Middleton, and A. S. Goudie, Duststorm source areas determined by the Total Ozone Monitoring Spectrometer and surface observations, *Ann. Assoc. Am. Geogr.*, 93(2), 297– 313, 2003
- Webb, N.P, McGowan, H.A, Phinn, S.R and McTainsh, G.H: AUSEM (AUStralian Land Erodibility Model): a tool for identifying wind erosion hazard in Auustralia, *Geomorphology*, 78, 179-200, 2006
- Wellman, H.W and A.T Wilson: Salt Weathering: A neglected geological erosive agent in costal and arid environments, *Nature*, 1965
- Werner, M., Tegen, I., Harrison, S.P., Kohfeld, K.E., Prentice, I.C., Balkanski, Y., Rodhe, H., Roelandt, C: Seasonal and interannual variability of the mineral dust cycle under present and glacial climate conditions. *J. Geophys. Res.* 107 (D24), 4744. doi:10.1029/2002JD002365, 2002
- Westphal, D.L., Toon, O.B and Carlson, N : A two dimensional numerical investigation of the dynamics and microphysics of Saharan dust storms, *J. Geophys. Res.*, 92(D3), 3027-3049, 1987
- White, B. R., Soil transport by winds on Mars, *J. Geophys. Res.*, 84, 4643–4651, 1979
- Winker, D.M and Hund, B : First results from CALIOP , Proc. Third symposium on LIDAR applications, 87th AMS annual meeting, Texas, 2007
- Wurzler, S., R. G. Reisin, and Z. Levin, Modification of mineral dust particles by cloud processing and subsequent effects on drop size distributions, *Journal of Geophysical Research*, 105(D4), 4501–4512, 2000

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

Xuan, J, Sokolik, I.N, Hao, J., Guo, F, Mao, H and Yang, G: Identification and characterization of atmospheric mineral dust in East Asia, *Atmos. Env*, 38, 6239-6252, 2004

Yin Y., S. Wurzler, Z. Levin and T. G. Reisin. Interactions of mineral dust particles and clouds: Effects on precipitation and cloud optical properties, *J. Geophys. Res.*, 107, 4724, doi:10.1029/2001JD001544, 2002.

Zender, C., Bian, H and Newman, D: The mineral dust entrainment and deposition (dead) model: description and global dust distribution, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4416, doi:10.1029/2002JD002775, 2003

Zhang, B., Tsunekawa, A and Tsubo, M: Contributions of sandy lands and stony desert to long-distance dust emission in China and Mongolia during 2000-2006, *Global Planet. Change*, 60, 487-504, 2008

Zhuang H., C.K. Chan, M. Fang and A.S. Wexler. Size distributions of particulate sulfate, nitrate, and ammonium at a coastal site in Hong Kong. *Atmospheric Environment*, Vol. 33, 6, pp. 843-853(11), 1999.

ANNEXE

Annexe A : Paramétrisation des aérosols désertiques par le modèle DEAD

Les modèles actuels destinés à la modélisation des émissions désertiques (DEAD, RegCM, RAMS) sont basés sur les connaissances actuelles des processus physiques mis en jeu dans la production des aérosols désertiques décrit au chapitre 2. Ainsi, les schémas d'émission qui ont été développés pour la modélisation des émissions d'aérosols désertiques, représentent numériquement les processus de saltation et de sandblasting.

A.1 Vitesse de friction seuil

La vitesse de friction seuil U_t^* est un élément clé dans les processus d'émission d'aérosols désertiques puisqu'elle contrôle à la fois la fréquence et l'intensité des émissions. Le seuil d'érosion est fonction du diamètre des grains du sol D_p , de la rugosité de surface R_g et de l'humidité du sol W . Dans des conditions idéalisées, c'est-à-dire pour une surface lisse et un sol meublé et sec, la vitesse de friction seuil $U_t^*(D_p)$ peut être déterminée en utilisant la formulation de Marticorena et Bergametti (1995), qui consiste en l'ajustement d'une expression empirique en fonction du diamètre de la particule :

Pour $0.03 \leq Re_t^* \leq 10$:

$$\tau_{t0}^* = \frac{0.018 \rho_p D_p^2}{R_g} \left(\frac{U_t^*}{\nu} \right)^{1.5} \quad (A.1)$$

Pour $Re_t^* > 10$:

Où ρ_p représente la masse volumique de la particule, g l'accélération de la pesanteur, ρ_{air} la masse volumique de l'air donnée par $\rho_{air} = 0.00123 \text{ g.cm}^{-3}$ dans les conditions atmosphériques classiques et Re_t^* le nombre de Reynolds seuil défini par l'équation 3.

Où ν représente la viscosité cinématique.

La présence d'eau interstitielle entre les grains du sol a pour effet l'augmentation de la cohésion entre les particules du sol, et donc l'augmentation de la vitesse de friction seuil. Cette augmentation est intégrée dans le module DEAD à partir de la paramétrisation développée par Fécan et al (1999). L'équation proposée, exprime l'augmentation du seuil, en condition humide U_{tw}^* par comparaison à celui des conditions sèches U_{td}^* . Ainsi lorsque l'humidité du sol W , devient supérieur à l'humidité résiduelle du sol W_S , l'augmentation du seuil en condition humides U_{tw}^* par rapport au seuil dans les conditions sèche U_t^* se traduit par :

A l'opposé, lorsque l'humidité du sol W , devient inférieure à l'humidité résiduelle du sol W_S , l'augmentation du seuil en condition humide U_{tw}^* par rapport au seuil dans les conditions sèche se traduit par :

L'humidité du sol en masse est calculée par le rapport du pourcentage en masse d'eau sur le pourcentage en masse du sol sec. L'humidité résiduelle du sol W_S est exprimée en fonction de la teneur du sol en argile par l'équation 6.

Les effets de la rugosité du sol (dus à la présence de cailloux) sur la vitesse de friction sont pris en compte dans DEAD selon la paramétrisation de Marticorean et Bergametti (1995). Cette paramétrisation consiste au calcul d'un rapport R_R entre la hauteur de rugosité d'une surface supposée lisse (Z_{0S}) et d'une surface érodable (Z_0). Ce rapport est exprimé suivant l'équation 7.

$$R_R = \frac{Z_{0S}}{Z_0}$$

La vitesse de friction seuil est donc donnée par :

$$U_{*t} = \dots$$

A.2 Emission des aérosols désertiques

A.2.1) Le flux de saltation

DEAD calcule le flux horizontal de saltation à partir de la vitesse de friction seuil décrit précédemment. Ce flux de saltation est déterminé dans DEAD à partir de l'équation de White (1979), selon l'équation suivante :

$$F_{salt} = \dots$$

Où F_{salt} représente le flux de saltation ($kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$), C_{salt} une constante égale à 2.6, ρ_{air} la densité de l'air, g la constante de gravité, U_{*t}^* la vitesse de friction seuil et U^* la vitesse du vent.

A.2.2) Le flux de vitesse d'aérosols désertiques

Marticorena et al (1997) ont établi une relation de proportionnalité entre le flux vertical F d'aérosol émis dans l'atmosphère et le flux de saltation F_{salt} , en partant de l'hypothèse que la quantité fine de particules dans le sol, contrôle en premier lieu, la capacité de ce sol à en produire. Ce rapport de proportionnalité dépend de la teneur du sol en argile. Lorsque ces teneurs sont compris entre 0 et 20%, ce rapport de proportionnalité est défini de la manière suivante :

—

A partir de cette équation, le flux d'aérosol désertiques émis dans l'atmosphère peut être calculé. Cette expression, bien qu'empirique, permet de retrouver des ordres de grandeur des flux d'émissions avec un niveau de confiance identique pour tous les sols des régions désertiques (Laurent et al., 2008).

Annexe B : Article Bègue et al (2012)

Cette annexe présente l'article sur l'évolution des propriétés optiques des aérosols désertiques qui a été publié au Journal of Geophysical Research. Les figures mentionnées dans l'article font références à celles déjà présentées aux chapitres 3 et 4. Par ailleurs, les références bibliographiques citées dans l'article sont reportées au sein de la partie bibliographique du manuscrit (P176-210)

Journal of Geophysical Research, 117, doi: 10.1029/2012JD017611

Long-range transport of Saharan dust over North-Western Europe during EUCAARI 2008 campaign: Change of dust optical properties by scavenging

N. Bègue¹, P. Tulet¹, J-P. Chaboureau², G. Roberts³, L. Gomes³ and M. Mallet²

[1] Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones, UMR 8105 CNRS, Université de la Réunion, Reunion Island, France.

[2] Laboratoire d'Aérodologie, University of Toulouse III and CNRS, Toulouse, France.

[3] CNRM/GAME, URA 1357, CNRS - Météo-France, France.

Correspondence to: N.Bègue (nelson.begue@univ-reunion.fr)

Abstract

The evolution of dust optical properties is illustrated in this paper through a case of long-range transport of Saharan dust over Northern Europe during the European Integrated Project on Aerosol-Cloud-Climate and Air Quality Interactions (EUCAARI) experimental campaign in 2008. This spread of dust over Northern Europe is investigated by combining satellite, airborne, ground-based observations and the non-hydrostatic meso-scale model Meso-NH. The total dust amount emitted during the study period is estimated to 185 Tg. The analysis of the removal processes reveals that only 12.5 Tg is lost by dry deposition, and that wet deposition is the main process of dust removal (73 Tg). The observed aerosol optical thickness ranged from 0.1 to 0.5 at the wavelength of 440 nm, with a maximum value close to 1 is found over The Netherlands (51.97°N; 4.93°E). Over that site, the main dust layer is

located between 2.5 and 5.2 km above sea level (asl), moreover dust was also present at 0.9 km asl. The nephelometer measurements on board the ATR-42 aircraft revealed a strong wavelength dependence of the scattering coefficient over the Netherlands. The Angström exponent is greater than 0.5, whereas usually it approaches zero in presence of Saharan dust. This is due to high precipitation scavenging efficiency for the coarse mode, particularly below 4 km. Our results confirm that atmospheric conditions govern the life cycle of dust microphysical phenomena, providing conditions for transformation processes during transport, and removal of particles from the atmosphere.

