



HAL
open science

Interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages en région océanique pristine

Faustine Mascout

► **To cite this version:**

Faustine Mascout. Interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages en région océanique pristine. Océan, Atmosphère. Université de Lille, 2022. Français. NNT : 2022ULILR073 . tel-04198315

HAL Id: tel-04198315

<https://theses.hal.science/tel-04198315>

Submitted on 7 Sep 2023

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.

UNIVERSITÉ DE LILLE

École doctorale **Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement (SMRE)**

Unité de recherche **Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA)**

Thèse présentée par **Faustine MASCAUT**

Soutenue le **12 décembre 2022**

En vue de l'obtention du grade de docteur de l'Université de Lille

Discipline **Physique**

Spécialité **Terre, Enveloppes fluides**

Interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages en région océanique pristine

Thèse dirigée par **Olivier PUJOL** directeur
Jérôme BRIOUDE co-directeur

Composition du jury

| | | |
|----------------------------|---------------------------|---|
| <i>Rapporteurs</i> | Nicolas BELLOUIN | professeur au Dept. of Meteorology – Univ. of Reading |
| | Andrea FLOSSMANN | professeure au LaMP – Univ. Clermont Auvergne |
| <i>Examineurs</i> | Philippe DUBUISSON | professeur au LOA – Univ. Lille président du jury |
| | Marc LEFRANC | professeur au PhLAM – Univ. Lille |
| | Marc MALLET | directeur de recherche au CNRM – Météo France |
| | Clémence ROSE | directrice de recherche au LaMP – Univ. Clermont Auvergne |
| <i>Invitée</i> | Stéphanie EVAN | directrice de recherche au LACy – Univ. La Réunion |
| <i>Directeurs de thèse</i> | Olivier PUJOL | MCF HDR au LOA – Univ. Lille |
| | Jérôme BRIOUDE | MCF HDR au LACy – Univ. La Réunion |

INTERACTIONS AÉROSOLS-VAPEUR D'EAU-NUAGES EN RÉGION OCÉANIQUE PRISTINE

Résumé

Les régions ultrapropres en termes de contenu en aérosols (« pristines ») présentent un intérêt de premier plan dans l'étude du changement climatique car elles sont grandement épargnées par les pollutions d'origines anthropiques. Caractérisées par des épaisseurs optiques d'aérosols (AOD) inférieures à 0.1, elles sont des indicateurs précieux pour la composante naturelle du climat, laquelle reste toujours mal comprise car masquée par des contributions anthropiques. En raison de ces faibles AOD, les interactions aérosols-nuages peuvent présenter une sensibilité exacerbée : de petites variations de l'AOD ou de la quantité de vapeur d'eau peuvent avoir des conséquences importantes (non linéaires) sur la formation des nuages et leurs propriétés.

Le Sud de l'océan Indien, identifié comme région océanique pristine, a fait l'objet d'une campagne de mesures (campagne AEROMARINE) de plusieurs mois visant à collecter des données sur les aérosols marins (propriétés optiques, distribution verticale, ...) et les paramètres thermodynamiques (température, vapeur d'eau, ...) au large des côtes de l'île de La Réunion. L'analyse des données acquises durant cette campagne, notamment les AOD et l'humidité ambiante, permet de mieux comprendre l'évolution de ces paramètres dans un environnement « pristin ».

Les résultats obtenus et présentés dans cette thèse ont permis de caractériser la distribution verticale des aérosols naturels (marins). Ces données *in-situ* sont utiles pour l'élaboration de deux nouveaux modèles qui pourraient aider à mieux comprendre le système aérosols-vapeur d'eau-nuages. Le premier modèle que nous présentons est une modélisation simplifiée, à trois équations (trois degrés de liberté), fondée sur la dynamique de la compétition entre espèces (modèle de type proie-prédateur). Il permet de décrire les propriétés macroscopiques des interactions entre aérosols, vapeur d'eau et nuages chauds, sans considérer toute la complexité du système. Il est confronté à des mesures *in-situ*, les réanalyses ERA5 ou encore des observations satellites dans différentes situations météorologiques.

En outre, nous présentons un second modèle pour l'étude des champs de nuages à méso-échelle. Baptisé IOCIM (Indian Ocean Cloud Ising Model), ce modèle est de type *Ising*; il s'appuie sur la physique statistique dont on connaît l'efficacité pour l'étude des comportements collectifs dans la matière condensée.

Mots clés : AÉROSOLS MARINS, RÉGION OCÉANIQUE, OCÉAN INDIEN, VAPEUR D'EAU, NUAGES, INTERACTIONS AÉROSOLS-NUAGES, MODÉLISATION, MODÈLE PROIE-PRÉDATEUR, MODÈLE ISING (IOCIM), CAMPAGNE DE TERRAIN AEROMARINE

Abstract

Ultra-clean regions in terms of aerosol content (“pristine”) are of prime interest in the study of climate change because they are largely spared from anthropogenic pollution. Characterized by aerosol optical thicknesses (AOD) lower than 0.1, they are valuable indicators for the natural component of the climate, which is still poorly understood because it is masked by anthropogenic contributions. Due to these weak AODs, aerosol-cloud interactions can present a high sensitivity: small variations in the AOD or the amount of water vapour can have large (non-linear) consequences on the formation of clouds and their properties.

The Southern Indian Ocean, identified as a pristine ocean region, was the subject of a field campaign (AEROMARINE campaign) during several months aimed at collecting data on marine aerosols (optical properties, vertical distribution, etc...) and thermodynamic parameters (temperature, water vapour, etc.) off the coast of Reunion Island. The analysis of the data acquired during this campaign, in particular the AOD and the ambient humidity, makes it possible to better understand the evolution of these parameters in a “pristine” environment.

The results obtained, and presented in this thesis, have made it possible to characterize the vertical distribution of natural (marine) aerosols. These *in-situ* data are useful for the development of two new models that could help to better understand the aerosol-water vapour-cloud system. The first model we present is a simplified one, with three equations (three degrees of freedom), based on the dynamics of species competition (prey-predator like model). It makes it possible to describe the macroscopic properties of the interactions between aerosols, water vapour and warm clouds, without considering the whole complexity of the system. It is confronted with *in-situ* measurements, ERA5 reanalyses or even satellite observations in different meteorological situations.

In addition, we present a second model for the study of mesoscale cloud fields. Called IOCIM (Indian Ocean Cloud Ising Model), this model is of the *Ising* type; it is based on statistical physics, the effectiveness of which is known for the study of collective behavior in condensed matter.

Keywords: MARINE AEROSOLS, OCEAN REGION, INDIAN OCEAN, WATER VAPOR, CLOUDS, AEROSOL-CLOUD INTERACTIONS, MODELING, PREY-PREDATOR MODEL, ISING MODEL, AEROMARINE FIELD CAMPAIGN

Remerciements

Après trois ans, il est l'heure de remercier tous ceux qui ont contribué, d'une façon ou d'une autre, à ce travail de thèse.

Je commence par remercier le Labex CaPPA et l'Université de Lille qui ont permis, par leur financement, que cette thèse voit le jour.

Je remercie également les deux directeurs de laboratoire qui m'ont accueillis au sein du LOA : Frédéric Parol et Philippe Dubuisson. Je remercie doublement Philippe Dubuisson pour avoir accepté de présider mon jury de thèse. Merci également à mes deux rapporteurs, Nicolas Bellouin et Andrea Flossmann, d'avoir accepté d'évaluer ce manuscrit. Merci, évidemment, à l'ensemble des membres du jury (Marc Lefranc, Marc Mallet, Clémence Rose et Stéphanie Evan), pour leur présence lors de ma soutenance.

Puis mes pensées vont, bien sûr, à mes deux directeurs : Olivier Pujol et Jérôme Brioude. Un grand merci à tous les deux pour votre excellent encadrement : votre patience, vos encouragements, vos conseils, votre soutien quotidien, votre bonne humeur, votre confiance, votre disponibilité permanente, ... La liste est longue, merci pour tout !

Je remercie Anne et Marie-Lyse, pour leur aide sur les questions administratives. Merci également à Fabrice et Jean-Jacques, pour leur aide technique, leur patience infinie et leur gentillesse. Je remercie également les collègues d'enseignement (de l'IUT et de l'Université), qui m'ont conseillée et beaucoup appris.

Je remercie également tous mes collègues du LOA, pour leur bonne humeur et leur gentillesse. Les doctorants devenus docteurs (dans l'ordre alphabétique) : Antoine, Lucie, Marcos, Mili, Perla et Simonne ; et ceux qui le seront bientôt : Ale, Fer, Gabriel, Raphaël, Robin, William et tous les autres (courage !). Un merci particulier à ceux d'entre eux (qui se reconnaîtront) qui m'ont énormément soutenue, avec qui j'ai partagé mon quotidien, mes fous-rires, mes pauses clopes

et qui m'ont écoutée dans les moins bons moments. Merci également à tous ceux présents à ma soutenance qui ont rendu ce jour inoubliable.

J'adresse aussi un grand merci à ma famille et mes amis de longue date, devenus famille. Un énorme merci à ma mère, mon père, mon frère, ma marraine et mes grands-parents de m'avoir accompagnée et supportée (dans tous les sens du terme) tout au long de ces trois ans. Merci à tous pour votre amour et votre soutien sans faille. Une pensée toute particulière à mon grand-père, Jacques, qui, comme eux, a toujours cru en moi et m'a toujours encouragée. Bien qu'il soit parti juste avant que je ne soutienne cette thèse, savoir qu'il aurait été fier de moi m'a beaucoup aidé.

Enfin, je remercie ceux que j'ai pu croiser, avec qui j'ai pu discuter et échanger, et tous ceux que j'aurai pu oublier.

Faustine MASCAUT

Table des Matières

| | |
|--|-------------|
| Résumé | iii |
| Remerciements | v |
| Table des Matières | vii |
| Liste des tableaux | xi |
| Table des figures | xiii |
| Introduction Générale | 1 |
| | |
| I État de l'art & Contexte | 5 |
| | |
| 1 Les aérosols & les nuages | 7 |
| 1.1 Les aérosols et leurs caractéristiques | 7 |
| 1.1.1 Classification par taille et processus de croissance | 7 |
| 1.1.2 Les sources d'aérosols | 10 |
| 1.1.3 Les aérosols marins | 13 |
| 1.2 Les nuages : type, organisation et formation | 16 |
| 1.2.1 Classification et types de nuages; formation | 16 |
| 1.2.2 Organisation des champs de nuages à méso-échelle | 20 |
| | |
| 2 Modélisation des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages | 25 |
| 2.1 Types de modèles | 26 |
| 2.2 Vue d'ensemble des modèles actuels | 27 |
| 2.2.1 Les aérosols dans les modèles | 27 |
| 2.2.2 Les propriétés nuageuses dans les modèles | 29 |
| 2.2.3 La vapeur d'eau dans les modèles | 32 |
| 2.3 Approche abordée dans cette thèse | 34 |