1. Introduction

Dust aerosols are well known for the role they can play in modulating the climate system at local and global scales. Mineral dust contributes significantly to the global radiative budget through absorption and scattering of longwave and shortwave radiation [Houghton et al., 2001]. Airborne dust generally increases (except above high surface albedo) upward flux in the shortwave and decrease them in the longwave [e.g., Mallet et al., 2009]. In a cloudy environment, dust enhances the concentration of cloud droplets and influences their size, thus changes the potential of clouds to produce rain [Rosenfeld et al., 2002]. Numerical models which simulate dust emission, transport and deposition are important tools to quantify dust fluxes and the associated climate impact [e.g. Todd et al. 2008]. Moreover, aerosol satellite data have been helpful to locate and to study the variability of the major dust source [Caquineau et al., 2002; Herman et al., 1997; Prospero et al., 2002]

The African continent, especially its northern part, hosts the main sources of dust on the earth. It is the combination of sources rich in erodible material, energetic wind systems, and a coupling to wind system that facilitate long range transport. Estimated annual dust emission for North Africa ranges from 170 to 1600 Tg.yr⁻¹ [Engelstaedter et al., 2006]. The dust emitted by the North African sources affect many adjacent continental and ocean/sea regions [Engelstaedter et al., 2006; Prospero et al., 2002]. The bulk of the dust is transported westward into the Atlantic Ocean [Barkan et al., 2004a] and the Gulf of Guinea with the strong northerlies prevailing in the summer time [Koren et al., 2003; Todd et al., 2008]. However, a part of dust is also transported northward across the Mediterranean into southern and central Europe [Collaud et al., 2003; Hamonou et al., 2003; Papayannis et al., 2008]. Overall, the two main features that influence the dust transport from Africa into Europe is the trough that emanates from the Icelandic low-pressure southward and the subtropical high over

northern Africa. The strength and position of these two systems define the direction and the potential to carry dust northward into the Mediterranean [Barkan et al., 2005]. In extreme cases the dust can reach the northern Europe, reaching the shores of the Baltic Sea [Ansmann et al., 2003; Franzen et al., 1994; Reiff et al., 1986].

Atmospheric conditions govern the life cycle of dust microphysical phenomena, providing conditions for transformation processes during transport, and removal of particles from the atmosphere. Thus, depending on travel distance and residence time over source regions and monitoring site, the physical and chemical properties of dust can be modified, which, in turn, changes the dust's optical properties [Perrone et al., 2003]. Based on lidar observations over Thessaloniki (40.65°N; 22.90°E), Balis et al. (2003) found that the mixing of dust with anthropogenic particles during their transport changes the dust optical characteristics, and thus, makes difficult to distinguish the dust particles from those of urban origin. The variations of optical parameters with wavelength reflect changes in the physico-chemical properties and size distribution of particles [Israelevich et al. 2003], we use these properties to study a case of dust transport over Europe.

Long-range transport of Saharan dust to the northern parts of Europe was observed during the European Integrated Project on Aerosol-Cloud-Climate and Air Quality Interactions (EUCAARI) experimental campaign in 2008 [Kulmala et al., 2009]. From 25th to 31th May 2008, a major Saharan dust event occurred and the dust plume reached the shores of the Baltic Sea. Hamburger et al. (2011) reported on the synoptic and pollution situation over Europe in May 2008, through the use of the meteorological analysis and airborne measurements. Their analysis reveals that the second half of May was characterized by westerly flow and the passage of a frontal systems with strong convective activity and heavy precipitation over Central Europe. This dust event was studied by Pappalardo et al. (2010) for showing first results in terms of comparison between the lidar measurements obtained from Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation (CALIPSO) and the European Aerosols Research Lidar NETwork (EARLINET). Pappalardo et al. (2010) conducted a statistical analysis of dust properties over Italian and German regions. They found typical Angström exponent and lidar ratio values at 355 nm on the order of 0.15 and 49 ± 10 sr, respectively.

The analysis of the dust properties over the Netherlands, however, was not considered by Pappalardo et al. (2010), even though the dust plume reached the Netherlands where Aerosol Optical Thickness (AOT) close to 1 was observed. The measurements obtained during the EUCAARI campaign reveal a strong wavelength dependence of the scattering coefficient,

whereas the dust optical parameters are usually significantly less dependent on wavelength. Thus, questions arise about the evolution of the dust optical properties over the Netherlands. In this paper, we examine firstly the characteristics of this dust Saharan event through a quantitative evaluation of the dust transport. In a second step, we examine and discuss the influence of the atmospheric conditions on the evolution of the dust optical properties during their transport from the Sahara region to the Netherlands. We focus particularly on the impact of the precipitation on the dust size distribution, and its consequences on the evolution of the dust optical properties.

The paper is organized as follows: Section 2 describes the observations and the model used for the investigation of this dust transport; Section 3 presents the characteristics of the Saharan dust event; Section 4 gives a quantitative evaluation of the dust transport; an analysis of the dust plume properties over the Netherlands is provided in Section 5; and the summary and the conclusions are given in Section 6.

2. Observations and model description.

2.1 Observations

In May 2008, an intensive experimental campaign combining airborne, in-situ and remote sensing measurements called EUCAARI-IMPACT (where IMPACT stands for Intensive Observation Period at Cabauw Tower) was performed using the French ATR-42 [Crumeyrolle et al, 2010].

The aerosol light scattering were measured by an integrating nephelometer (model TSI 3563, TSI Inc., St Paul, MN) aboard the F-ATR-42 aircraft. The design, calibration and performance evaluation of this device are discussed in details by Anderson et al. [1996]. It is worth to note that measured aerosol light scattering coefficients were corrected for artifacts from truncation and the non-lambertian light source in the nephelometer following the method presented by Anderson and Ogren [1998]. The aerosol instrumentation has been connected to the ATR community aerosol inlet (CAI), which is designed for the ATR to allow isokinetic and isoaxial sampling relative to the incoming air stream. The cut diameter for the CAI is 5 μm . Clarke and modified by Meteo France, has a 50% sampling efficiency for particle size higher than 5 μm [Crumeyrolle et al., 2010].

During this intensive experimental campaign, the Cabauw Experimental Site for Atmospheric Research (CESAR, 51.97°N, 4.93°E) was selected as a supersite to quantify the regional

aerosol properties including aerosol formation, transformation, transport and deposition [Kulmala et al., 2009]. We used observations from the ALS-450 UV-lidar manufactured by Leosphere, which has been operated by the Royal Netherlands Meteorological Institute (KNMI) at CESAR since 2007. This instrument enables the retrieval of aerosol optical properties (extinction, backscatter coefficient and depolarization ratio) at 353 nm between 100 m and 20 km with a vertical resolution of 15 m [Raut and Chazette, 2009]. During this intensive observational period, the lidar operated continuously.

The ground sites selected to evaluate the temporal evolution of the dust plume are composed of the AERosol RObotic NETwork (AERONET) sites at Cabauw, Helgoland (54.43°N, 7.89°E), Kanzelhöhe (46.68°N, 13.91°E) and Lecce (40.34°N, 18.11°E). The measurements are routinely monitored using a CIMEL sun photometer and the data are reported to the AERONET data base [Holben et al., 1998]. The technical details of the instrument are described in the CIMEL Sun Photometer Manual (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov>). The values of AOT presented in this work were selected at the quality level 2.

The Aerosol Index (AI) data obtained from Ozone Monitoring Instrument (OMI) were used to describe the dust outbreak [Levelt et al, 2000]. The AI concept, which was developed based on the Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) observations in the near UV, was applied to the OMI measurements [Torres et al, 2002b; Veihelmann et al, 2007]. This index allows the detection of absorbing aerosols through the spectral difference between the 340 nm and 380 nm. It is positive for absorbing aerosol at UV wavelength, such as dust, and negative for non-absorbing aerosols, such as sulfates [Herman et al, 1997; Herman and Celarier, 1997; Torres et al, 1998, 2002a, 2002b]. Moreover, for clouds, the values of AI are near zero [Hsu et al, 1999]. The AI values presented in this work were selected at the quality level 3 with resolution of 1°x 1°. The AI index has provided information about dust horizontal distribution over land and ocean surface in many studies [e.g., Alpert et al, 2000; Barkan et al, 2005; Bobely-Kiss et al, 2004 ; Chiapello and Moulin, 2002; Engelstaedter and Washington, 2007; Israelevich et al, 2002; Prospero et al, 2002;].

The evolution of the precipitation accumulated during the study period can be seen in the TRMM product 3B-42 within $\pm 50^\circ$ latitudinal belt, with a grid spacing of 25 km. The TRMM product was obtained using the TRMM Online Visualization and Analysis System (TOVAS) developed at NASA (Acker et al., 2007; <http://daac.gsfc.nasa.gov/techlab/giovanni>). The TRMM product used in this work was selected at the quality level 3 [Huffman et al., 2007].

2.2 Meso-NH model

The mesoscale, nonhydrostatic atmospheric model Meso-NH was used in this study. This model has been jointly developed by the Centre National de la Recherche Meteorologique (CNRM, Meteo France) and the Laboratoire d'Aérodynamique (LA, CNRS) (Lafore et al., 1998). The capability of Meso-NH to simulate dust emissions and transport has been highlighted in several recent studies [Bou Karam et al., 2009; Chaboureau et al., 2011; Crumeyrolle et al., 2008; Tulet et al. 2008, Tulet et al., 2010]. Meso-NH contains different sets of parameterizations such as cloud microphysics [Cohard and Pinty, 2000], turbulence [Bougeault and Lacarière, 1989], lightning processes [Barthe et al., 2005], gas-phase chemistry [Suhre et al., 1998], aerosol chemistry [Tulet et al., 2005, 2006] and dust aerosol [Grini et al., 2006]. Natural land surfaces are described by interactions treated in the Soil Biosphere and Atmospheric model (ISBA) [Noihlan and Mahfouf, 1996].

Meso-NH uses the radiation code of the ECMWF [Fouquart and Bonnel, 1980; Morcrette and Fouquart, 1986] which computes the radiative fluxes of shortwave and longwave radiation. Clouds and aerosols in the shortwave are taking into account using the Delta Edington transformation [Joseph et al., 1976].