| | |
|---|------------|
| 3 Contexte, zone d'étude & méthodologie de la thèse | 37 |
| 3.1 Contexte de l'étude | 37 |
| 3.1.1 Interêt des régions océaniques « pristines » | 37 |
| 3.1.2 Le Sud de l'océan Indien | 41 |
| 3.1.3 Emplacement stratégique de l'île de La Réunion | 44 |
| 3.2 Méthodologie et motivation de la thèse | 45 |
| | |
| II Mesures <i>in-situ</i> dans le Sud de l'océan Indien | 49 |
| | |
| 4 Campagne de mesures AEROMARINE (2019) | 51 |
| 4.1 Contexte & objectifs | 51 |
| 4.2 Résultats principaux | 54 |
| 4.2.1 Propriétés optiques mesurées en vol | 54 |
| 4.2.2 Mesures en vol de concentrations d'aérosols | 56 |
| 4.2.3 Origines des masses d'air (modèle FLEXPART) | 58 |
| 4.3 Conclusion | 59 |
| 4.4 MASCAUT et al. (2022) | 61 |
| | |
| III Modélisation de l'interaction aérosols-vapeur d'eau-nuages au-dessus de l'océan Indien | 77 |
| | |
| 5 Modèle de type proie-prédateur | 79 |
| 5.1 Contexte & objectifs | 79 |
| 5.1.1 Modèle de PUJOL et JENSEN 2019 | 80 |
| 5.1.2 Introduction de la vapeur d'eau dans le modèle | 83 |
| 5.1.3 Contexte et ajustement des constantes | 86 |
| 5.2 Résultats | 91 |
| 5.2.1 Pour un nuage individuel | 92 |
| 5.2.2 Pour un champ de nuages sur une grille 2D | 96 |
| 5.3 Conclusions | 107 |
| 5.4 MASCAUT et al. (2023) | 109 |
| 5.4.1 Commentaire critique sur le modèle proposé | 110 |
| 5.4.2 Réponses à quelques questions | 112 |
| | |
| 6 Indian Ocean Cloud <i>Ising</i> Model (IOCIM) | 135 |
| 6.1 Définition & objectifs | 136 |
| 6.1.1 Rappels sur le modèle d'Ising | 136 |
| 6.1.2 Transposition aux champs de nuages | 137 |
| 6.2 Fonctionnement du modèle IOCIM | 138 |

| | |
|---|------------|
| 6.2.1 Description | 138 |
| 6.2.2 Mise en œuvre informatique | 140 |
| 6.3 Premiers résultats | 148 |
| 6.4 Conclusion et perspectives | 151 |
| 6.5 MASCAUT et al. (2023) | 152 |
| Conclusion Générale & Perspectives | 167 |
| Bibliographie | 171 |
| Annexes | 187 |
| Annexe A | |
| Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses ERA5 au-dessus de l’océan Indien (Chap. 5) | 189 |
| Annexe B | |
| Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-dessus de l’océan Indien (Chap. 5) | 199 |
| Annexe C | |
| Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses ERA5 au-dessus de la région Hauts-de-France (Chap. 5) | 213 |
| Annexe D | |
| Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-dessus de la région Hauts-de-France (Chap. 5) | 221 |

Liste des tableaux

| | | |
|-----|---|-----|
| 1.1 | Estimation des émissions annuelles (en <i>Mt/an</i>) des principales sources d'aérosols primaires (en gras) et d'aérosols secondaires. Tableau adapté du chapitre 7 du 5ème rapport du GIEC (BOUCHER et al. 2013). | 12 |
| 5.1 | Détails (processus physiques représentés, valeurs et unités SI) des différentes constantes dans les Éqs. 5.1 (O. PUJOL et JENSEN 2019). | 81 |
| 5.2 | Constantes cinétiques calculées par la méthode de minimisation des moindres carrés (voir texte pour les détails) en utilisant les observations dans trois cas d'étude. | 90 |
| 6.1 | Détails des différentes constantes en jeu dans les équations du modèle IOCIM, valeurs et unités SI (1/2) | 146 |
| 6.2 | Détails des différentes constantes en jeu dans les équations du modèle IOCIM, valeurs et unités SI (2/2) | 147 |

Table des figures

| | | |
|------|---|----|
| 1 | Champs de nuages dans l’océan Indien (Source : Google Image). | 2 |
| 1.1 | Classification usuelle pour l’étude de la taille des aérosols. | 8 |
| 1.2 | Distributions en nombre et volumique typiques des particules atmosphériques selon les différents modes (adaptée de la Fig.8.10 de SEINFELD et PANDIS 1998). | 10 |
| 1.3 | Principales sources naturelles d’aérosols. | 11 |
| 1.4 | Schématisation des deux premiers mécanismes de formation d’aérosols marins (film droplets et jet droplets). | 13 |
| 1.5 | Schématisation des principales sources d’aérosols marins et interactions avec leur environnement. Crédit : Erik Hans Hoffmann, TROPOS | 15 |
| 1.6 | Divers mécanismes proposés pour expliquer comment les aérosols affectent les nuages et les précipitations. Adapté du Groupe d’experts intergouvernemental sur l’évolution du climat (GIEC) [2007] et TAO et al. 2012. | 15 |
| 1.7 | Principaux genres de nuages. <u>Source</u> : Météo France. | 17 |
| 1.8 | Tailles, concentrations et vitesses de chute (dans le référentiel terrestre) des particules dans un nuage (YAU et ROGERS 1996). . . | 18 |
| 1.9 | Exemples d’observations satellites de cellules nuageuses ouvertes (open-cells) et fermées (closed-cells) au-dessus de l’océan. | 21 |
| 1.10 | Scènes issues de MODIS-Aqua représentant les quatre sortes d’organisations de champs nuageux de STEVENS et al. 2020 : Flowers, Sugar, Fish et Gravel. Images adaptées des figures 1 à 4 de STEVENS et al. 2020. | 23 |
| 3.1 | AOD moyen au-dessus des océans pour juin, juillet et août 2007. Les régions délimitées par un contour noir correspondent à des régions océaniques pristines ($AOD \leq 0.1$). Source : Fig. 1 de KOREN et al. 2014. | 39 |

| | | |
|-----|--|----|
| 3.2 | Stations de mesures AERONET (AERosol RObotic NETwork) dans le monde. Source : https://aeronet.gsfc.nasa.gov/ | 40 |
| 3.3 | Carte du monde. Encadré rouge : zone d'étude. | 43 |
| 3.4 | Carte de l'île de La Réunion. Les marqueurs rouges indiquent la localisation de Saint-Denis et de l'Observatoire du Maïdo. Source : Google Earth. | 44 |
| 4.1 | Vue d'ensemble de la localisation des différentes mesures de la campagne de terrain AEROMARINE (île de La Réunion, océan Indien). | 52 |
| 4.2 | Gammes de tailles considérées par les trois compteurs de particules (POPS, Magic et TSI) installés sur l'avion pour la campagne AEROMARINE. | 53 |
| 4.3 | Profil vertical de l'AOD et de l'exposant d'Angström (α) à partir des mesures PLASMA pour le vol du 27 Mars 2019. | 54 |
| 4.4 | Courbe du rapport d'AOD à deux longueurs d'onde en fonction du rapport de ces longueurs d'onde représentant le lien entre α et la taille caractéristique des diffuseurs. | 55 |
| 4.5 | Profil vertical de concentrations (A) et différences de concentrations (B) à partir des mesures POPS, Magic et TSI pour le vol du 27 mars 2019. | 57 |
| 4.6 | Exemple de rétrotrajectoires les plus probables issues d'une simulation FLEXPART (vol du 15 mars 2019). | 59 |
| 4.7 | Diagramme synthétique décrivant les échanges d'aérosols entre les couches atmosphériques L1 ($z \leq 0,5$ km), L2 (0,5 – 1,5 km) et L3 ($z \geq 1,5$ km) | 60 |
| 5.1 | Évolutions de L_c , L_r et N_d avec les valeurs théoriques du Tableau 5.1 pour les constantes (Fig.2; O. PUJOL et JENSEN 2019). | 83 |
| 5.2 | Classification des types de nuages en fonction de leur altitude et de la valeur de leur COT. Souce : NASA | 85 |
| 5.3 | Évolution de L_c (en g m^{-3}), RH (en %) et N_0 (en cm^{-3}) pour trois situations différentes : A) Observatoire du Maïdo, du 6 au 9 février 2019; B) Saint-Denis (île de la Réunion), lors de la campagne AEROMARINE, du 1er au 4 février 2019, et C) station ATOLL (Univ. Lille), du 10 au 14 octobre 2020. Les zones bleues dans les sous-figures correspondent aux mesures de nuit. | 87 |
| 5.4 | a) Évolutions de L_c , L_r et N_d et b) comparaison du L_c modélisé et du L_c dérivé des mesures radar pour une simulation de 72h avec les données de l'Observatoire du Maïdo, entre le 6 et le 9 février 2019. | 93 |

| | | |
|------|--|-----|
| 5.5 | a) Évolutions de L_c , L_r et N_d et b) comparaison du L_c modélisé et du L_c dérivé des mesures radiométriques avec les données de la campagne AEROMARINE, du 1 ^{er} au 4 février 2019. | 94 |
| 5.6 | a) Évolutions de L_c , L_r et N_d et b) comparaison du L_c modélisé et du L_c dérivé des mesures radiométriques avec les données de la station ATOLL, du 10 au 13 octobre 2020. | 96 |
| 5.7 | Pour une simulation de sept jours du 9 au 15 février 2019 : a) contenu en eau des nuages moyen obtenu par les réanalyses ERA5; b) obtenu par notre modèle; c) différences des moyennes $L_{c,ERA5} - L_{c,modele}$ et d) pourcentage des valeurs obtenues pour cette différence. | 99 |
| 5.8 | Différence absolue de L_c : a) MODIS/Aqua ($h = 2500$ m) - Modèle; b) MODIS/Aqua ($h = 2500$ m) - ERA5; c) MODIS/Aqua ($h = 500$ m) - Modèle et d) MODIS/Aqua ($h = 500$ m) - ERA5, au-dessus de l'océan Indien, du 9 au 15 février 2019. | 101 |
| 5.9 | Rapports des différences $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,Modele}$ et $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5}$ pour chaque quart de la grille pour la simulation dans l'océan Indien du 9 au 15 février 2019. | 102 |
| 5.10 | Contenus en eau des nuages issus des réanalyses ERA5 (1 ^{ère} ligne), issus du modèle (2 ^{ème} ligne) et observations du satellite géostationnaire MSG/SEVIRI +41.5° le 9 février 2019 à 7:00 et 11:00 UTC (premières colonnes) et le 10 février 2019 à 12:00 et 13:00 UTC (dernières colonnes). | 103 |
| 5.11 | Pour une simulation de sept jours du 1 ^{er} au 7 octobre 2020 : a) contenu en eau nuageuse moyen obtenu par les réanalyses ERA5; b) obtenu par notre modèle; c) différences des moyennes $L_{c,ERA5} - L_{c,modele}$ et d) densité de probabilités des valeurs obtenues pour cette différence. | 105 |
| 5.12 | Différence absolue de L_c : a) MODIS/Aqua ($h = 2500$ m) - Modèle; b) MODIS/Aqua ($h = 2500$ m) - ERA5; c) MODIS/Aqua ($h = 500$ m) - Modèle et d) MODIS/Aqua ($h = 500$ m) - ERA5, au-dessus de la région Hauts-de-France, du 1 ^{er} au 7 octobre 2020. | 106 |
| 5.13 | Rapports des différences $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,Modele}$ et $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5}$ pour chaque quart de la grille pour la simulation au-dessus de la région Hauts-de-France, du 1 au 7 octobre 2020. | 107 |
| 5.14 | Evolution de L_c , L_r , N_d et L_v pour une simulation de 72 h, avec les concentrations en aérosols et le contenu en vapeur d'eau de la station ATOLL (Lille). | 114 |
| 5.15 | Evolution des populations L_c , L_r , N_d et L_v pour une simulation de 72 h, avec les concentrations en aérosols et le contenu en vapeur d'eau issus de la station ATOLL (Lille) et $\beta = 0,6$ | 115 |