2.2.1 Mineral dust parameterization

The dust emission scheme is the Dust Entrainment And Deposition (DEAD) model [Zender et al., 2003], implemented as a component of Meso-NH [Grini et al., 2006] that calculates dust flux from wind friction speed. The physical basis of the model is taken from Marticorena and Bergametti (1995) in which dust fluxes are calculated as a function of saltation and sandblasting processes. The dust emissions are forced directly by the surface flux parameters of the land surface scheme, and then distributed into the atmosphere in a manner which is consistent with the vertical fluxes of momentum, energy and moisture. In this parameterization, the three lognormal dust modes are generated and transported by the ORGANIC Inorganic Lognormal Aerosols Model (ORILAM) aerosol scheme [Tulet et al., 2005; Tulet et al., 2006]. These modes are described by their 0th, 3rd and 6th moments. The initial dust size distribution contains three lognormal modes with median radii of 0.039, 0.32 and 2.5 μm and standard deviation of 1.75, 1.76 and 1.70 respectively [Crumeyrolle et al., 2008]. The ORILAM model simulates transport and dry deposition of aerosol. The dry deposition and sedimentation of aerosol are driven by the Brownian diffusivity and the gravitational settling [Tulet et al. 2005]. In this study, the 0th and 6th moment are kept

constant, which implies that the dispersion and radius mean of each dust mode are kept constant during the simulation.

Aerosol scavenging is determined according to a kinetic approach to calculate the aerosol mass transfer in cloud and rain droplets as defined by Seinfeld and Pandis (1998) and Tost et al. (2006). The scavenging by raindrops depends mainly on Brownian motion, interception and inertial impaction described by Slinn (1979). Thus, within this scavenging scheme, the collection efficiency is calculated for these three types of collection. In agreement with the work of Slinn et al. (1979), the small particles (radius below 0.1 μm) are collected efficiently by raindrops and cloud droplets through Brownian diffusion, the larger particles (radius above 10 μm) through inertial impaction. Inside the cloud, impaction scavenging by cloud droplets is less efficient for particles with radii from 0.1 to 1.0 μm (Slinn et al., 1979). The in-cloud mass aerosol transfer into rain droplets by autoconversion and accretion processes have been introduced as described by Pinty and Jabouille (1998). The sedimentation of aerosol mass included in raindrops has been simulated using a time splitting technique with an upstream differencing scheme of the vertical sedimentation raindrop flux [Tulet et al., 2010]. The release of aerosol into the air due to rain evaporation is assumed to be proportional to the evaporated water [Chin et al., 2000]. Regarding the shortwave effect, a refractive index of the dust aerosol was assigned according to that measured during the African Monsoon Multidisciplinary Analysis (AMMA) campaign [Mallet et al., 2009]. The dust refractive index was taken from Tulet et al. (2006); $1.448-2.92 \cdot 10^{-3}i$ for wavelengths between 440 and 690 nm, and $1.440-1.16 \cdot 10^{-3}i$ for wavelengths between 690 and 1190 nm. These dust refractive indices were obtained using AERONET retrievals for five Saharan sites during the African Multidisciplinary Monsoon Analysis (AMMA) campaign.

2.2.2 Simulation Configuration

The simulation started at 00 UTC on 25th May 2008 and ended at 00 UTC on 1 June 2008. The study domain that covers the EUCAARI campaign area and a large part of the northern Africa extends between 15.1°N and 68.7°N latitude and 14.9°W and 23.1°E longitude, with a grid spacing of 25 km. This domain allows a large scale view of the dust transport. The vertical grid spacing consists of 60 stretched vertical levels reaching an altitude of 30 km. Initialization and lateral boundary conditions of the domain are taken from ECMWF operational analysis. Deep and shallow convection parameterization [Bechtold et al., 2001] based upon the Kain and Fritsch (1993) mass flux scheme is used for this study. Deep and

shallow convective drafts horizontally exchange mass with their environment through detrainment of cloudy air and entrainment of cloud-free air. Subgrid-scale fluxes through convective updrafts and mixing with the environment through entrainment and detrainment are diagnosed in terms of grid-scale thermodynamic and dynamic variables [Bechtold et al., 2000]. The implicit dust scavenging is parameterized following the mass flux calculated from the convection scheme aforementioned. The explicit dust scavenging is resolved by the wet deposition parameterization [Tulet et al., 2010] where collection efficiency and kinetic mass transfer of aerosols into cloud droplets are computed by ICE3 microphysics scheme [Pinty and Jabouille, 1998].

Three types of simulations were performed by taking into account only the dust. The reference simulation (REF) uses the implicit and explicit dust scavenging schemes in order to assess the dust transport toward Northern Europe. Two other simulations were run to show the impact of precipitation on the dust distribution. The simulation SCAV used the implicit dust scavenging scheme whereas the NOSCAV simulation did not include any wet deposition.

3. Characteristics of the Saharan dust event

3.1 Meteorological situation over Europe

The synoptic situation over Europe during the 16-31 May 2008 period was marked by strong convective activities associated to passage of a frontal system [Hamburger et al., 2011]. The geopotential height and the wind flow at 700 hPa from ECMWF analysis is shown at 1200 UTC on 27th and 29th May 2008 (Figures 3.1a and 3.1c). The 700 hPa level was chosen because the average transportation of the dust takes place between the 600 and 800 hPa levels [Hamonou et al., 1999; Westphal et al., 1987]. On 27th May, a trough extended along the European and African coast while a high-pressure center was located over Italy (Fig. 3.1a). Between the two systems, a steep gradient of pressure was observed resulting in a strong Southwesterly flow from Northern Africa toward the Mediterranean Sea. On 29th May, both the front and the high-pressure located over Central Europe moved eastward (Fig.3.1.c). These two synoptic systems produced a southwesterly flow in which the African air mass was embedded and transported towards the shores of the Baltic Sea.

Meteosat Second Generation (MSG) images at 0.6 μm are shown on 27th May 2008 at 1200 UTC and 29th May 2008 at 1230 UTC (Figures 3.1b and 3.1d). On 27th May, a cyclonic rolling of clouds can be seen over the Atlantic Ocean near the Northwestern coast of Spain as

well as strong convective activity over Southwestern France (Fig. 3.1b). On 29th May, these convective clouds moved eastward over Italy (Fig 1.d), where precipitation events greater than 45 mm per day were estimated by the Tropical Rainfall Measurement Mission (TRMM) product. Central Europe was mainly affected by heavy precipitations on that day (not shown).

3.2 Formation and transport of an intense dust plume over Western Europe.

AI is a column integrated measure of the atmospheric dust content and therefore provides information about the horizontal distribution of the dust load. Figure 3.3 displays the evolution of the AI over the northern Africa and Western Europe during our study. On 27th May 2008 at 1200 UTC (Fig. 3.3a), dust was present over Northern Africa (AI=2.5) and nearby Southeastern France (AI=1). Over Northern Africa, the largest values of AI were found between 15°N and 36°N, close to some well-identified sources of dust [Prospero et al, 2002; Moulin et al, 1998; Caquineau et al., 2002]. Values greater than 2 were found over Southern Tunisia, Northern Algeria, Northwestern Libya and the Bodélé depression near Lake Chad. A steep gradient between the low and the high pressure cells (Fig.3.1b) suggests the existence of a strong southeastern flow through which the Saharan dust was transported toward the Mediterranean Sea on 27th May 2008. On 28th May (Fig.3.3b), the dust spread to Italy and Eastern Europe, with AI values greater than 1.5 over Germany and Hungary. A dust layer even reached Northern Europe as shown by AI values around 2 over the shores of the Baltic Sea. On 29th May (Fig. 3.3c), the dust coverage over the Mediterranean Sea was smaller certainly because of the strong convective activities. Moreover, it is worth noticing that the presence of dust plume over Italy was not observed because of the presence of clouds. In fact, the amount of aerosol detected in a cloudy region is reduced because clouds obscure of the aerosol layer. Low values of AI (less than 1) over the Mediterranean region correspond well with high values of rainfall as retrieved from the TRMM product. Therefore, it can be assumed that precipitation has probably scavenged the major part of dust over the Mediterranean region. In contrast, the dust coverage was greater over the shores of the Baltic Sea and over Eastern Europe on 29th May. Within this area, the AI values ranged from 1 to 2.5 with maximum values observed over Northeastern Germany and Hungary. On 30th May, the dust coverage continued its spread toward the north of Europe and extended from Hungary to Norway (Fig. 3.3d).

3.3 AOT evolution during the dust transport

The evolution of the dust-AOT due to the presence of Saharan dust was simulated by Meso-NH in this large domain and shown in Fig.3.4a-3.4d. After 2 days of model integration, a belt of high dust-AOT extended in a large area from Central Algeria to France passing by Northeastern Libya (Fig.3.4a). Within this area the values exceed 4.5, particularly over Central Algeria and Northeastern Libya where values of 5.8 and 5.2 have been simulated, respectively. On 28th May, this belt of high dust-AOT extended from Northeastern Libya to the Northern Italy with values exceeding 4.5 (Fig. 3.4b). An area of high AOT (around 3) located over the English Channel has also been simulated. On 29th May, the belt of high dust-AOT has disappeared, (Fig.3.4c). The simulated dust-AOT decreased by half within the Italian region (values did not exceed 2.5) whereas the AOT increased over Northern Europe. In particular, two high AOT values (around 3) have been simulated around the Scandinavia region. On 30th May, the dust-AOT generally decreased within the domain, but there were significant peaks of 1.5 to 2 from Denmark to Sweden (Fig. 3.4d). There was generally good agreement in the dust evolution simulated by Meso-NH and AI observed by OMI (Fig.3.3), which implies that the dynamics conditions such as wind fields were well reproduced by Meso-NH (Fig.3.4a-3.4d).

The observed AOTs have been compared to the simulated ones with the REF configuration (Fig.3.5). The Lecce station is located in the southeastern corner of Italy which is the closest station from the dust source zone. It is also the station located in the Mediterranean region which was less affected by precipitation. The observed AOT ranged from 0.18 to 0.51 with a maximum appeared on 30th May, indicating that Lecce was not very affected by the dust plume (Fig. 3.5a); which we found also in the simulation. Based on sun photometer measurements at Lecce, Perrone et al. (2005) found that the Saharan dust events over Lecce are generally characterized by AOT larger than 0.6. The observed AOT over Kanzelhöhe ranged from 0.15 to 0.49 (Fig. 3.5b). We note that the model simulated the passage of the dust plume over Kanzelhöhe between 28th and 29th May, which is in agreement with the OMI observations previously shown (Fig.3.3). Unfortunately, AOT data were not recorded between 28th and 29th May owing to the presence of clouds. The Helgoland station is located in the vicinity of the German Bight, which is the farthest station from the dust source region. The observed AOT ranged from 0.1 to 0.8 (Fig.3.5c) with a median of 0.2. The maximum observed values occurred on 31th May. The simulated dust-AOT reveal the passage of the dust plume over Helgoland between 29th and 30th May.

Both the observations and the REF simulation show that the dust transport over North-Western Europe occurred in atmospheric conditions marked by strong convective activities. The discrepancies between Meso-NH and the observations can be attributed to several possible sources of forecast error. Thus, a possible sources of forecast error can be an underestimation of the precipitation (and wet scavenging) simulated by Meso-NH using a resolution of 25 km. Another possible explanation in these differences can come from the predictability of atmospheric models. Meso-NH is a forecasting atmospheric model. As such, it makes its own forecast and, as for all atmospheric models, a numerical drift can appear and increase as the simulation moves away from the initial conditions. Nevertheless, the simulated dust-AOT at Cabauw compared well with that observed (Fig.3.5d), and the AOT peak observed on 31th May with a maximum of 1 was well reproduced (the dust optical properties over the Netherlands will be discussed in more detail in Section 5). Overall, Meso-NH reproduced the dust transport toward North-Western Europe acceptably well and clearly indicated the Sahara as the dust source.

4. Quantitative evaluation of the dust transport

4.1 Evaluation of the net flux

It was clearly shown through the observations and the simulations that the Saharan dust was transported over Northern Europe. The next step is to estimate the desert dust flux emitted and deposited by dry deposition during this period. Figure 5 depicts the spatial distribution of the net flux of dust accumulated at surface during the 25-31 May period. We define net flux as the difference between the dust amount emitted and that lost by dry deposition. Thus, a negative net flux corresponds with dust loss via dry deposition whereas a positive net flux corresponds with dust emission. The dust emission regions are only located in the Northern Africa with values ranging from 0.04 to 0.25 kg m⁻² (Fig. 3.9). High positive net fluxes have been mainly simulated in Southern Tunisia (0.25 kg m⁻²), Northeastern Algeria (0.22 kg m⁻²), Southwestern Morocco (0.2 kg m⁻²) and Northwestern Libya (0.2 kg m⁻²). The most intense dust emission simulated in Tunisia and Algeria area were close to the “chott” regions. These extensive systems of salt lakes and dry lakes are known for their intense activity in April-May (Prospero et al. 2002). Thus, the dust emission regions simulated are consistent with the most significant, well-identified sources of dust in North Africa [Engelstaedter et al., 2006; Koren et al., 2003; Mahowald et al., 2003]. For this episode, the origin of the dust transport across

the Mediterranean and Europe is mainly from the North African dust sources (i.e, Tunisia, Algeria and Libya).

Days	05/25	05/26	05/27	05/28	05/29	05/30	05/31	Total
Mass (Tg)	49	57	17	26	6	10	20	185

Table 1: estimates of daily dust mass emitted (in Tg) by Meso-NH between 25 and 31 May 2008.

From the simulated net flux, the mass budget of dust was estimated. Table 1 reports the daily amount of dust mass emitted between 25th and 31th May 2008. The estimates of the dust mass emitted are based on the sum of emissions from the individual source regions. They ranged from 6 to 57 Tg, with a maximum on 26 May and a minimum on 29th May. The total amount of emitted dust was estimated to be 185 Tg. Given the annual dust emission from North Africa of 1400 Tg.yr⁻¹ [Ginoux et al. 2004], this dust episode represents 13 % of the annual emission. The estimates of dust loss by dry deposition are reported in Table 2. The amount of dust lost by dry deposition ranged from 0.5 to 3.0 Tg, with a maximum on 27 May and a minimum on 30 May. It is interesting to note that the dust loss by dry deposition has not been only simulated over Europe, but also over Northern Africa and the Mediterranean basin. The total amount of dust lost by dry deposition was estimated to 12.5 Tg, which represents only 7 % of the total dust emission. Note that the dust amounts lost by dry deposition were more important in Northern Africa (9.8 Tg) than in Europe (2.7 Tg). According to the meteorological situation described in Section 3.1, we cannot exclude a significant contribution of the wet deposition since Saharan dust is often deposited in precipitation over Europe [Goudie et al. 2001]. In the following subsection, the contribution to the wet deposition will be described in more detail.

Days	05/25	05/26	05/27	05/28	05/29	05/30	05/31	Total
Northern Africa (Tg)	1.3	2.7	2.4	1.1	1.0	0.4	0.9	9.8
Europe (Tg)	0.1	0.2	0.6	0.8	0.6	0.1	0.3	2.7

Table 2: estimates of daily dust mass lost by dry deposition by Meso-NH over Northern Africa and Europe between 25 and 31 May 2008.

4.2 Dust scavenging

The impact of precipitation on dust size distribution is evaluated using Meso-NH through the realization of three simulations: the reference simulation (REF) that integrates the implicit and explicit dust scavenging scheme, the SCAV simulation which integrates only the implicit scheme and the NOSCAV simulation without wet deposition. The evolution of the explicit and implicit accumulated precipitations obtained from REF on 29th and 30th May is shown in Fig.6b and Fig.6d, respectively. The evolution of the precipitation accumulated during the period aforementioned can be seen in the TRMM product 3B-42 (Figures 3.12a and 3.12c). There is a fairly good agreement between the Meso-NH simulation and the satellite observations during these two days. This is particularly true on 30 May (Figures 3.12c and 3.12d), when the strong convective activities ended over the Mediterranean basin. With the exception of Northeastern Switzerland, precipitation was overestimated by Meso-NH. However on 29 May (Figures 3.12a and 3.12b), precipitation was underpredicted over the Mediterranean basin and Italy. Overall, the precipitation associated with the passage of a frontal system over Mediterranean basin was reproduced by Meso-NH fairly well.

From the dust burden modeled for the three simulations, we obtained an estimate of the dust mass scavenged over the European part of the study domain. Implicit precipitations decrease the dust mass from 93 Tg to 36 Tg, whereas explicit precipitations decrease the dust mass from 93 Tg to 75 Tg. Thus, 57 Tg were removed by implicit scavenging whereas 18 Tg were deposited by explicit scavenging. As a conclusion, dust was mainly removed by implicit precipitation. However, the impact of the explicit precipitation was not negligible even with a subgrid resolution of 25 km. The difference in AOT evolution between the REF simulation and the NOSCAV simulation is shown in Fig.3.5. As expected, AOTs from the NOSCAV

simulation (without any dust scavenging) were higher than those from the REF simulation. AOTs in the NOSCAV simulation were about 1.5 times higher than the REF simulation. The maximum of difference between the two simulations is found at Lecce and Kanzelhöhe and is consistent with greater amounts of precipitation observed by TRMM in Central Europe compared to Northern Europe.

5. Passage of the dust plume over the Netherlands

5.1 Optical properties of the dust plume

The presence of dust over some regions of the Northern France and the Netherlands was not observed by satellite because of the presence of clouds. However, the ground based measurements provide information about the optical properties of the dust plume over Cabauw. From the UV lidar observations at 353 nm, the vertical structure of clouds and aerosols can be assessed over Cabauw during the 27-30 May period. The presence of dust in the atmosphere can be observed by lidar, either via the aerosol extinction [Hamonou et al., 1999; Matthias et al., 2004b; Mattis et al., 2002] or the backscatter vertical profile [Gobbi et al., 2000; Mona et al., 2006]. Figure 7 depicts the evolution of the backscatter coefficient. As shown using MSG image at 0.6 μm (Figures 1b and 1d), observed backscatter coefficient larger than $5 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ are due to clouds. Cloud layers in the lidar profile can easily be identified by the strong backscatter and the more inhomogeneous structure compared to aerosol layers [Matthias et al. 2004b]. Cabauw was affected by the presence of midlevel clouds (Fig. 4.1), and particularly during the 28-29 May period. Moreover, the presence of aerosols inside the boundary layer was characterized by backscatter coefficients around $3 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$. As already discussed, Hamburger et al. (2011) showed that the synoptic situation during the first half of May 2008 has led to accumulation of aerosol inside the boundary layer, and particularly for the regions of Northern Europe. Furthermore, they found that the maximum aerosol concentration was observed within the boundary layer above Cabauw.

The observed backscatter coefficients ranged from $5 \cdot 10^{-4}$ to $2 \cdot 10^{-3} \text{ km}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ are due to the Saharan plumes. We evaluated the thickness of the dust layer, following the procedure recently proposed by Mona et al. (2006) and used by Papayannis et al. (2008). The base of the dust layer corresponds to the lowest point of a strong increase in the aerosol backscatter profile while the top of the dust layer is located at an altitude at which both the aerosol backscatter and its first derivative become zero. The evolution of the thickness of the dust layer is shown on Fig.4.1 (in brown line). The thickness of the dust layer decreased slowly to

3.4 km on 28th May night, and slowly increased afterward up to 3.9 km on 29th May, and finally slowly decreased afterward down to 3.2 km on 30th May. The same behavior was observed for the top of the dust layer whereas the base generally was relatively constant during the observation period (Fig. 4.1). On average, the base and the top of the dust layer was located at 0.9 km and 4.5 km above sea level (asl), respectively.

Figure 4.2 presents the evolution of the total (particle and gas) depolarization ratio at 353 nm during the 27-30 May 2008 period over Cabauw. The depolarization ratio ranged from 0.2 to 0.3 at 355 nm and can be used to identify desert dust layers [Gobbi et al., 2000; Papayannis et al. 2002]. A particle depolarization ratio of 0.2-0.3 was found between 2 and 3.3 km asl, during the night of 27th May, indicating a dust layer (Fig. 4.2). The depolarization ratio values ranged between 0 and 0.2, situated between 0.5 and 1.8 km asl, indicate a mixture of anthropogenic and dust particles [Papayannis et al., 2008]. On 29th May morning, the dust particles were found near the surface. It is worth noticing that the presence of the dust layer was masked by clouds with the depolarization ratio above 0.60. As a consequence, the dust layer seems sometimes disappear on Fig.4.2, particularly on 29th May afternoon. Nevertheless, the depolarization ratios (Figure 4.2) confirm the presence of Saharan dust over the Netherlands and the possibility of mixing processes of the dust with local aerosols.