| | | |
|-----|---|-----|
| 6.1 | Schématisation du fonctionnement du modèle IOCIM et des interactions entre une parcelle d'air (notée i) et son environnement ($\Phi(i \leftrightarrow i - 1)$, $\Phi(i \leftrightarrow i + 1)$ et $\Phi(s \leftrightarrow i)$). | 139 |
| 6.2 | Schématisation des étapes de fonctionnement du modèle IOCIM. | 140 |
| 6.3 | Densités de probabilité des mesures de température et d'humidité absolue issues de la campagne AEROMARINE pour le niveau de pression 800hPa et le mois de février 2019. | 141 |
| 6.4 | Densités de probabilité des mesures d'AOD à 870nm issues de la campagne AEROMARINE pour le niveau de pression 800hPa et le mois de février 2019. | 142 |
| 6.5 | Quatre grilles initiales possibles : 100% claire, 100% nuageuse, aléatoire et nuages organisés en stries. Blanc (= +1) : pixel nuageux; Noir (= -1) : pixel clair. | 148 |
| 6.6 | Résultats obtenus à partir des quatre grilles initiales possibles (première colonne), après environ 50 000 tirages au sort (2^{nde} colonne) et après quelque 100000 tirages au sort (dernière colonne), pour le niveau de pression 800hPa avec les données du mois de février 2019 (campagne AEROMARINE). | 149 |
| 6.7 | Comparaison des champs de nuages générés par IOCIM à partir d'une grille initiale aléatoire (en haut) avec des observations par satellite (en bas) de type « Flowers »(observation du 23 octobre 2022) et type cellules fermées (du 12 octobre 2022) au-dessus de l'océan Indien. | 150 |
| A.1 | Le 9 février 2019 : contenus en eau des nuages (L_c) issus de notre modèle (panel du haut) et des réanalyses ERA5 (panel du bas). | 191 |
| A.2 | Identique à la Fig.A.1, pour le 10 février 2019. | 192 |
| A.3 | Identique à la Fig.A.1, pour le 11 février 2019 | 193 |
| A.4 | Identique à la Fig.A.1, pour le 12 février 2019 | 194 |
| A.5 | Identique à la Fig.A.1, pour le 13 février 2019 | 195 |
| A.6 | Identique à la Fig.A.1, pour le 14 février 2019 | 196 |
| A.7 | Identique à la Fig.A.1, pour le 15 février 2019 | 197 |
| B.1 | Le 10 février 2019 : Contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua, le modèle de type proie-prédateur et des réanalyses ERA5. | 201 |
| B.2 | Le 10 février 2019 : Différences absolues MODIS/Aqua - Modèle & MODIS/Aqua - ERA5, pour h_{min} et h_{max} | 202 |
| B.3 | Identique à la Fig.B.1, pour le 11 février 2019 | 203 |
| B.4 | Identique à la Fig.B.2, pour le 11 février 2019 | 204 |
| B.5 | Identique à la Fig.B.1, pour le 12 février 2019 | 205 |

| | | |
|------|---|-----|
| B.6 | Identique à la Fig.B.2, pour le 12 février 2019 | 206 |
| B.7 | Identique à la Fig.B.1, pour le 13 février 2019 | 207 |
| B.8 | Identique à la Fig.B.2, pour le 13 février 2019 | 208 |
| B.9 | Identique à la Fig.B.1, pour le 14 février 2019 | 209 |
| B.10 | Identique à la Fig.B.2, pour le 14 février 2019 | 210 |
| B.11 | Identique à la Fig.B.1, pour le 15 février 2019 | 211 |
| B.12 | Identique à la Fig.B.2, pour le 15 février 2019 | 212 |
| C.1 | Le 1 ^{er} octobre 2020 : contenus en eau des nuages (L_c) issus de notre modèle (panel du haut) et des réanalyses ERA5 (panel du bas).214 | |
| C.2 | Identique à la Fig. C.1, pour le 2 octobre 2020 | 215 |
| C.3 | Identique à la Fig. C.1, pour le 3 octobre 2020 | 216 |
| C.4 | Identique à la Fig. C.1, pour le 4 octobre 2020 | 217 |
| C.5 | Identique à la Fig. C.1, pour le 5 octobre 2020 | 218 |
| C.6 | Identique à la Fig. C.1, pour le 6 octobre 2020 | 219 |
| C.7 | Identique à la Fig. C.1, pour le 7 octobre 2020 | 220 |
| D.1 | Le 1 ^{er} octobre 2020 (10:00 UTC) : Contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua, le modèle de type proie-prédateur et des réanalyses ERA5. | 222 |
| D.2 | Le 1 ^{er} octobre 2020 (10:00 UTC) : Différences absolues MODIS/Aqua - Modèle & MODIS/Aqua - ERA5, pour h_{min} et h_{min} | 223 |
| D.3 | Identique à la Fig.D.1, pour le 1 ^{er} octobre 2020 (12:00 UTC) . . . | 224 |
| D.4 | Identique à la Fig.D.2, pour le 1 ^{er} octobre 2020 (12:00 UTC) . . . | 225 |
| D.5 | Identique à la Fig.D.1, pour le 02 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 226 |
| D.6 | Identique à la Fig.D.2, pour le 02 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 227 |
| D.7 | Identique à la Fig.D.1, pour le 03 octobre 2020 (10:00 UTC) . . . | 228 |
| D.8 | Identique à la Fig.D.2, pour le 03 octobre 2020 (10:00 UTC) . . . | 229 |
| D.9 | Identique à la Fig.D.1, pour le 03 octobre 2020 (12:00 UTC) . . . | 230 |
| D.10 | Identique à la Fig.D.2, pour le 03 octobre 2020 (12:00 UTC) . . . | 231 |
| D.11 | Identique à la Fig.D.1, pour le 04 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 232 |
| D.12 | Identique à la Fig.D.2, pour le 04 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 233 |
| D.13 | Identique à la Fig.D.1, pour le 05 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 234 |
| D.14 | Identique à la Fig.D.2, pour le 05 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 235 |
| D.15 | Identique à la Fig.D.1, pour le 06 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 236 |
| D.16 | Identique à la Fig.D.2, pour le 06 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 237 |
| D.17 | Identique à la Fig.D.1, pour le 07 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 238 |
| D.18 | Identique à la Fig.D.2, pour le 07 octobre 2020 (11:00 UTC) . . . | 239 |

Introduction Générale

De manière générale, ce travail de thèse traite des interactions entre les nuages, les aérosols et la vapeur d'eau, et particulièrement les impacts de ces deux derniers sur le cycle de vie des nuages (formation/dissipation, temps de vie, organisation spatiale, ...). Ce sujet de recherche a pour but d'améliorer nos connaissances sur ces interactions par le biais d'une modélisation simplifiée et nouvelle de l'évolution temporelle et de l'organisation spatiale des champs de nuages. Ce manuscrit présente une approche originale et peu développée qui pourrait apporter un regard nouveau sur cette grande problématique.

Les nuages sont des systèmes qui interagissent avec leur environnement ; ils se forment à partir d'aérosols sur lesquels la vapeur d'eau se condense. On comprend dès lors que la variation de paramètres physiques tels que l'humidité, la température ou la quantité d'aérosols puisse avoir un impact sur l'existence et l'évolution d'un nuage. Cependant, il reste encore des incertitudes quant aux effets précis de ces paramètres sur les nuages, leur cycle de vie et leurs propriétés à titre individuel, leur organisation spatiale et *a fortiori* leur impact sur le climat.

Si l'on s'intéresse à un champ de nuages à une échelle suffisamment grande (quelques centaines de kilomètres), observé par satellite par exemple, on remarque rapidement, sous certaines conditions, une apparente organisation ou structuration (exemple donné sur la Figure 1). La question qui se pose est celle de savoir si cette organisation est gouvernée par des lois fondamentales, et donc si elle peut être comprise dans un cadre théorique bien précis. En d'autres termes, cette organisation est-elle aléatoire ou auto-organisée avec un certain degré d'ordre ? Est-il possible de prédire ou de reproduire ces champs nuageux

structurés à partir des paramètres thermodynamiques (par exemple température, humidité, type d'aérosols)? Et, inversement, est-il possible de déterminer ces paramètres à partir d'une structure nuageuse? Répondre à ces questions est précieux en sciences du climat et elles guident le travail de recherche présenté dans ce manuscrit. Pour essayer d'y répondre, nous plaçons notre étude dans une région océanique pristine¹ (du latin « *pristinus* » qui signifie « d'autrefois, d'avant, primitif », GAFFIOT 1934); ces dernières peuvent être considérées comme proches des conditions pré-industrielles. Ce choix permet d'analyser la composante naturelle des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages et de s'affranchir, dans un premier temps, des effets des aérosols d'origines anthropiques.

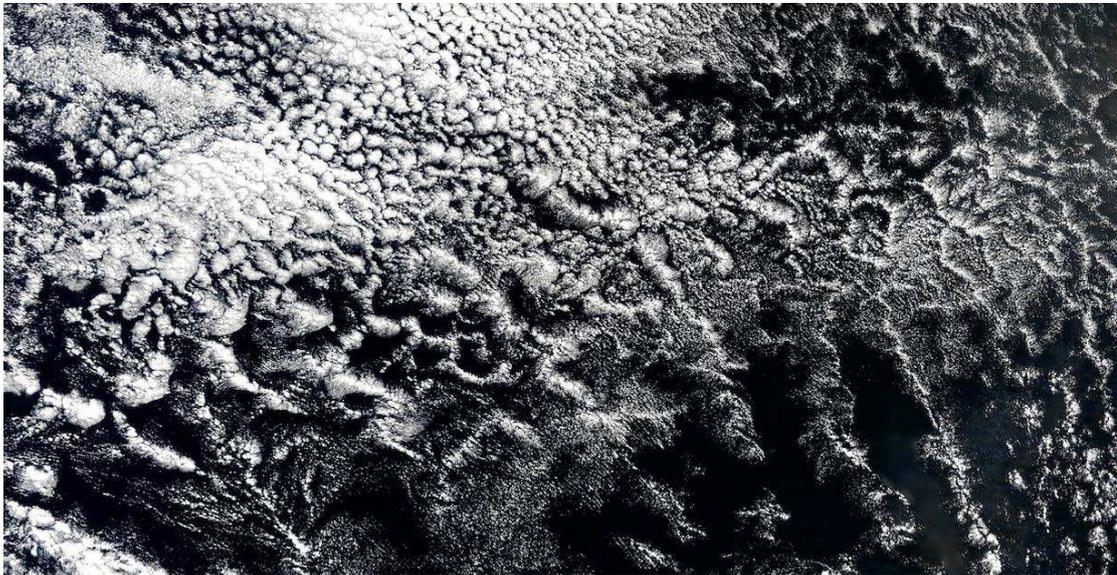


FIGURE 1 – Champs de nuages dans l'océan Indien (Source : Google Image).

Le fil conducteur de cette thèse est ponctué par trois objectifs en lien direct et dans cet ordre : (1) recueillir des données *in-situ* pour la caractérisation des propriétés physiques des aérosols naturels et de leur distribution verticale dans un contexte océanique pristine ; (2) présenter un modèle de type proie-prédateur qui permet de comprendre le fonctionnement d'un nuage individuel ; nous verrons que celui-ci peut se comporter comme un oscillateur non linéaire ; (3) développer

1. On doit comprendre ce terme dans le sens de « sauvage, naturel, vierge » ou pour signifier le caractère « ultrapropre » (en termes d'aérosols) de la région. Une définition plus précise est donnée dans le Chapitre 3.

une modélisation originale pour l'étude des structures nuageuses à méso-échelle selon l'intensité des couplages interpixels et des interactions avec l'environnement (ici, un contexte océanique pristin). Il y a donc un aspect expérimental et un aspect théorique dans ce travail, celui-là alimentant celui-ci et vice versa.

Plutôt que de travailler avec des modèles atmosphériques comprenant de la microphysique complexe, nous avons suivi des suggestions qui commencent à apparaître dans la littérature, et qui consistent à ne plus négliger des modèles de nuages (avec leurs interactions) relativement simples et peu coûteux en temps de calculs. En effet, l'une des plus explicites de ces suggestions est celle de HELD 2005 et de WETTLAUFER 2016 (voir Chapitre 2); le premier plaidant pour compléter les modèles complexes par des approches idéalisées, qui capturent l'essence d'un phénomène, préalables à toute analyse détaillée à l'aide des supermodèles ou de supercalculateurs. Le second se fait l'avocat d'un rapprochement bien plus fort entre les sciences du climat, la physique théorique et les mathématiques.