Figure 4.3 shows the temporal evolution of the AOT at 440 nm and the Angström exponent within the 440-870 nm wavelength range obtained from sun photometer measurements at Cabauw between 28th and 31th May 2008. No data was recorded on 29th May due to the presence of clouds. As depicted in Fig.9, the AOT was under 0.4 only during the 28th May afternoon; otherwise, the AOT ranged from 0.5 to 1 with a maximum on 31th May. This is about 2-times higher than the average (0.29) and median (0.25) values usually measured at Cabauw [Schaap et al. 2009], which corroborates the presence of aerosol during the dust episode.

In spite of the presence of Saharan dust, the values of the Angström exponent differ from the values usually measured in presence of dust. As depicted by Fig.4.3, the Angström exponent ranged from 0.5 to 1.5, which is higher than the values usually observed in presence of Saharan dust [e.g., Ansmann et al., 2003, 2011; Collaud Coen et al., 2004; Eck et al., 1999; Hamonou et al., 1999; Müller et al., 2003]. The Angström exponent is generally below 0.5 for large dust particles whereas it is above 1 for anthropogenic particles [Asmann et al. 2003, 2011]. The values of Angström exponents in this study suggest the predominance of small

particles. Based on the meteorological situation (described in subsection 3.1), the high values of the Angström exponent found at Cabauw are a result of effective scavenging of the coarse mode during the Saharan dust transport over Europe. In certain cases, the dust ‘signature’ is reduced when the dust is mixing with anthropogenic particles [Balis et al., 2004]. Moreover, during the SAMSUM-2 campaign, in cases of dust mixed with urban pollution, Angström exponents of 2.7 were observed [Ansmann et al., 2011].

As previously mentioned (subsection 3.3), the simulated dust-AOT at Cabauw compared well with that observed (Fig.3.5d). Since the AOT is the vertical integral of the aerosol extinction coefficient over the whole atmosphere, we use an analysis of the scattering and extinction coefficient to better understand the physical properties of the dust over the Netherlands. The scattering coefficient obtained from the nephelometer on board the ATR-42 aircraft on 30 May from 1350 UTC to 1405 UTC is shown in Fig.4.4 (solid line). It was measured over a domain between 51.97°N and 51.88°N latitude and 6.05°E and 4.99°E longitude and at three wavelengths, at 450, 550 and 700 nm. The values ranged from 0.01 to 0.08 km⁻¹ between 0.6 and 2.6 km asl. The scattering coefficient increased and reached its maximum values (0.05-0.08 km⁻¹) between 1.8 and 2.5 km asl from 1350 UTC to 1355 UTC, and quickly decreased afterward to 0.01 km⁻¹ at 0.6 km asl. The scattering coefficient strongly decreases with the wavelength from 1350 UTC to 1355 UTC, which differs to that usually observed in presence of dust. [Collaud Coen et al. 2004]. This spectral dependence suggests some changes in particle physico-chemical properties and their size distributions [Israelevich et al., 2003]. Because the fine mode generally shows a more pronounced wavelength dependence than the coarse mode [Collaud Coen et al. 2004], the quantity of small particles (radius below 0.1 μm) has a larger effect than the number of large particles (radius above 10 μm). Furthermore, the spectral dependence of the scattering coefficient can be also determined by shape and the chemical composition (real and imaginary refractive indices) [Ackermann, 1998].

In order to better understand this strong spectral dependence, the airborne remote sensing measurements were simulated by Meso-NH (dashed line in Figure 4.4). The simulated scattering coefficient compared acceptably well with that observed. The maximum values (0.07 km⁻¹) at 450 nm were observed between 1350 UTC and 1355 UTC. The wavelength dependence of the scattering coefficient was much weaker in the model (Fig.4.4). This bias suggests that the aging of the dust therefore was not sufficiently taken into account by refractive indices determined during the AMMA [Mallet et al., 2009; Tulet et al., 2008]. In order to improve the simulation of the scattering coefficient over the Netherlands we have

used others refractive indices. The values of the new refractive indices used are $1.470-3.99 \cdot 10^{-3}i$ for wavelengths between 440 and 690 nm, and $1.453-1.32 \cdot 10^{-3}i$ for wavelengths between 690 and 1190 nm. These new dust refractive indices were obtained using AERONET retrievals [Dubovik et al., 2000; Kim et al., 2011] for the Lecce site. It is worth to note that the values of the imaginary part of these new refractive indices are in agreement with the values determined during the Saharan Mineral Dust Experiment (SAMUM) campaign (Petzold, et al., 2009). The airborne remote sensing measurements were simulated by Meso-NH with these new refractive indices (dashed line in Figure 4.5). The new simulation of the scattering coefficient compared well with that observed (Fig.4.5). Furthermore, we note that the wavelength dependence of the scattering coefficient was well reproduced by Meso-NH by using these new refractive indices. Thus, the aging of the dust was sufficiently taken into account by these new refractive indices.

The Single Scattering Albedo (SSA) at 550 nm obtained from the measurements of the nephelometer and the PSAP on board the ATR-42 aircraft on 30 May from 1350 UTC to 1405 UTC is shown in Fig.4.6a. The values ranged from 0.20 to 0.98 between 0.6 and 2.6 km asl. The SSA increased and reached its maximum values (0.98) at 2.4 km asl from 1350 UTC to 1355 UTC, and quickly decreased afterward to 0.70 at 2 km asl. Between 0.6 and 1.5 km asl, the SSA quickly increased and stayed relatively constant to 0.90. The observed SSA between 0.6 and 2 km asl, indicate the presence of dust [El-Metwally et al, 2008; Kubilay et al., 2003; McConnell et al, 2008]. Low values of SSA (0.2-0.4) were observed at 2.6 km asl, indicate the presence of very absorbing particles. The observed SSA have been compared to the simulated ones from REF (blue line in Figure 4.6a). The simulated SSA compared quite well with that observed. The simulated SSA ranged from 0.69 to 0.89, with the maximum simulated between 1355 UTC and 1405 UTC. The simulations were performed taking into account only the desert dust particles, which can cause biases in estimate of the SSA, particularly before 1355 UTC.

The extinction coefficient at 550 nm obtained from the measurements of the nephelometer and the PSAP on board the ATR-42 aircraft on 30 May from 1350 UTC to 1405 UTC is shown in Fig.4.6b. The values ranged from 0.02 to 0.09 km^{-1} between 0.6 and 2.6 km asl. The extinction coefficient increased and reached its maximum values (0.09 km^{-1}) between 2.0 and 2.5 km asl from 1350 UTC to 1355 UTC, and quickly decreased afterward to 0.02 km^{-1} at 0.6 km asl. The observed extinction coefficients have been compared to the simulated ones from REF (blue line in Figure 4.6b). The simulated extinction coefficients compared quite well

with that observed. The simulated extinction coefficients ranged from 0.01 to 0.08 km⁻¹, with the maximum simulated between 1350 UTC and 1355 UTC.

To understand this vertical structure of atmospheric dust, a cross section of the extinction coefficient between the surface and 7 km asl at 1350 UTC on 30 May 2008 was made from REF simulation over the Netherlands (Figure 4.7). Two main dust layers were present and separated by a region of low values of extinction coefficient (less than 0.04 km⁻¹). These low values can be attributed to a scavenging of the dust inside this layer. The first dust layer was situated between 2.5 and 5.2 km high with the extinction maxima (0.09 km⁻¹) situated at 3.2 km asl. The second dust layer was located between 0.8 and 1.5 km asl which is separated in two parts by a region of low values (less than 0.03 km⁻¹). The first part of this second dust layer was located between (51.96°N, 5.78°E) and (51.91°N, 5.53°E) with the extinction maxima (0.08 km⁻¹) situated at 1 km asl. The second part of this second dust layer was located between (51.85°N, 5.22°E) and (51.81°N, 5.06°E) with the extinction maxima (0.07 km⁻¹) situated at 1 km asl. Over some regions dust was found near the surface, with the extinction values of 0.06 km⁻¹. These results suggest mixing processes between the dust and the anthropogenic sources of pollution over Cabauw, which may be generated locally or transported from far away. A strong extinction signal was observed when the aircraft passed through the lower part of the first dust layer situated at 2.5 km asl (dashed line in Figure 4.6). The contribution of the coarse and accumulation mode to extinction was analyzed over the same region from REF simulation (Figures 4.8a and 4.8b). The contribution of each mode is defined as the ratio between the extinction obtained for each mode and the total extinction. The results reveal that more than 80% of extinction above 2.5 km asl was due to the coarse mode (Fig.4.8a). Below 2.5 km asl, the extinction was mainly due to the accumulation mode (more than 70%), particularly between (51.96°N, 5.78°E) and (51.85°N, 5.22°E). Thus, the large peak of extinction coefficients (Fig. 4.6b) was observed in a region where 80% of extinction was due to the accumulation mode (Fig.4.8b). It can be noticed that 75% of extinction below 1 km asl between (51.85°N, 5.22°E) and (51.81°N, 5.06°E) was due to coarse mode. The large difference in contributions of accumulation and coarse mode distributions suggests that the strong dependence on wavelength can be attributed to high precipitation scavenging efficiency for the coarse mode.

Balis et al. (2004) shown that the mixing processes can induce a modification of the dust optical characteristics. Based on the black carbon mass concentrations and the cloud nuclei number concentrations for the European region in May 2008 [Hamburger et al. 2011], mixing

processes between the Saharan dust and the anthropogenic particles likely occurred during their transport toward the Netherlands. Thus, we cannot ignore a possible influence of the mixing processes on the dust optical characteristics. Nevertheless, according to the meteorological situation and our results aforementioned, we are convinced that the evolution of dust optical characteristics observed over the Netherlands was mainly due to high precipitation scavenging efficiency for the coarse mode. In order to improve the discussion, the precipitation scavenging efficiency for each dust mode will be described in detail, in the following subsection.

5.2 Dust vertical distribution and aerosol size filtering.

In order to better understand the dust size transported over the Netherlands, an analysis of the impact of the precipitation on dust size distribution is now presented. The profile of mass and number concentration for the three dust modes of Meso-NH are shown for the REF and NOSCAV simulations at Cabauw on 30th May at 1400 UTC (Fig.4.9a). The vertical profile of the accumulation mode with the median radius of 0.32 μm is the same for both the REF and NOSCAV simulations. In other words, this mode was not affected by impaction scavenging since these particles are too large to be collected by Brownian motion and too fine to be collected by inertial impaction. The collection efficiency factor was less than 10^{-3} for the accumulation mode whereas for the coarse mode (with median radius of 1.9 μm) the efficiency factor was close to 1 [Tulet et al., 2010]. The differences between the profiles obtained from the REF and NOSCAV simulations for the fine dust mode (with the median radius of 0.044 μm) were small (losses are due to Brownian motion). As a consequence, the majority of the dust concentration of the larger mode was scavenged whereas the majority of the two smallest modes were preserved. The precipitation slightly decreases the dust mass concentration of the coarse mode above 4 km asl from 700 $\mu\text{g m}^{-3}$ to 500 $\mu\text{g m}^{-3}$, whereas the decrease was much more significant below 4 km asl. The dust mass concentration reduced from 1100 to 380 $\mu\text{g.m}^{-3}$ close to the surface and from 600 to 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ at 2 km asl. Between the surface and 2.2 km asl the mass concentration of the coarse mode was similar to the one of the accumulation mode as the coarse mode was the most affected by the precipitation. This scavenging represents 85% of the total mass dust concentration. The number concentration of the two smallest modes was higher than the coarse mode ($5.0 \cdot 10^7$ and $2.0 \cdot 10^9$ particles per m^{-3} at 1 km for the accumulation and fine mode, respectively, compared to $5.5 \cdot 10^5$ particles per m^{-3} of the coarse mode), as depicted by Fig.4.9b. The height interval where the dust coarse mode was significantly scavenged coincided with the strong wavelength dependence of the

scattering coefficient and demonstrates that the high values of the Angström exponent are a result of strong scavenging of the dust coarse mode.

6. Summary and Conclusion

The long-range dust transport over North-Western Europe during the EUCAARI intensive observational period, between 25th and 31th May 2008 was examined. The analysis focuses on the site of Cabauw, which was selected to quantify the regional aerosol properties, aerosol formation, transformation, transport and deposition during the EUCAARI 2008 campaign. The transport of dust to North-Western Europe was investigated by combining satellite, airborne and ground-based observations, and numerical experiments through the use of the non-hydrostatic meso-scale model Meso-NH.

The synoptic situation in the second half of May 2008 over Europe was marked by strong convective activities associated to the passage of a frontal system over Central Europe. The high-pressure system located over Northern Africa moved slowly northward and favored the spread of dust over northwestern and central parts of Europe while convection triggered ahead of the trough over Western Europe. The AOT typically ranged from 0.1 to 0.5 at the wavelength of 440 nm, with maximum values close to 1 found over Cabauw. Through the use of the OMI-AI, it was well-identified that the dust coming from the Western and Central Sahara reached the Northern Europe. The Meso-NH simulations were in fairly good agreement with the network observations. In particular over Cabauw, where the AOT peak observed on 31th May with a maximum of 1 was well reproduced. The total amount of dust emitted during the study period was estimated to 185 Tg. The analysis of the removal processes revealed that only 7 % of the total dust emitted was lost by dry deposition. Moreover, it was shown that the dust was mainly removed by implicit precipitation, but the impact of the explicit precipitation was not negligible in spite of a horizontal grid spacing of 25 km. In total, the amounts scavenging by implicit and explicit precipitations were estimated to 57 Tg and 18 Tg, respectively.

From the UV lidar observations at 353 nm at Cabauw, the vertical structure of aerosol was assessed. The main dust layer was located between 2.5 and 5.2 km height, and the presence of dust was probed at 0.9 km asl. Values of the depolarization ratio indicated mixture of anthropogenic and dust particles between 0.5 km asl and 1.8 km asl on 29th May onwards. This suggests the possibility of dust to be mixed with anthropogenic emissions in Europe. Moreover we note that the depolarization ratio indicated possible mixing of dust haze.

Airborne measurements embedded on the ATR-42 aircraft revealed a dependence of the scattering coefficient to the wavelength while the Angström exponent mainly ranged from 0.5 to 1.4 at Cabauw and its vicinity. As a result of the simulated transport and wet deposition of dust, aerosol impaction scavenging is shown to be the main process by which particles were deposited. This was due to high precipitation scavenging efficiency for the coarse mode, particularly below 4 km asl.

It is also known that dust aerosols in clouds can act as ice nuclei [Chou et al., 2011; DeMott et al., 2003; Seifert et al., 2010]. Furthermore, the dust particles can enhance their hygroscopic properties, by coating or adsorbing soluble materials during their transport, and favored the formation of cloud condensation nuclei [Levin et al., 1996; Sassen et al., 2002; 2003; Sullivan et al., 2009]. Further analysis of the dust microphysical properties such as dust mixing with anthropogenic aerosol will be examined in a forthcoming study.

Liste des figures

Figure 0.1 : Structure thermique des couches atmosphériques	7
Figure 0.2 : Comparaison des variations de la température en surface observées (trait noir) à l'échelle du globe et des continents avec les résultats simulés par des modèles climatiques intégrant les forçages naturels seulement ou les forçages naturels et anthropiques pour la période de 1906 à 2005. Les bandes ombrées en bleu indiquent la fourchette comprise entre 5 et 95% des simulations qui ne considèrent que les forçages naturels produit par l'activité solaire et volcanique. Les bandes ombrées en rouge représentent la fourchette comprise entre 5 et 95% des simulations prenant en compte que les forçages naturels et anthropiques (d'après IPCC 2007).....	8
Figure 0.3 : : Parcours des aérosols inhalés dans l'appareil respiratoire humain selon leur diamètre (source : http://www.atmospacca.org).....	9
Figure 0.4 : Estimation de la diminution de l'espérance de vie (en mois) en Europe imputable aux aérosols dont le diamètre est inférieur à 2.5 µm ; Situation 2000 (D'après AFSSE, 2005)..	11
Figure 0.5 : Illustration schématique des processus de croissance et de vieillissement intervenant dans le cycle de vie des aérosols, de la formation au dépôt des aérosols. Les divers processus sont indiqués par les lettres suivantes : a) l'émission, b) la nucléation, c) la coagulation, d) la condensation, e) la sédimentation/le dépôt sec, f) la collection, g) le dépôt humide (source : Aouizerats, 2010)..	13
Figure 1.1 : : Illustration d'un aérosol en mélange interne hétérogène. Le carbone organique, le carbone-suie et les aérosols minéraux constituent préférentiellement les noyaux des aérosols en mélange interne hétérogène, alors que les espèces comme le sulfate, le nitrate et les sels marins se trouvent préférentiellement à la surface des aérosols (D'après GIEC 2001)..	21
Figure 1.2 : Description de la distribution granulométrique d'une population d'aérosols et de leurs processus de formation et de dépôt. Adaptée de Whitby (1978).....	23
Figure 1.3 : Représentation du régime de diffusion associé à la taille des particules, d'après Measures, 1984.....	27
Figure 1.4 : Estimation du forçage radiatif moyen à l'échelle globale en 2005 (valeur les plus probables et intervalles d'incertitude de 5 à 95%) par rapport à 1750 pour le CO ₂ , le CH ₄ , le N ₂ O et les autres agents et mécanismes important, ainsi l'étendue géographique type (échelle spatiale) du forçage et le niveau de compréhension scientifique (NCSsc). La fourchette correspondant aux traînées de condensation linéaire ne tient pas compte des effets éventuels de l'aviation sur la nébulosité (d'après IPCC 2007)..	34

Figure 1.5 : Schéma présentant les divers effets radiatifs des aérosols. Les points noirs représentent les aérosols, et les cercles blancs correspondent aux nombres de gouttelettes nuageuses. Les traits noirs représentent le rayonnement solaire incident et réfléchi, et les traits ondulés le rayonnement infrarouge émis. Les cercles blancs indiquent la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses (CDNC). Un nuage non perturbé contient de plus large gouttes nuageuses car seuls les aérosols naturels sont disponibles pour servir de noyaux de condensation (CCN), tandis qu'un nuage perturbé contient davantage de petites gouttes nuageuses étant donné que les aérosols naturels et anthropiques sont disponibles pour servir de CCN. Les traits gris verticaux représentent les précipitations, et le LWC se rapporte au contenu en eau liquide. (d'après Foster et al., 2007)..... 35

Figure 1.6 : Schématisation du premier et du second effet indirect comme proposé initialement par Twomey (1977) et Albrecht (1989) (adapté de Stevens et Feingold, 2009). La situation du haut correspond à des conditions de faibles concentration en aérosols tandis que les conditions de fortes concentration en aérosols est représentée en bas. D'après Malavelle, 2011)..... 38

Figure 1.7 : Forçage radiatif semi-direct en fonction du type de nuage (cumulus ou stratocumulus) et de sa position par rapport à la couche d'aérosol (AA : Absorption du rayonnement solaire par la couche d'aérosol). D'après Péré, 2010..... 39

Figure 1.8 : Evolution de la sursaturation (à T=293K) en fonction du diamètre pour le chlorure de sodium (NaCl) et sulfate d'ammonium (NH₄)₂SO₄, d'après Seinfeld et Pandis, 1998..... 41

Figure 1.9 : La distribution géographique des principales régions sources d'aérosols désertiques à l'échelle globale : (a) L'Afrique du Nord, (b) La péninsule Arabique, (c) L'Asie Centrale, (d) La Chine de l'Ouest, (e) La Chine de l'Est, (f) L'Amérique du Nord, (g) L'Amérique du Sud, (h) L'Afrique du Sud, (i) L'Australie, d'après Prospero et al., (2002) et Tanaka et al., (2006)..... 45

Figure 1.10 : La localisation de 131 « hot spot » à partir de la moyenne sur 1984-1990 de l'Aerosol Index (AI) issu des observations spatiales de TOMS (Engelstaedter et Washington, 2007b)..... 48

Figure 1.11 : . La carte du relief de l'Afrique du Nord (source : <http://www.ngdc.noaa.gov>). 49

Figure 1.12 : . La fréquence d'activation des zones sources en Afrique du Nord calculée à partir des Aerosol Index (AI) issus des observations spatiales de l'imageur OMI durant la période 2006-2010. D'après Schepanski et al, 2007 50

Figure 1.13 : Le cycle annuel des émissions d'aérosols désertiques depuis les sources nord africaines obtenu à partir des valeurs de AI de TOMS (x10) sur la période de 1980 à 1992 (Engelstaedter et al., 2006)..... 52