Les trois premiers chapitres de ce manuscrit (Partie I) permettent de faire un bilan des connaissances sur les aérosols, les nuages, leur modélisation et de présenter le contexte, la motivation et la méthodologie de cette thèse. Sans prétendre à l'exhaustivité, nous tentons de synthétiser les éléments importants pour comprendre ce travail doctoral. Ce manuscrit s'articule ensuite autour de trois articles publiés dans des revues de rang A : ils, constituent le Chapitre 4 (campagne de mesures AEROMARINE), le Chapitre 5 (modèle de type proie-prédateur) et le Chapitre 6 (version préliminaire d'un nouveau modèle d'Ising 2D - Indian Ocean Cloud Ising Model - pour la modélisation des champs nuageux); chacun de ces trois chapitres est immédiatement précédé d'une synthèse en français qui présente le contexte et l'objectif de l'étude et reprend les principaux résultats et conclusions.

Première partie

État de l'art & Contexte

Les aérosols & les nuages

Sommaire du présent chapitre

| | |
|--|-----------|
| 1.1 Les aérosols et leurs caractéristiques | 7 |
| 1.1.1 Classification par taille et processus de croissance . . . | 7 |
| 1.1.2 Les sources d'aérosols | 10 |
| 1.1.3 Les aérosols marins | 13 |
| 1.2 Les nuages : type, organisation et formation | 16 |
| 1.2.1 Classification et types de nuages ; formation | 16 |
| 1.2.2 Organisation des champs de nuages à méso-échelle . | 20 |

1.1 Les aérosols et leurs caractéristiques

1.1.1 Classification par taille et processus de croissance

Les aérosols sont des particules fines, solides ou liquides, en suspension dans l'atmosphère en raison d'une vitesse de chute très petite dans le référentiel terrestre. Il s'agit donc d'une phase dispersée qui constitue, avec le milieu (l'air) dans lequel elles évoluent, un colloïde stable (voir le Glossary of Meteorology de l'American Meteorological Society). Les aérosols voyagent, se transforment, interagissent d'une part entre eux et, d'autre part, avec les hydrométéores ; ils

agissent sur notre santé, la qualité de l'air et le climat. Leur dimension peut varier de quelques nanomètres à plusieurs micromètres ; ils sont classés en différents modes définis par des tailles caractéristiques. Les gammes de tailles présentées ici représentent le diamètre des aérosols, supposés sphériques ; il s'agit d'une dimension caractéristique. Ici, nous utilisons la classification présentée sur la Figure 1.1, car elle associe différents processus de croissance des aérosols à leurs tailles.

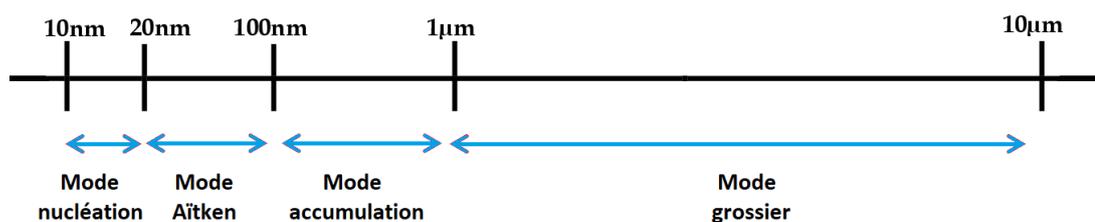


FIGURE 1.1 – Classification usuelle pour l'étude de la taille des aérosols.

La plus petite gamme de tailles (inférieure à 20 nm) est le mode de *nucléation*. Il correspond à des particules formées par un processus (la nucléation) au cours duquel un embryon est produit par collision puis réarrangement de molécules. Parfois, selon les conditions thermodynamiques, certains embryons atteignent une taille suffisante pour grossir ensuite spontanément. Il n'est pas inutile de préciser que le mot « nucléation » provient du latin « nucleus » qui signifie « noyau » ou « pépin » au sens botanique, c'est-à-dire en tant qu'élément dur, interne, autour duquel s'organise et se développe un fruit (GAFFIOT 1934). La nucléation peut se produire en l'absence ou en présence d'une phase liquide ou solide, et donc de germes préexistants. Si les embryons se forment au sein de la phase gazeuse seule, on parle de nucléation homogène. En revanche, lorsqu'elle a lieu sur des supports préexistants, la nucléation est qualifiée d'hétérogène. Les aérosols dans le mode de nucléation sont les plus nombreux dans l'atmosphère, même si leur contribution massique est faible (pourcentage de la masse totale : environ 5% au-dessus des océans ; FITZGERALD 1991).

Le mode d'*Aïtken* (du nom du scientifique écossais, John Aïtken, qui a développé le premier appareil pour mesurer la granulométrie des poussières et gouttelettes contenues dans des brouillards) comprend les particules dont la taille est supérieure à 20 nm et inférieure à 100 nm. La condensation et la coagu-

lation sont les deux principaux mécanismes physiques en jeu dans ce mode. La condensation de vapeur d'eau sur des particules existantes est le processus de croissance par lequel les molécules de gaz viennent se fixer sur un aérosol déjà formé ou sur un embryon provenant du mode de nucléation, augmentant ainsi sa masse et sa taille. La coagulation se produit lors de la collision de deux aérosols. Ainsi, sous l'effet de la pesanteur, des flux turbulents ou simplement du mouvement brownien, les particules qui entrent en collision possèdent une efficacité de coagulation, c'est-à-dire une probabilité plus ou moins grande de fusionner pour former une seule particule plus volumineuse (SEINFELD et PANDIS 1998). Comme pour le mode de nucléation, les aérosols du mode d'Aitken contribuent beaucoup au nombre total d'aérosols mais présentent une faible contribution massique (Fig 1.2).

Le mode d'*accumulation* caractérise les aérosols dont la taille est comprise environ entre 100 nm et 1 μm . Les processus de croissance des particules de ce mode sont la condensation et la coagulation. De par leur taille relativement importante, ces aérosols sont les plus enclins à faire office de noyaux de condensation (CCN – Cloud Condensation Nuclei) et donc à former des gouttelettes de nuage. Ces dernières peuvent grossir jusqu'à devenir précipitantes (gouttes de pluie), entraînant ainsi le CCN piégé à l'intérieur de la goutte à se déposer au sol. Ce phénomène est connu sous le nom de dépôt humide ou lessivage. Les aérosols situés en dessous d'une couche de nuages précipitants peuvent également être entraînés par la chute des gouttes. Ces processus diminuent la concentration, le nombre et la masse des particules du mode d'accumulation. Cependant, contrairement aux modes de nucléation et d'Aitken, les particules du mode d'accumulation contribuent de façon significative à la masse totale de particules atmosphériques, en particulier près de la surface (Fig 1.2).

Les particules du mode *grossier* sont les plus rares (Fig 1.2), car leur durée de vie dans l'atmosphère est courte. En effet, il s'agit de particules plus grosses, dont la taille dépasse 1 μm , et donc plus lourdes. Sous l'action de leur poids, qui dépend de leur phase et de leur composition chimique, elles tendent à se déposer au sol en l'absence de mouvements convectifs ou turbulents suffisamment importants. C'est ce que l'on appelle le dépôt sec.

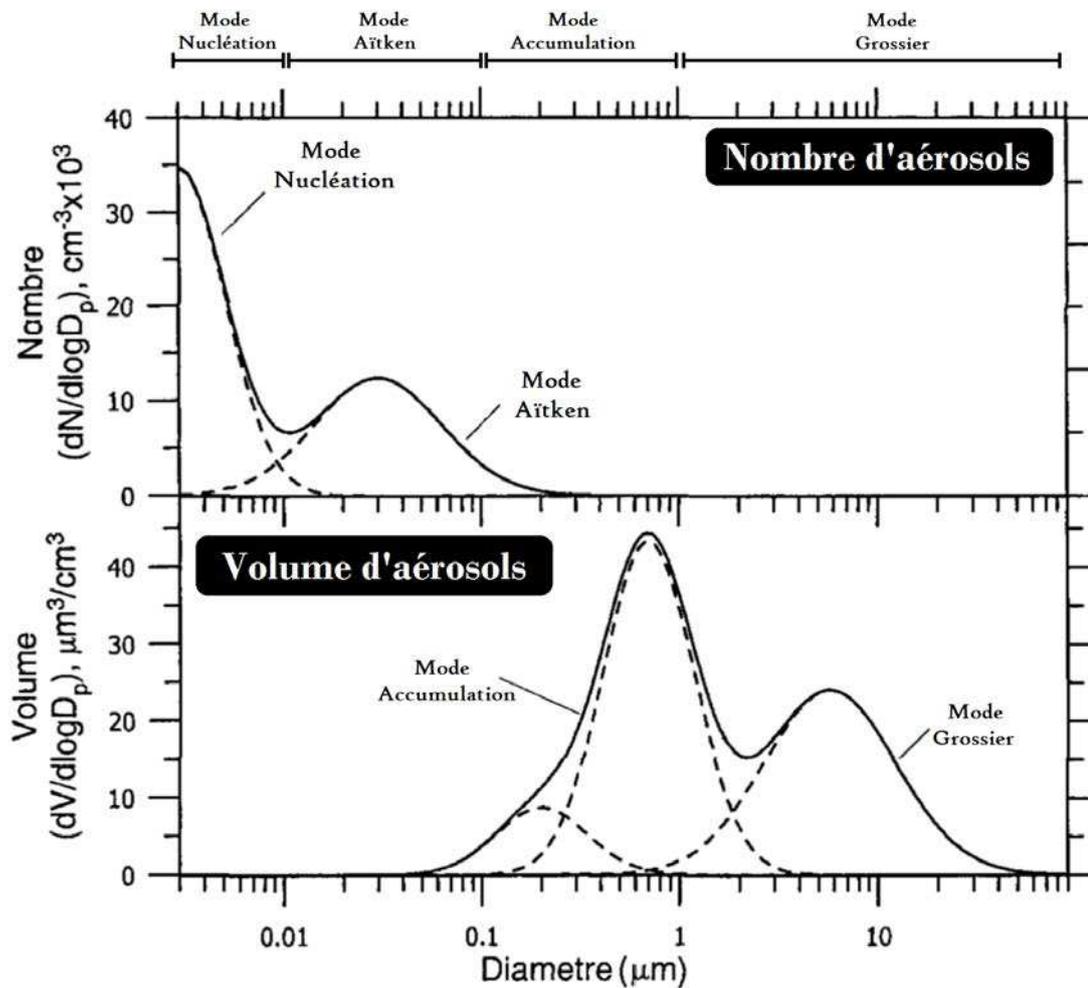


FIGURE 1.2 – Distributions en nombre et volumique typiques des particules atmosphériques selon les différents modes (adaptée de la Fig.8.10 de SEINFELD et PANDIS 1998).

1.1.2 Les sources d'aérosols

Des sources diverses et variées, naturelles ou anthropiques, émettent des aérosols. Elles peuvent être primaires ou secondaires. La première catégorie concerne les aérosols directement émis dans l'atmosphère, comme ceux arrachés par le vent au niveau d'une surface (sels marins, poussières désertiques, ...). Les aérosols issus de sources secondaires sont, quant à eux, des aérosols ayant subi des transformations dans l'atmosphère *via* des réactions chimiques

ou les processus de croissance décrits au-dessus. Au-delà de cette distinction primaire/secondaire, on peut aussi définir des grands types d'aérosols (urbain, continental, désertique, marin, etc.), selon leur origine et leur composition chimique. Cependant, cette classification reste difficile à appliquer, en pratique, étant donné que les aérosols peuvent être transportés par le vent sur des milliers de kilomètres et se mélanger. La nature (organique ou inorganique) des aérosols, ou bien leur origine (naturelle ou anthropique) peuvent également servir de critère de classification. Ici, nous présentons les principales sources primaires d'aérosols d'origine naturelle (Fig. 1.3). Indiquons que les particules primaires, émises de manière naturelle ou anthropique, couvrent toutes les gammes de tailles.



FIGURE 1.3 – Principales sources naturelles d'aérosols.

À l'échelle mondiale, les aérosols naturels représentent entre 80 et 90% des flux massiques de particules émises (SEINFELD et PANDIS 1998). Parmi ces aérosols d'origine naturelle, on peut citer les poussières désertiques, les aérosols biogéniques (issus de la végétation), ceux issus de la combustion naturelle (feux de forêts), les aérosols volcaniques ou encore les sels marins (Fig. 1.3). Les sources d'aérosols naturels dominent tous les océans et les régions sources de poussière situées en Afrique du Nord, en Asie Occidentale et dans le Nord-Est de la Chine. En outre, ces sources naturelles sont majoritairement d'origine océanique dans l'hémisphère Sud avec les sels marins et les DMS (DiMethylSulfide), et majoritairement d'origine continentale dans l'hémisphère Nord avec des poussières minérales. Ainsi, ces aérosols naturels sont dominants dans les deux hémisphères, avec des contributions à l'AOD (Aerosol Optical Depth) total de 52% dans l'hémisphère Nord et de 71% dans l'hémisphère Sud (M. REDDY et al. 2005). Puisque les océans couvrent la majorité de la planète (environ 70%

de sa surface), les aérosols marins contribuent le plus à la charge globale en aérosols comparé aux aérosols anthropiques ou issus d'autres sources naturelles (BOUCHER et al. 2013). Le tableau 1.1 fournit une estimation des flux d'émissions annuelles des principales sources d'aérosols (naturelles et anthropiques).

| Origine | Sources | Flux global (Mt/an) |
|------------------------------------|--|------------------------|
| Naturelle (\approx 80–90%) | Sels marins | 1400 – 6800 |
| | Poussière désertiques | 1000 – 4000 |
| | Cendres volcaniques | 4 – 8000 |
| | Aérosols biogéniques primaires | 50 – 1000 |
| | Aérosols de combustion naturelle | 45 – 80 |
| | Aérosols organiques volatils secondaires | 20 – 380 |
| | Composés organiques biogéniques | 440 – 720 |
| | Sulfure de diméthyl (DMS) | 10 – 40 |
| Anthropique (\approx 10–20%) | Carbone suie | 3.6 – 6 |
| | Aérosols organiques primaires | 6.3 – 15.3 |
| | Poussières industrielles | 40 – 130 |
| | Composés organiques volatils | 98.2 – 157.9 |
| | Dioxyde de soufre (SO_2) | 43.3 – 77.9 |
| | Ammoniac (NH_3) | 34.5 – 49.6 |

TABLEAU 1.1 – Estimation des émissions annuelles (en Mt/an) des principales sources d'aérosols primaires (en gras) et d'aérosols secondaires. Tableau adapté du chapitre 7 du 5ème rapport du GIEC (BOUCHER et al. 2013).

Les aérosols issus des océans représentent ainsi la majeure partie des flux d'émissions d'aérosols naturels, allant d'environ 1 000 à 7 000 Mt/an avec une moyenne d'environ 3 000 Mt/an (WINTER et CHÝLEK 1997); ils possèdent des propriétés physiques et chimiques qui ont des effets importants sur le système climatique. Il est reconnu aujourd'hui que les embruns marins représentent la source principale de diffusion de la lumière dans la couche limite marine, et peut-être même la source d'aérosols naturels la plus à même d'affecter le bilan radiatif terrestre (QUINN et al. 2015). Ces aérosols d'origine marine sont au cœur de ce sujet de thèse.

1.1.3 Les aérosols marins

C'est la friction du vent sur les surfaces océaniques qui est responsable de la formation primaire d'aérosols marins. Il existe trois principaux mécanismes (BLANCHARD 1983; MONAHAN et al. 1986; ZAKAY et al. 2008) : les gouttelettes de film (film droplets), les gouttelettes de jet (jet droplets) et les gouttelettes d'embrun (spume droplets). Pour expliquer ces trois mécanismes de formation, considérons des bulles d'air piégées dans l'océan suite au mouvement agité de l'eau causé par le vent. Les deux premiers mécanismes de formation de gouttelettes (schématisés Fig. 1.4) se produisent lorsque ces bulles remontent à la surface et éclatent. Ceci éjecte immédiatement une grande quantité de gouttelettes de la pellicule de surface d'une taille généralement comprise entre 0.5 et 5 μm . Une fois la bulle d'air éclatée, un jet d'eau se forme et se sépare en plusieurs gouttelettes de jet (de diamètre entre 3 et 50 μm). Si le vent est suffisamment fort (supérieur à 30 km/h environ), il peut arracher directement des particules de la crête des vagues, et former ainsi de grosses gouttelettes d'embrun (de taille supérieure à 20 μm).

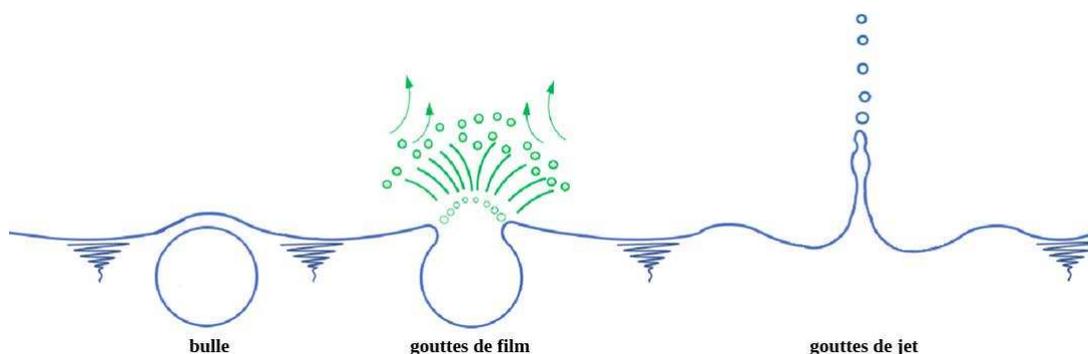


FIGURE 1.4 – Schématisation des deux premiers mécanismes de formation d'aérosols marins (film droplets et jet droplets).

Les sels marins dans l'atmosphère sont donc le résultat de l'action du vent sur la surface de la mer. La vitesse du vent est ainsi l'élément principal favorisant la formation d'aérosols marins. Néanmoins, la température de surface de l'océan (SST – Sea Surface Temperature), qui modifierait notamment la distribution granulométrique (JAEGLÉ et al. 2011), ou encore la salinité, la tension superficielle et l'état de la mer, agissent aussi sur les émissions de sels marins (LEWIS et

SCHWARTZ 2004; SELLEGRI et al. 2006; JAEGLÉ et al. 2011; SOFIEV et al. 2011; GRYPHE et al. 2014).

Les aérosols marins sont présents sur une grande partie de la planète. Ils sont constitués à plus de 85% de chlorure de sodium (NaCl) mais certains ions présents dans l'eau de mer, comme le sulfate (SO_4^{2-}), le potassium (K^+), le calcium (Ca^{2+}) ou encore le magnésium (Mg^{2+}), peuvent aussi être observés (PIAZZOLA et al. 2012). Ces aérosols contiennent parfois de la matière organique dont la concentration dépend de l'activité biologique de l'océan (CAVALLI et al. 2004). Les sels marins sont aussi fortement réactifs avec d'autres espèces présentes dans l'atmosphère et leur composition chimique peut changer durant leur transport (STURGES et SHAW 1993; JOHANSEN et al. 1999; KUMAR et al. 2008). Ainsi, de nombreux facteurs (dont les principaux sont schématisés Fig. 1.5) peuvent affecter la production, la nature et le transport de ces aérosols d'origine marine. Ils sont présents dans toutes les gammes de tailles présentées plus haut, bien qu'ils appartiennent majoritairement aux modes d'accumulation et grossier. Ils possèdent également le potentiel d'activation des noyaux de condensation nuageuse (CCN) le plus élevé. Il n'en demeure pas moins que leur contribution au nombre global de CCN est particulièrement négligée dans le mode d'Aitken, comme l'a montré récemment XU et al. 2022.

En outre, ces aérosols d'origine océanique se rencontrent principalement dans des régions à forte couverture nuageuse (M. REDDY et al. 2005). Il est connu qu'ils influencent le climat, et ce, de différentes façons. Par exemple, ils diffusent et absorbent la lumière du Soleil (forçage radiatif direct ou effet parasol) et présentent un effet radiatif estimé entre -0.15 et $-2,2 W m^{-2}$ (effet radiatif en ciel clair). Cet effet direct des aérosols sur le bilan radiatif est directement lié à la concentration d'aérosols présents dans l'atmosphère, leur taille, leur composition chimique ainsi qu'à leurs propriétés optiques. Cet effet est présenté sur le premier schéma de la Figure 1.6.

Les aérosols marins sont hygroscopiques; en d'autres termes, leurs propriétés optiques varient selon l'humidité atmosphérique. Ils influencent donc la formation et la durée de vie des nuages en modifiant leurs propriétés physiques, plus précisément le nombre, la taille ou le temps de résidence des hydrométéores. Ils modifient ainsi l'albédo des nuages; c'est le premier effet indirect (ou l'effet Two-

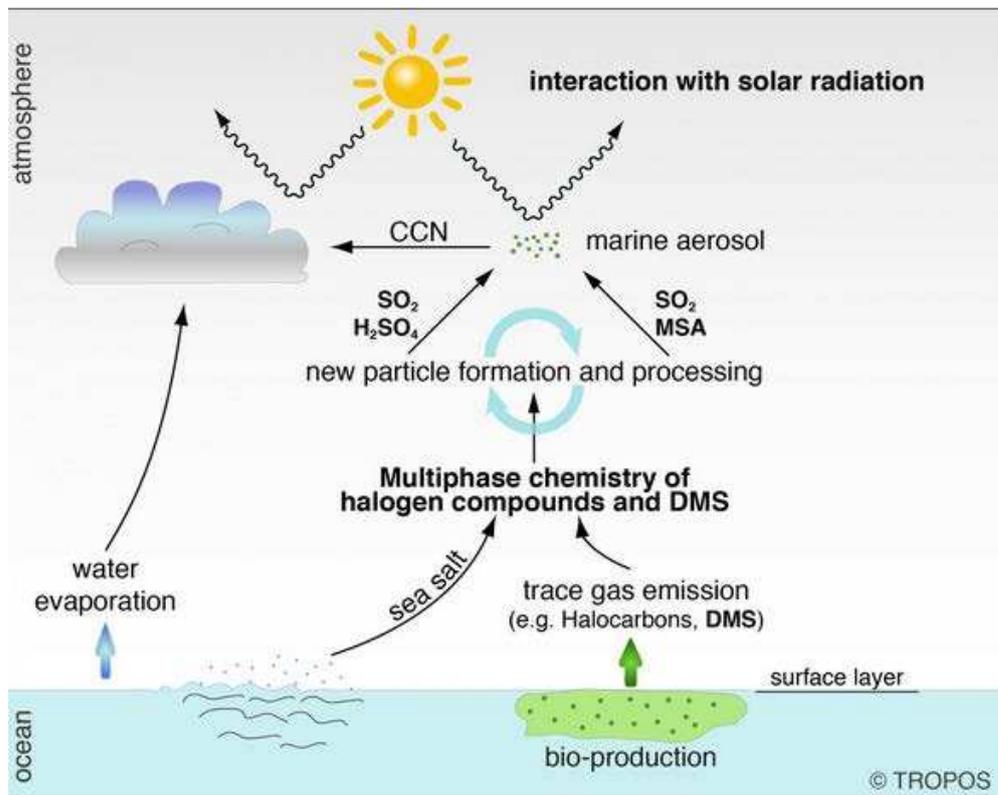


FIGURE 1.5 – Schématisation des principales sources d’aérosols marins et interactions avec leur environnement. Crédit : Erik Hans Hoffmann, TROPOS