Figure 1.14 : : Mouvements des grains du sol sous l'action du vent (source : <http://oceanworld.tamu.edu>)..... 55

Figure 1.15 : Illustrations du processus de sandblasting dans le cas où la particule entraînée dans un mouvement (a) de saltation et (b) de reptation, d'après Bouet et al., (2007).....	56
Figure 1.16 : Image d'un soulèvement d'aérosols désertiques associé à la convection humide (Haboob) observé au Soudan. (Source : Hamblin et Christiansen, 2001).....	60
Figure 1.17 : Principales trajectoires du transport des aérosols désertiques émis depuis les sources nord africaines : (A) Transatlantique ; (B) Méditerranéenne-Européenne et (C) Moyen Orient, d'après Israelevich et al., (2002).	61
Figure 1.18 : (a) Anomalies de géopotentiel et (b) champs de vent à 700 hPa caractérisant un épisode de transport d'aérosols désertiques nord africains vers la Méditerranée et l'Europe. D'après Barkan et al., (2005)..	63
Figure 2.1 : Photo du photomètre CIMEL de la Réunion.	72
Figure 2.2 : Répartition des stations participant au réseau AERONET (source : www.aeronet.gsfc.nasa.gov)..	73
Figure 2.3 : Illustration schématique du principe de mesures photométriques (le photomètre étant désigné par « P ») de distribution angulaire de luminance du ciel dans l'almucantar $L(\Theta, \Theta_S, \Theta_V)$ avec Θ l'angle de diffusion de la population d'aérosol observé Θ_V , l'angle de visée zénithal toujours constant dans le cas de la prise de mesure dans l'almucantar et Θ_S l'angle de visée solaire (D'après Kacenenbogen-Tilot, 2008).....	74
Figure 2.4 : Illustration des six trajectoires définissant les six catégories de vol effectué lors de ce mois de mai 2008 par l'ATR-42 (D'après Crumeyrolle et al., 2010).....	78
Figure 2.5 : Photo de l'ATR-42 lors d'un vol de recherche lors de la campagne EUCAARI-IMPACT de mai 2008. Les rectangles indiquent la localisation des différents capteurs installés à l'extérieur de l'avion. (Source : http://www.pa.op.dlr).....	80
Figure 2.6 : Photo de la veine de prélèvement à (a)l'extérieur et à (b) l'intérieur de l'ATR-42 (D'après Crumeyrolle, 2008)..	81
Figure 2.7 : Illustration schématique de la composition d'un Aerosol Mass spectrometer (source : http://cires.colorado.edu).....	83
Figure 2.8 : Illustration schématique d'un compteur de noyau de condensation (D'après Roberts et Nenes, 2005)..	84
Figure 2.9 : Illustration schématique du néphélomètre (TSI 3563) utilisée dans le cadre cette étude (D'après Verhaege, 2008).....	85
Figure 2.10 : Illustration schématique du principe de fonctionnement d'un lidar à rétrodiffusion. (D'après Mondelain, 1992)..	86
Figure 2.11 : Les six satellites (AURA, PARASOOL, CALIPSO, CLOUDSAT, AQUA, OCO) de la constellation A-TRAIN en orbite (autour de 700 km d'altitude) autour de la Terre. (source : svs.gsfc.nasa.gov/Gallery.A-Train).....	88

Figure 2.12 : Mesure de la colonne totale de dioxyde de soufre lors de l'éruption du volcan Islandais Eyjafjallajokull par OMI le 5 mai 2010 à 1621 UT (à gauche), et les valeurs de AI estimées par OMI pour la même période d'observation (à droite) (source : IAVCEI RSC Web)..... 90

Figure 2.13 : a) Photo de CALIOP lors d'un test réalisé dans les laboratoires de la NASA, et (b) illustration schématique du principe de fonctionnement de CALIOP. (source : Winker et Hund.,2007)..... 91

Figure 2.14 : Description des échanges entre le modèle atmosphérique Méso-NH et SurfEX (source : <http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/>). 94

Figure 2.15 : Représentation d'une particule d'aérosol de rayon r dont le centre est dans la section balayée par une goutte de pluie de rayon R , par unité de temps. A) Représentation de la section balayée par la goutte collectrice, en bleu. B) La distance Δ entre le centre la goutte et la particule est inférieure à la valeur critique Δ_0 : il y a collision. C) La distance Δ entre la goutte et la particule est supérieure à la valeur critique Δ_0 : la particule d'aérosol suit la ligne de courant sans entrer en collision. (D'après Seinfeld et Pandis, 1998). La figure est extraite de Crumeyrolle (2008)..101

Figure 2.16 : Efficacité de collection E déterminée pour une goutte de pluie ayant un rayon de 0.1 mm (trait plein) et 1 mm (en pointillée).(D'après Seinfeld et Pandis, 1998)..... 102

Figure 3.1 : Conditions synoptiques du 27 mai (au-dessus) et du 29 mai (en dessous) : (a et c) la hauteur de géopotentiel (en couleur) et le champ de vent (vecteurs) à 700 hPa à 1200 UTC, et (b et d) les images satellites de MSG (Meteosat Second Generation) à 0.6 μm (à 1200 UTC le 27 mai (Figure. 4.1b) et 1230 UTC le 29 mai (Figure 4.1d)). 110

Figure 3.2 : Précipitation accumulée en 24 heures (en mm) mesurée par TRMM (Tropical Rainfall Measurement Mission) (a) le 27 mai et (b) le 29 mai 2008 112

Figure 3.3 : Evolution de l'AI (Aerosol Index) obtenus à partir des observations OMI le (a) 27 mai, (b) 28 mai, (c) 29 mai et (d) 30 mai à 1200 UTC. 114

Figure 3.4 : Evolution des AOT des aérosols désertiques et le champ de vent à 700 hPa (vecteurs) issus de la simulation de référence (REF) à 1200 UTC pour le (a) 27 mai, (b) 28 mai, (c) 29 mai et (d) 30 mai 2008. 116

Figure 3.5 : Evolution des AOT obtenues par mesures photométriques à 440 nm (points rouges) et simulées par Méso-NH à 500 nm (trait bleu) à (a) Lecce, (b) Kanzelhohe, (c) Cabauw et (d) Helgoland..... 118

Figure 3.6 : Coupe verticale du signal rétrodiffusé (en $\text{km}^{-1}\text{sr}^{-1}$) (a) observé par CALISPO (adapté selon les grilles du modèle) à 0118 UTC et (b) modélisé par Méso-NH à 0100 UTC au-dessus du bassin méditerranéen et de l'Italie le 28 mai. 120

Figure 3.7 : (b) Coupe verticale de la concentration massique du panache le 28 mai à 0100 UTC suivant (a) la trajectoire de CALIPSO (en trait noir).. 121

Figure 3.8 : Coupe verticale de la concentration massique (en g.m^{-3}) du panache le 28 mai à 0100 UTC le long du panache (Fig. 4.7, trait blanc), allant de la méditerranée au nord-ouest de la France en passant par la région des Alpes. 122

Figure 3.9 : Estimation du flux net accumulé à la surface par Méso-NH durant la période du 25 au 31 mai 2008. 124

Figure 3.10 : Estimations journalières de la masse d'aérosols désertiques perdue (en Tg) par dépôt sec au sein de l'Afrique du Nord et de l'Europe par Méso-NH du 25 mai au 31 mai 2008. 126

Figure 3.11 : Evolution temporelle (a) des précipitations modélisée par Méso-NH et (b) de l'écart relatif des précipitations entre TRMM et Méso-NH (REF) en fonction de la latitude du 25 au 31 mai 2008. 127

Figure 3.12 : Précipitations accumulées en 24 heures (en mm) observées par (a et d) TRMM et (b et c) estimées par Méso-NH par l'intermédiaire de la simulation REF pour les journées (au-dessus) du 29 mai et (au-dessous) du 30 mai 2008. 129

Figure 3.13 : : Distribution spatiale des différences de la charge en aérosols accumulées (en g.m^{-2}) du 25 au 31 mai entre les simulations NOSCAV et REF (REF-NOSCAV).. 131

Figure 3.14 : Distribution spatiale du nombre d'éclair détecté durant les douze premières heures par le réseau WWLLN le 29 mai 2008. Les deux doubles flèches représentent la localisation de la coupe verticale réalisée à la figure 3.15. 132

Figure 3.15 : Coupe verticale de concentration en nombre de particules (cm^{-3}) et le champ de vent vertical réalisée le 29 mai à 1200 UTC au-dessus du bassin méditerranéen entre (39.5°N ; 7.5°E) et (42.5°N ; 10.5°E) à proximité de la Corse et de la Sardaigne. 133

Figure 3.16 : Evolution des AOT dues aux aérosols désertiques et le champ à 700 hPa (vecteurs) issus de la simulation de référence (REF) du 25 mai 2008 à 1200 UTC. 135

Figure 4.1 : Evolution temporelle du coefficient de rétrodiffusion ($\text{km}^{-1} \text{sr}^{-1}$) à 353 nm à Cabauw entre le 27 et 30 mai 2008. Les traits marrons indiquent l'évolution de l'épaisseur de la couche d'aérosols désertiques. 140

Figure 4.2 : Evolution temporelle du rapport de dépolarisation à 353 nm obtenu à partir du LIDAR UV à Cabauw du 27 au 30 mai 2008. 141

Figure 4.3 : Evolution temporelle des AOT observées à 440 nm (points rouges) et du coefficient d'Angström calculé pour l'intervalle 440-870 nm (croix verte) à Cabauw entre le 28 et 31 mai 2008. 142

Figure 4.4 : Evolution du coefficient de diffusion mesuré avec le néphélomètre (trait plein) et simulée par la simulation de référence (REF) au-dessus des Pays-Bas entre 1350 UTC et 1410 UTC le 30 mai 2008. Le trait noir représente les paliers de vol de l'ATR-42. 144

Figure 4.5 : Evolution du coefficient de diffusion mesuré avec le néphélomètre (trait plein) et simulée en utilisant les nouveaux indices de réfraction au-dessus des Pays-Bas entre 1350 UTC et 1410 UTC le 30 mai 2008. Le trait noir représente les paliers de vol de l'ATR-42. 146