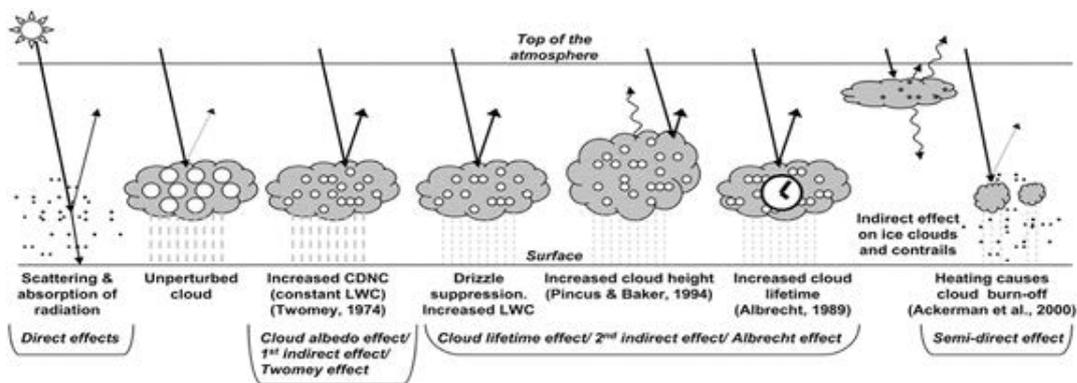


FIGURE 1.6 – Divers mécanismes proposés pour expliquer comment les aérosols affectent les nuages et les précipitations. Adapté du Groupe d’experts intergouvernemental sur l’évolution du climat (GIEC) [2007] et TAO et al. 2012.

me). Le second effet indirect (ou effet d'Albrecht) se manifeste dans l'efficacité de précipitation des nuages (Fig. 1.6). Il se traduit par une diminution de la fréquence des événements pluvieux (D. ROSENFELD et al. 2002), de la teneur en eau et de l'épaisseur des nuages (PINCUS et BAKER 1994), et par une augmentation de la durée de vie des nuages (ALBRECHT 1989). Dit autrement, les aérosols marins influencent fortement la microphysique des nuages dans l'atmosphère marine, en servant de CCN sur lesquels les gouttelettes se forment (LEWIS et SCHWARTZ 2004). La taille et le nombre d'aérosols marins impactent la concentration et la taille des gouttelettes, affectant ainsi sa réflectivité (TWOMEY 1974; TWOMEY 1991), ainsi que la formation de bruine et de pluie (ALBRECHT 1989). C'est ce qu'à montré PAN et al. 2022 en étudiant le cycle de vie des nuages convectifs tropicaux et l'impact de la taille des aérosols sur ces nuages et les précipitations au-dessus de l'océan et de la terre. Il montre notamment que les embruns marins (rayon $\geq 1 \mu\text{m}$) tendent à donner des gouttes de nuages moins nombreuses mais plus grosses, ce qui accélèrent les pluies chaudes au détriment des précipitations en phase mixte. Il convient donc de caractériser ces aérosols d'origine marine afin d'étudier la formation et l'organisation des champs de nuages.

1.2 Les nuages : type, organisation et formation

1.2.1 Classification et types de nuages ; formation

Selon l'American Meteorological Society (Glossary of meteorology) : un nuage est « *un agrégat visible de minuscules gouttelettes d'eau et/ou de particules de glace dans l'atmosphère au-dessus de la surface de la terre* ». Les nuages sont en perpétuelle évolution et se présentent, de ce fait, sous une infinie variété de formes. Il est cependant possible de définir un nombre limité de formes caractéristiques, que l'on peut observer fréquemment en toute partie du globe et qui permettent de classer les nuages par groupe. Le système international utilisé actuellement pour la classification des nuages a été élaboré en 1803 par le météorologue amateur Luke Howard dans son essai sur la modification des nuages (HOWARD 1894).

Les nuages sont alors catégorisés selon leur forme, leur développement ver-

tical et l'altitude à laquelle ils se forment. L'Atlas international des nuages reconnaît aujourd'hui dix grands genres de nuages (Fig. 1.7). On distingue les nuages en couche, ou stratiformes, des nuages cumuliformes. Les nuages sont généralement situés à des altitudes comprises entre le niveau de la mer et la tropopause, selon trois étages dont les limites dépendent de la latitude et de la saison : l'étage supérieur, l'étage moyen et l'étage inférieur (Fig. 1.7).

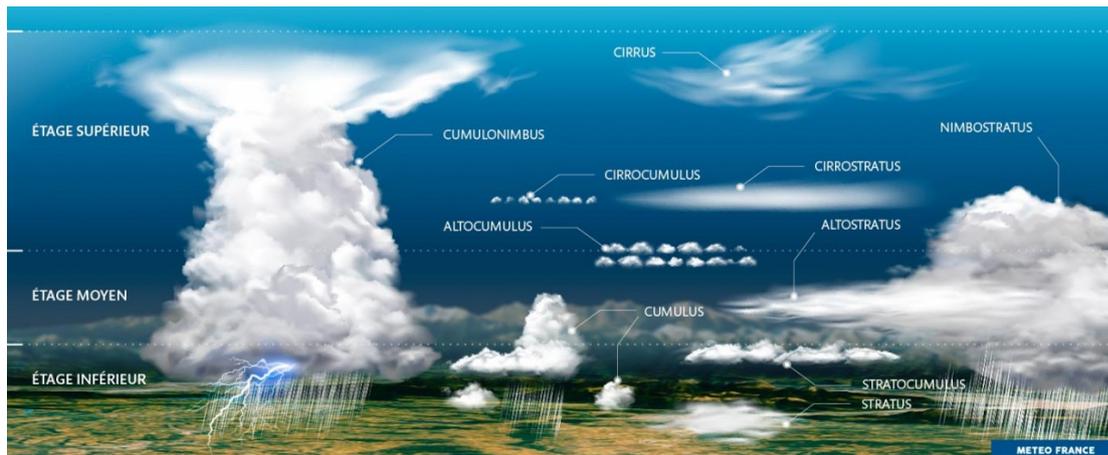


FIGURE 1.7 – Principaux genres de nuages. Source : Météo France.

On se concentre ici sur les étages en région tropicale dont les limites approximatives associées sont (i) de 6 à 18 km pour l'étage supérieur, (ii) de 2 à 8 km pour l'étage moyen, et (iii) de la surface à 2 km pour l'étage inférieur.

L'air sec, la vapeur d'eau, l'eau sous forme liquide et/ou solide et les aérosols sont les principaux éléments qui composent les nuages. Ceux-ci résultent de la condensation de la vapeur d'eau contenue dans l'atmosphère autour de particules solides appelées noyaux de condensation (CCN) ou noyaux glaçogènes (Ice Nuclei – IN), selon que, respectivement, la vapeur d'eau se liquéfie ou se cristallise. La concentration de ces CCN est très forte dans les basses couches de l'atmosphère et, en particulier, au-dessus des zones côtières et océaniques (sels marins) et des zones industrialisées (aérosols d'origine anthropique).

Les principales particules en jeu dans la physique des nuages ont une large gamme de tailles, de concentrations et de vitesses de chute. Comme l'indique la Figure 1.8, d'importantes différences sont constatées entre la taille d'un CCN typique et celle d'une goutte de nuages, mais également entre une goutte de

nuage et une goutte de pluie. Le processus de formation de pluie à partir de la condensation autour d'un CCN s'engage au bout d'une vingtaine de minutes après la formation du nuage (YAU et ROGERS 1996).

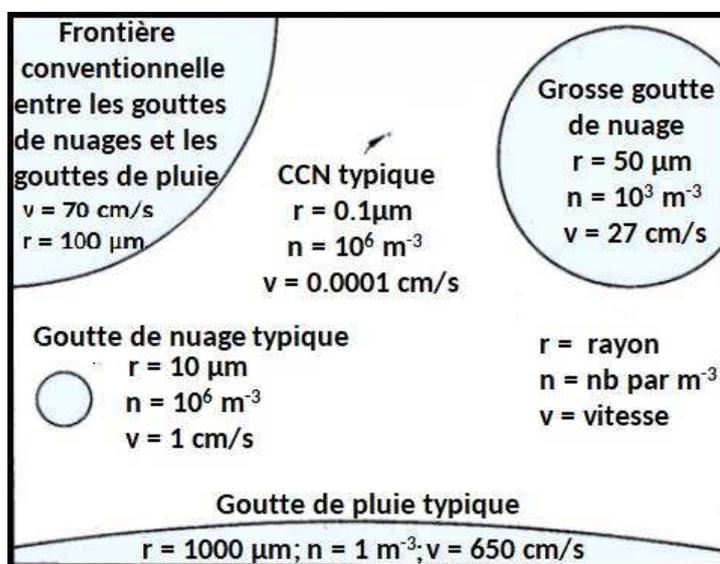


FIGURE 1.8 – Tailles, concentrations et vitesses de chute (dans le référentiel terrestre) des particules dans un nuage (YAU et ROGERS 1996).

Pour qu'il y ait condensation de la vapeur d'eau atmosphérique, il faut une abondance de CCN et une humidité relative au moins égale à 100%. Loin de tout support de condensation, c'est-à-dire en l'absence de CCN, l'humidité relative doit dépasser ce seuil de 100% pour que la vapeur d'eau se condense et que des gouttelettes d'eau sphériques apparaissent ; c'est la loi de Kelvin. On dit qu'il y a « sursaturation ». Ainsi, une parcelle d'air avec une humidité relative de 101.5% aura une sursaturation de 1.5%. Cette sursaturation doit être grande, parfois bien au-dessus de 10% en absence totale de noyaux de condensation (CCN). Cependant, il y a généralement suffisamment de ces noyaux pour limiter la sursaturation à quelque 1% ou 2%. Une sursaturation élevée, relative à l'équilibre vapeur/gouttelette, est donc rare dans la troposphère ; l'observation de nuages d'eau liquide trahit la présence abondante de CCN.

La formation d'un nuage s'effectue selon différents processus. Nous faisons ici un point rapide sur les principaux :

- La formation par *refroidissement isobare*, lors du contact d'une masse d'air

chaud avec un sol plus froid. L'air est alors refroidi par contact. Cela peut se produire la nuit, mais aussi sur les côtes avec le contraste terre/mer. Il en résulte des brouillard, des stratocumulus ou des stratus.

- Le refroidissement par *détente adiabatique* qui peut se produire :
 - par soulèvement d'une masse d'air, soit par un relief comme une montagne (soulèvement orographique), soit à l'aide d'un front (soulèvement frontal) quand une masse d'air chaud rencontrant une masse d'air froid est portée en altitude jusqu'au niveau de condensation. Ceci crée typiquement des cirrus et des nimbostratus.
 - par convection issue d'une instabilité thermique telle qu'une masse d'air chaud dans un environnement bien plus frais ; c'est fréquent en été, et les cumulus ou les cumulonimbus, qui conduisent parfois à des orages se forment ainsi. En effet, avec les fortes températures estivales, l'air se réchauffe au contact du sol, et la configuration air chaud proche du sol-air plus froid au-dessus est thermodynamiquement instable. La masse d'air chaud peut alors, par une perturbation, s'élever en altitude. Quand elle contient assez d'humidité, la vapeur d'eau se condense à l'altitude de la pression de vapeur saturante. Ainsi, il peut se former, suivant le profil vertical de la température : (i) des cirrocumulus, des altocumulus ou des stratocumulus pour une couche d'air instable peu développée verticalement ; (ii) des cumulus ou des cumulonimbus pour une instabilité convective bien développée verticalement. Les cumulus peuvent aussi se développer en cumulonimbus quand leur extension verticale devient importante.
- *L'apport de vapeur* d'eau dans un air proche de la saturation. Cette vapeur supplémentaire peut provenir des surfaces aquatiques (mer, océans), des sols saturés en eau ou de l'advection d'air humide. Un tel processus donne généralement du brouillard.