Figure 4.6 : Evolution (a) du SSA et (b) du coefficient d’extinction simulées à 550 nm (trait bleu) et observés à 550 nm (trait rouge) le 30 mai 2008 de 1350 UTC à 1410 UTC au-dessus des Pays-Bas à proximité de Cabauw entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.81°N ; 5.06°E). Le trait représente les paliers de vol de l’ATR-42.. 147

Figure 4.7 : Coupe verticale du coefficient d’extinction du 30 mai 2008 aux Pays-Bas entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.81°N ; 5.06°E) obtenue à partir de la simulation REF. Le trait représente le palier de vol de l’ATR-42. 149

Figure 4.8 : Contribution (en %) (a) du mode grossier et (b) du mode d’accumulation sur l’extinction du 30 mai 2008 au Pays-Bas entre (51.96°N ; 5.78°E) et (51.81°N ; 5.06°E) calculée a partir de la simulation REF 151

Figure 4.9 : Profils verticales de (a) concentration en masse ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) et (b) en nombre de particules (m^{-3}) à Cabauw le 30 mai 2008 à 1400 UTC obtenus à partir de la simulation REF (trait plein) et NOSCAV (en pointillé). Les concentrations sont calculées pour les trois modes d’aérosols désertiques de Méso-NH ayant des rayons médians de 0.039 μm (bleu), 0.32 μm (rouge) et 2.5 μm (noir). 153

Figure 4.10 : Rétrojectoire calculée sur cinq jours à partir du 30 mai 2008 à 1400 UTC par le modèle HYSPLIT à 5500 m (vert), 2550 m (bleu) et à 1000 m (rouge). 154

Figure 4.11 : Evolution de la concentration en nombre de CCN (en cm^{-3}) pour cinq niveaux de sursaturation à Cabauw du 25 au 31 mai 2008. 156

Figure 4.12 : Evolution de la concentration ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) de nitrate (rouge), de sulfate (bleu) et de l’ammonium (vert) mesurée avec l’ AMS de la station de Cabauw du 25 mai à 00 UTC au 31 mai 0700 UTC. 158

Figure 4.13 : Coupe verticale de la concentration massique ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) réalisée le 28 mai 2008 à 1200 UTC entre (42.5°N ; 11.5°E) et (47.5°N ; 13.5°E) suivant (a) la trajectoire obtenue par HYSPLIT pour la le 28 mai 2008. La concentration du panache d’aérosols désertiques (mode fin et accumulation) est indiquée les champs de couleur. La somme des concentrations des aérosols anthropiques et des sels chimiques sont indiquées par les iso-lignes blanches.. 160

Figure 4.14 : Coupe verticale centrée sur Cabauw de la concentration massique ($\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) centrée sur Cabauw le 30 mai 2008 à 1400 UTC. La concentration des aérosols désertiques (mode fin et accumulation) est indiquée les champs de couleur. La somme des concentrations des aérosols anthropiques et des sels chimiques sont indiquées par les iso-lignes blanches. 161

Figure 4.15 : Répartition (en %) de la masse des sels modélisée par Méso-NH entre la surface et 1km au-dessus de Cabauw le 30 mai à 1400 UTC. 163

Figure 4.16 : Coupe verticale centrée sur Cabauw de la fraction de sels (SOA, NO_3 , SO_4) par rapport à la masse totale sels et d’aérosols désertiques simulés en mélange interne le 30 mai 2008 à 1400 UTC. 165

LISTE DES FIGURES

- Figure 4.17 : Evolution de la concentration de (a) sulfate et de (b) nitrate obtenue à partir de l'AMS et simulée par Méso-NH du 25 mai 00 UTC au 30 mai 0700 UTC à Cabauw 166
- Figure 5.1 : Evolution du rapport CCN/CN à niveau de sursaturation de 0.2 au-dessus des Pays-Bas entre 1350 UTC et 1410 UTC le 30 mai 2008. Le trait noir représente les paliers de vol de l'ATR-42. 166
- Figure 5.2 : Localisation des foyers d'incendie au cours de l'année 2010 à partir des observations MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer)... 168

Liste des tableaux

Table 1.1 : Estimation des émissions annuelles (en Tg/an) des principaux types d'aérosols (sources IPCC 2001, 2007). D'après Péré (2010).....	19
Table 1.2 : Albédo de simple diffusion pour les principaux composés particulaires atmosphériques. D'après Malavelle, 2011....	31
Table 1.3 : : Paramètre d'asymétrie pour les principaux composés particulaires atmosphériques. D'après Malavelle, 2011 et Péré 2010	32
Table 1.4 : Estimation du forçage radiatif direct des aérosols (en $W.m^{-2}$) au sommet de l'atmosphère (ΔF_{TOA}), en surface (ΔF_{BOA}) et atmosphérique (ΔF_{atm}) réalisée lors de campagnes de mesures récentes et pour différents types d'aérosols. La compilation est faite à partir des études de Pèrè et al (2010).	36
Table 1.5 : Récapitulatif des émissions globales annuelles d'aérosols désertiques (en Tg/an) estimées à partir de différents modèles globaux. La compilation est faite à partir des études de Mahowald et al. (2005) ; Zender et al. (2004) et Engelstaedter et al. (2006).	44
Table 1.6 : : Vitesse de friction seuil (en $m.s^{-1}$) pour différents type de surface sec. Lorsque ces valeurs sont dépassées, les poussières s'arrachent du sol. La compilation est faite à partir du travail de Beucher et al.,(2010)...	54
Table 1.7 : Exemple de rayons médians caractérisant les distributions granulométriques (en nombre) des aérosols désertiques obtenues par ajustement lognormale des observations issues de différentes stations nord africaines.....	65
Table 1.8 : Composition chimique moyenne des sols désertiques, d'après Warner 1988.	66
Table 1.9 : Indices de réfraction ($n + k 10^{-3}i$) des aérosols désertiques nord africains déterminés au cours de ces dix dernières années, d'après Malavelle, 2011.....	68
Table 2.1 : Propriétés optiques et microphysiques restituées par le photomètre solaire.....	76
Table 2.2 : Incertitude sur les mesures AERONET d'indice de réfraction (n (partie réelle et imaginaire), d'épaisseur optique d'extinction τ et de distribution en volume ($dV/d\ln r$) dans le cas de l'application des recommandations de Dubovick et al (2000)..	76
Table 2.3 : Liste des instruments utilisés dans cette étude, et également la localisation de ces instruments lors de la réalisation de la mesure.....	79
Table 2.4 : Liste des variables pronostiques utilisées dans ISBA, et ainsi que leur symbole...95	
Table 2.5 : Espèces et groupes d'espèces gazeuses émises nécessaires pour la condensation où la nucléation dans le schéma réactionnel ReLACS 2	97

LISTE DES TABLEAUX

Table 3.1 : : Estimations journalières de la masse (Tg) d'aérosols désertiques émis par Méso-NH du 25 au 31 mai 2008.....	125
---	-----

Abstract

This thesis focuses on the evolution of the dust physical and chemical properties through a case of long-range transport of Saharan dust over Northern Europe. This episode of May 2008 is considered as the strongest event of Saharan dust transport to Europe observed since these last five years. This spread of dust is investigated by combining observations (ground-based, airborne, satellite) and the meso-scale model Méso-NH.

The analysis of the removal processes reveals that the amounts lost by dry and wet deposition represent 7 and 40 % the total dust emitted respectively. The observed aerosol optical thickness ranged from 0.1 to 0.8 at the wavelength of 440 nm, with a maximum value close to 1 is found over the Netherlands. Over that site, the dust layer was mainly located between 2.5 and 5.2 km, moreover dust was also present at 0.5 km. The concentration of dust inside these two layers is estimated to 350 and 450 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ respectively. Nevertheless, the usual optical characteristics of Saharan dust were not observed. In particular, the scattering coefficient measurements revealed a strong spectral dependence observed during the 30th May, close to Cabauw. The analysis of the numerical experiments revealed that this was due to high precipitation scavenging efficiency for the coarse mode. The presence of Saharan dust coincides with an increase of the cloud condensation nuclei (CCN) concentration. Our results suggest that the mixing processes between the Saharan dust and anthropogenic particles have led to an increase of the Saharan dust hygroscopic properties. Thus, this thesis confirms that physical and chemical conditions of the atmosphere govern the life cycle of dust.

Keywords: Saharan dust, scavenging processes, optical properties, hygroscopicity, dust aging, EUCAARI-IMPACT, Méso-NH

Résumé

Cette thèse est consacrée à l'étude de l'évolution des propriétés physico-chimiques d'un panache d'aérosols désertiques nord africains au cours de son transport vers l'Europe du Nord. Cet épisode de mai 2008 est considéré comme l'évènement de transport d'aérosols désertiques le plus important de ces cinq dernières années observé sur le continent européen. La propagation de ce panache a été étudiée en combinant des moyens d'observation (sols, aéroportées, spatiales) au modèle de recherche Mésos-NH.

L'analyse des processus de dépôt a révélée que les quantités éliminées de l'atmosphère par dépôt sec et humide représentent respectivement 7 et 40 % de la quantité émise. Les valeurs d'épaisseur optique mesurées à 440 nm sur l'Europe variaient de 0.1 à 0.8, avec un maximum proche de 1 au-dessus des Pays-Bas. Au-dessus de cette région, les aérosols désertiques sont principalement situés entre 2.5 et 5.2 km d'altitude, mais aussi proche de la surface. La concentration en aérosols désertiques au sein de ces deux couches a été estimée respectivement à 350 et 450 $\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Néanmoins, les mesures réalisées ne présentaient pas les caractéristiques optiques habituellement associées à la présence d'aérosols désertiques. En particulier, la présence d'une importante dépendance spectrale a été observée le 30 mai à proximité de Cabauw. L'exploitation des simulations ont permis de montrer que cela résultait d'une efficacité de lessivage plus importante du mode grossier. La présence d'aérosols désertiques coïncide avec une augmentation de la concentration des noyaux de condensation (CCN). Nos résultats suggèrent que le mélange entre le panache et les aérosols de pollution d'origine anthropique a conduit à une augmentation des capacités hygroscopiques des aérosols désertiques. Ce travail de recherche confirme ainsi que les conditions physico-chimiques de l'atmosphère régissent le cycle de vie des aérosols.

Mot clés : aérosols désertiques nord africains, lessivage, propriétés optiques, hygroscopicité, vieillissement des aérosols désertiques, EUCAARI-IMPACT, Mésos-NH