En conditions océaniques, toutes les sortes de nuages peuvent se former : du cirrus, qui est un nuage fin à haute altitude (MASSIE et al. 2010, REINARES MARTÍNEZ et al. 2021), au cumulonimbus.

Enfin, les nuages interagissent, non seulement avec les aérosols et la vapeur d'eau, mais également entre eux. En effet, ils affectent les mouvements atmo-

sphériques à travers des processus dynamiques tels que la libération de chaleur latente ou la redistribution de la vapeur d'eau. C'est pourquoi l'étude de la dynamique atmosphérique doit inclure les nuages, mais leur comportement est également guidés par des considérations dynamiques. Dit autrement, selon nous, l'ensemble aérosols-vapeur-nuages est un seul et même système, malgré l'apparente séparation ou relative indépendance de ses différentes composantes.

1.2.2 Organisation des champs de nuages à méso-échelle

L'Homme a toujours observé les nuages, leurs formes et la façon dont ils évoluent dans l'espace et dans le temps. À l'heure actuelle, ces observations se font aussi à grande échelle grâce aux satellites, dont les instruments qu'ils embarquent permettent d'estimer, en outre, certaines de leurs propriétés physiques (épaisseur géométrique, épaisseur optique, albedo, température...) et leur composition (nuage d'eau ou de glace). Les images satellites montrent que la forme des nuages n'est pas seulement un caractère individuel mais qu'une classification des champs de nuages est possible. Ces organisations peuvent présenter différentes échelles d'espace et de temps. Dans notre cas, nous nous intéressons particulièrement à la méso-échelle.

La méso-échelle (comprise entre 20 et 2000 km), du grec ancien « *mésos* » qui signifie « milieu », définit les processus se situant entre la macro-échelle (qui concerne la circulation planétaire d'échelle synoptique) et la micro-échelle (pour les phénomènes à plus petite échelle, de moins de 20 km). Cette échelle intermédiaire peut être divisée en deux sous-échelles pour la représentation des mouvements des nuages : la méso-échelle α entre 20 et 200 km et la méso-échelle β entre 200 et 2000 km (ORLANSKI 1975).

L'étude de l'organisation à méso-échelle des champs de nuages est d'une importance capitale, notamment au-dessus des océans. En effet, ils se présentent sous une myriade de formes, parfois complexes, qui jouent un rôle dans le système climatique. Par exemple, la convection de Rayleigh-Bénard (théoriquement étudiée par Lord Rayleigh et expérimentalement par Henri Bénard), est une instabilité thermo-convective dans un fluide soumis à un gradient de température qui se traduit par la formation de structures convectives appelées cellules de

Bénard. Cette convection cellulaire à méso-échelle, pouvant se présenter sous forme de cellules ouvertes ou fermées (exemples Fig. 1.9), accroît la réflectance du rayonnement aux ondes courtes et contribue à refroidir le système climatique (AGEE 1987).

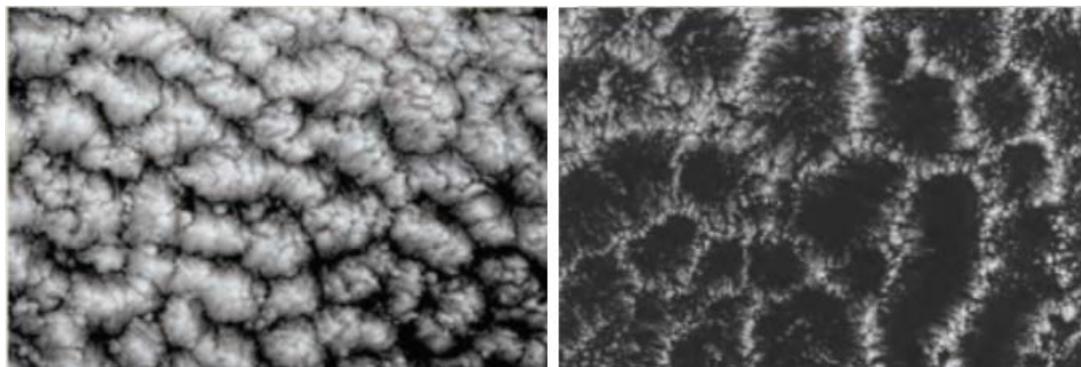


FIGURE 1.9 – Exemples d’observations satellites de cellules nuageuses ouvertes (open-cells) et fermées (closed-cells) au-dessus de l’océan.

AGEE 1987 a également examiné la convection cellulaire à méso-échelle (Mesoscale Cellular Convection – MCC), ainsi que les champs de nuages dont le sommet se situe au niveau de la couche limite marine dans laquelle cette convection se développe. Par exemple, le mode d’apparition et la direction de circulation peuvent être contrôlés par plusieurs facteurs tels que le mouvement vertical, le gradient vertical de diffusivité turbulente et les mécanismes de chauffage et de refroidissement locaux comme le rayonnement ou les changements d’états. Le rapport d’aspect, ou le degré de planéité, de la cellule peut être déterminé par des interactions non linéaires d’un système à commande thermique, un gradient de température horizontal imposé à la limite inférieure du nuage ou à l’entraînement – mélange d’air nuageux avec de l’air environnant de propriétés thermodynamiques (température, humidité) différentes entrant dans le nuage. Les MCC se forment souvent au-dessus des océans pour deux raisons essentielles : (1) l’océan joue le rôle de réservoir d’énergie et d’humidité qui assure un chauffage et une alimentation en vapeur d’eau ; (2) des conditions thermodynamiques (température, humidité) plus homogènes (spatialement) et moins variables (dans le temps) ; il en résulte que la convection concerne des masses d’air très étendues - sur terre, en revanche, la convection est plus localisée

car ce sont des petites parcelles d'air qui sont soulevées par des irrégularités topographiques.

Pourtant, une structure convective particulière n'est pas toujours causée par un seul mécanisme de forçage externe. À maintes reprises, cela semble ne pas être le cas. C'est pourquoi une caractérisation plus précise de telles organisations nuageuses ainsi que les paramètres en jeu dans leur formation est primordiale. L'étude de ces organisations nuageuses est, malgré tout, encore peu documentée.

Plus récemment, STEVENS et al. 2020 a proposé quatre sortes d'organisations à méso-échelle des champs nuageux au-dessus de l'océan Atlantique Nord, à partir d'observations satellites (MODIS/Aqua). Ces quatre modes d'organisation sont représentés Fig. 1.10 et décrites succinctement de la manière suivante :

- Flowers : constitué d'éléments nuageux stratiformes (de faible extension verticale), à méso-échelle α , de forme irrégulière, souvent avec des noyaux à réflectivité plus élevée. Ils apparaissent en grappes espacées quasi régulièrement avec des éléments individuels bien séparés les uns des autres par des régions dépourvues de nuages.
- Sugar : structure qui s'apparente à un saupoudrage de nuages à très fine échelle, caractérisée par une faible extension verticale et peu de signes d'auto-organisation.
- Fish : organisation qui ressemble à des réseaux squelettiques à la méso-échelle β . Souvent en forme d'arêtes de poisson, ces nuages sont séparés les uns des autres par des zones de ciel clair bien définies; ils sont parfois accompagnés d'une « barrière » de nuages stratiformes.
- Gravel : champs de nuages disposés le long de lignes ou d'arcs, à méso-échelle α , définissant des cellules avec une granularité intermédiaire et des éléments de nuages plus brillants (par rapport à la structure Sugar); ils sont accompagnés d'un voile stratiforme très léger.

Cette classification de champs de nuages a été déterminée à partir de 900 observations au cours des hivers de 2007 à 2017. Malgré le mérite de cette classification, il est, selon nous, difficile de reconnaître les structures évoquées métaphoriquement.

Il existe évidemment d'autres organisations de systèmes nuageux. Citons, par exemple, les fronts dépressionnaires, les systèmes orageux (nuage de type

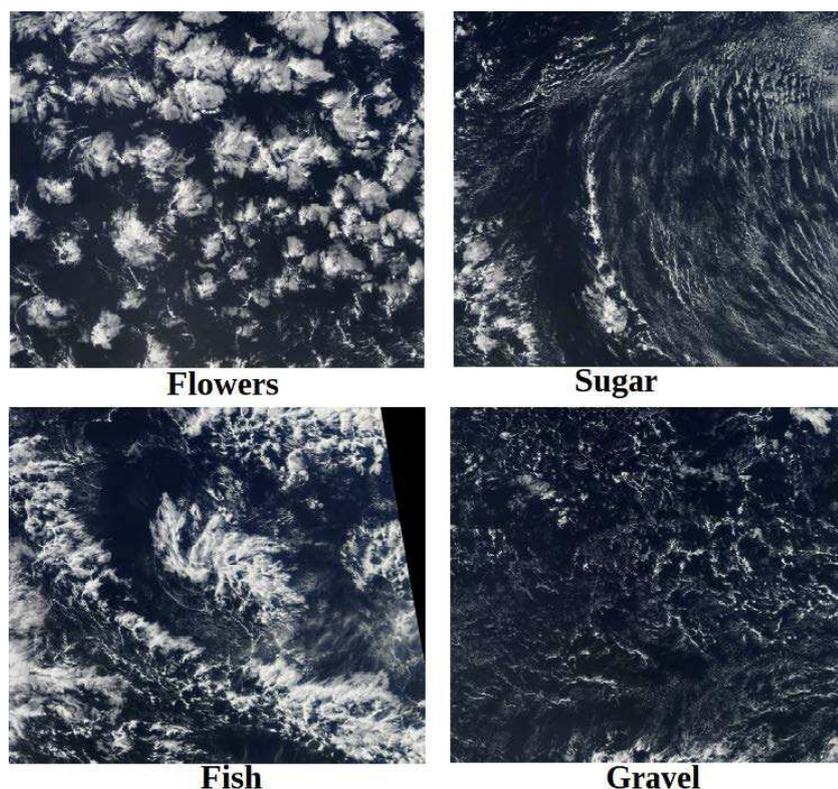


FIGURE 1.10 – Scènes issues de MODIS-Aqua représentant les quatre sortes d’organisations de champs nuageux de STEVENS et al. 2020 : Flowers, Sugar, Fish et Gravel. Images adaptées des figures 1 à 4 de STEVENS et al. 2020.

cumulonimbus), ou encore des systèmes organisés comme les lignes de grains qui sont des cumulonimbus (grains) disposés selon un certain alignement. Ces organisations ont des échelles spatiotemporelles variées. Dans cette thèse, nous n’abordons pas ce type d’organisations; nous portons notre attention sur les structures de convection peu profonde, comme les champs de stratocumulus au-dessus de l’océan.

R. Wood 2012 a montré que les stratocumulus au-dessus des océans peuvent être regroupés en quatre types morphologiques de méso-échelle : (i) pas de cellularité sur la méso-échelle, (ii) cellules non organisées, (iii) convection cellulaire fermée organisée, et (iv) convection cellulaire ouverte organisée. Cet article met en évidence que, dans ce contexte, les précipitations (fréquemment sous forme de bruine), se révèlent être un facteur clé du comportement des stratocumulus.

Ces précipitations ajoutent encore à la complexité de l'organisation grâce à leurs effets combinés de dégagement de chaleur latente dans la couche nuageuse et d'évaporation de la couche sous-nuageuse. Ainsi, les systèmes nuageux tels que les stratocumulus au-dessus des océans peuvent être généralement considérés comme un réseau organisé et interconnecté d'éléments convectifs de la couche limite marine dans lequel le rayonnement et les précipitations constituent, à la fois, les principaux forçages énergétiques.

De surcroît, les stratocumulus sont sensibles aux perturbations liées aux aérosols atmosphériques, à la fois *via* des facteurs microphysiques et des mécanismes macrophysiques. Par conséquent, une meilleure connaissance de leur comportement est tout aussi pertinente pour quantifier les effets indirects des aérosols sur les nuages que pour évaluer la façon dont les nuages agissent sur le climat. Malgré l'importance des recherches sur les nuages, il existe toujours de nombreux aspects de leur comportement et de leur structure encore mal compris.

Ainsi, bien que l'on observe depuis longtemps que les nuages semblent structurés ou organisés à méso-échelle de différentes manières (AGEE 1987 ; MALKUS et RIEHL 1964), le rôle que cette organisation pourrait jouer dans les rétroactions des nuages reste largement inexploré (NUIJENS et SIEBESMA 2019). La question reste alors ouverte : l'organisation des nuages à méso-échelle, qui est exclue de la plupart des paramétrages des modèles et des nombreuses simulations climatiques, influence-t-elle la réponse des nuages au réchauffement climatique (BONY, SCHULZ et al. 2020) ?

Modélisation des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages

Sommaire du présent chapitre

| | |
|---|-----------|
| 2.1 Types de modèles | 26 |
| 2.2 Vue d'ensemble des modèles actuels | 27 |
| 2.2.1 Les aérosols dans les modèles | 27 |
| 2.2.2 Les propriétés nuageuses dans les modèles | 29 |
| 2.2.3 La vapeur d'eau dans les modèles | 32 |
| 2.3 Approche abordée dans cette thèse | 34 |

Dans l'étude quantitative et la prévision des phénomènes atmosphériques, la modélisation joue un rôle essentiel. On entend par là le fait de générer numériquement des mesures physiques de paramètres météorologiques et climatiques. On est alors en mesure d'examiner les moteurs des phénomènes atmosphériques et d'analyser de façon détaillée leur comportement selon diverses situations. Les modèles sont donc aussi des outils nécessaires pour déterminer les caractéristiques générales du climat, à savoir tester les hypothèses sur les facteurs responsables des changements significatifs actuels, comprendre son évolution passée, et prévoir son futur en réponse à différents forçages. L'exécution de tels

modèles exige de plus en plus de ressources informatiques, car la complexité et la longueur des calculs effectués augmentent de plus en plus.

Nous donnons ici un aperçu sur la représentation des aérosols, des nuages et de la vapeur d'eau dans les modèles atmosphériques.

2.1 Types de modèles

Selon le phénomène que l'on souhaite étudier, on peut utiliser différents types de modèles, d'échelles spatiale et temporelle variées. Par exemple, les évolutions climatiques (passées et futures) peuvent être évaluées en utilisant un modèle climatique global. Un tel modèle représente, numériquement, sur quelques années et jusqu'à plusieurs millénaires, l'évolution du système climatique à l'échelle planétaire. La génération actuelle de modèles effectue des simulations du climat avec une résolution horizontale de 100 km (en moyenne). Cela implique que le climat global est assez bien représenté mais que, pour une surface comme la France par exemple, seuls quelques dizaines de points sont concernés. C'est le cas des Modèles de Circulation Générale (GCMs) Océan - Atmosphère dont la résolution spatiale va de quelques centaines à quelques milliers de kilomètres.

Pour affiner l'étude du climat sur une région spécifique, des modèles régionaux ont été développés (p. ex. CNRM-ALADIN ou CNRM-AROME). Ils décrivent spécifiquement le climat de la France, de l'Europe, de la Méditerranée, de l'Afrique de l'Ouest ou de l'Antarctique par exemple. De manière plus générale, il existe toute une hiérarchie de modèles numériques de climat qui permettent de simuler le comportement de l'atmosphère. Les modèles à mésoéchelle ou LES (Large Eddy Simulation) et les modèles CRM (Cloud Resolving Model) permettent de simuler l'atmosphère à des échelles beaucoup plus fines afin de modéliser tous les processus dynamiques et physiques qui y opèrent (par exemple la convection).

Ce type de modèles (mésoéchelle, LES, CRM) est très coûteux en temps de calcul en raison de la finesse des résolutions spatiale et temporelle impliquées. On utilise généralement ces modèles pour des régions spécifiques afin de comprendre et quantifier des mécanismes physiques qui ne peuvent pas être résolus par les modèles à plus large échelle. Ces modèles sont donc générale-

ment utilisés de manière complémentaire aux modèles globaux, pour fournir des paramétrisations physiques de processus sous-maille.

2.2 Vue d'ensemble des modèles actuels

2.2.1 Les aérosols dans les modèles

Le traitement des interactions aérosols-nuages dans les modèles numériques implique généralement deux échelles : l'échelle globale ou la méso-échelle. Il est également possible de résoudre très finement, en plus des interactions directes entre aérosols et nuages, les processus liés aux aérosols hors du nuage, c'est-à-dire la microphysique correspondante et son évolution, à l'aide d'un troisième type de modèle.

Par exemple, afin de documenter les changements de la composition atmosphérique entre 1850 et 2100, ainsi que les forçages radiatifs associés, le projet d'intercomparaison de la chimie atmosphérique et des modèles climatiques (ACCMIP – Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) met en place une série d'expériences ciblant les changements à long terme (LAMARQUE et al. 2013). Pour ce projet, seize modèles différents ont été utilisés avec une large gamme de résolutions horizontales et/ou verticales, d'extension verticale, de schémas chimiques et d'interactions avec le rayonnement et les nuages. Alors que les émissions anthropiques et de combustion de la biomasse ont été spécifiées pour chacun d'entre eux, il s'avère que les émissions naturelles sont responsables d'une variation significative dans la prédiction des différents modèles du protocole ACCMIP. Cependant, comme le révèle une comparaison modèle à modèle des changements de température, d'humidité spécifique ou encore de vent zonal pour deux périodes de temps (1850-2000 et 2000-2100), ces modèles restent cohérents entre eux : tous prédisent, par exemple, une augmentation de la température, mais celle-ci est plus ou moins marquée selon le modèle utilisé ; c'est en ce sens qu'il faut comprendre le terme de variation employé au-dessus (LAMARQUE et al. 2013).

À grande échelle, les GCMs Océan - Atmosphère s'appuient sur des lois physiques fondamentales qui sont ensuite soumises à des approximations physiques

appropriées selon le contexte considéré. Une discrétisation mathématique est ensuite utilisée sur les paramètres de sortie. Ces équations discrétisées sont cependant restreintes par les contraintes de calculs, de sorte qu'il est nécessaire de représenter l'impact des processus non résolus à grande échelle ; c'est ce qu'on appelle les *paramétrisations*.

Jusqu'à récemment, les paramétrisations des émissions primaires d'aérosols marins étaient principalement déterminées par la vitesse du vent à la surface de l'océan et l'état de cette dernière. Cependant, il a été montré (SPADA et al. 2013) que, outre la vitesse du vent et la présence de vagues, l'émission d'embruns dépend de la température de surface de la mer (cf. Chapitre 1, Section 1.1.3). Les modèles climatiques prédisent une augmentation de la SST de 2 à 4°C dans les Tropiques et les latitudes subtropicales d'ici 2100, avec la plus grande augmentation prévue dans les océans Indien et Pacifique. Les émissions d'embruns augmenteraient alors de 14 à 40 %, entraînant une rétroaction négative sur le réchauffement climatique de $-0,2$ à $-1,6 \text{ W m}^{-2}$ (effet direct ; PARTANEN et al. 2014) qui n'est pas pris en compte dans les modèles climatiques en raison d'émissions biaisées dans les paramétrisations. De grandes incertitudes subsistent donc dans les estimations des émissions primaires des aérosols (PARTANEN et al. 2014).

Des processus supplémentaires tels que la formation de nouvelles particules, c'est-à-dire la conversion de précurseurs en phase gazeuse en nanoparticules, peuvent avoir lieu au-dessus de la couche limite marine ou dans la troposphère libre ; ceci n'est pas encore pris en compte. Un autre facteur conduisant à de grandes incertitudes sur les émissions d'aérosols marins doit être attribué à la formulation de la fonction d'émission (WITEK et al. 2016).

Divers travaux d'intercomparaison montrent ainsi que les effets liés aux aérosols (direct, semi-direct et indirect) restent une source importante d'incertitudes dans les simulations, et ce, malgré les progrès réalisés ces dernières années. À l'échelle du globe, plusieurs travaux sur les interactions des aérosols avec l'océan ont mis en évidence les effets des aérosols sur la température de surface de la mer et leurs conséquences sur le climat. C'est notamment le cas des poussières désertiques (McCONNELL et al. 2008 ; FOLTZ et McPHADEN 2008 ; EVAN et al. 2009 ; MARTÍNEZ AVELLANEDA et al. 2010 ; YUE et al. 2011) ou des aérosols d'origine anthropique (RAMANATHAN et al. 2001). Généralement, seul le premier effet

indirect décrit par TWOMEY 1974 était pris en compte (U. LOHMANN et FEICHTER 2005), mais les autres effets indirects le sont maintenant de plus en plus (e.g. BOOTH et al. 2012). La paramétrisation des interactions aérosols-nuages restent cependant une grande source d'incertitudes dans les modèles, notamment en raison d'un manque d'observations pour contraindre suffisamment ces derniers (MCCOMISKEY et FEINGOLD 2012; WALL et al. 2014; MCCONNELL et al. 2008).

En résumé, il y a des améliorations continues des modèles : résolution, méthodes de calcul, paramétrisations et introduction de nouveaux processus. Néanmoins, les changements climatiques simulés par les modèles en réponse à une perturbation diffèrent toujours notablement d'un modèle à l'autre ; il est clair que les processus nuageux jouent un rôle majeur dans ces différences (RANDALL et al. 2007, S. BONY, R. COLMAN et al. 2006, DUFRESNE et BONY 2008).

2.2.2 Les propriétés nuageuses dans les modèles

En termes de modélisation, les nuages représentent un véritable défi. En effet, les modèles de climat (ZHANG et al. 2005; CESANA et CHEPFER 2012; NAM et QUAAAS 2012) et les modèles de prévision (BODAS-SALCEDO et al. 2008) sous-estiment très souvent la fréquence d'occurrence des nuages ainsi que leurs effets radiatifs. La paramétrisation des nuages dans les modèles numériques de prévision du temps ou du climat reste donc un vaste domaine de recherche.

Les nuages interviennent fortement dans le cycle hydrologique, le bilan radiatif ou encore la dynamique atmosphérique. Il est donc indispensable de les représenter correctement dans les modèles numériques pour étudier l'évolution de l'atmosphère. La convection, la turbulence dans la couche limite atmosphérique ou la microphysique figurent parmi les divers processus, d'échelles spatiale et temporelle variées, impliqués dans la formation, le développement et la dissipation des couches nuageuses. Cependant, cela reste encore assez mal compris et le réalisme des paramétrisations nuageuses actuelles reste discutable. C'est alors la résolution horizontale des modèles numériques qui détermine, en grande partie, les caractéristiques des schémas de nuages, permettant ainsi de paramétrer les processus de condensation/évaporation.

Les mouvements à l'échelle des nuages sont supposés résolus dans les simu-

lations LES et CRMs, utilisant des résolutions inférieures à 1 km. L'hypothèse d'homogénéité des variables nuageuses dans chaque maille du modèle est donc justifiée (A. M. TOMPKINS et BERNER 2008). Bien que les résolutions horizontales les plus fines, utilisées dans les modèles de prévision numérique de méso-échelle, soient maintenant de l'ordre du kilomètre, certains types de nuages (comme les cumulus épars par exemple) restent sous-maille. Cela s'explique par le fait qu'ils sont associés à des processus dynamiques et physiques présentant eux-mêmes une forte variabilité sous-maille horizontale (exemple de la convection peu profonde).

La plupart des GCM et des modèles climatiques ne peuvent pas résoudre le mouvement atmosphérique à une échelle suffisamment fine pour fournir une bonne représentation de la formation et de la dissipation des nuages (R. WOOD et FIELD 2000). Une paramétrisation de la variabilité nuageuse sous-maille horizontale est alors nécessaire, le plus souvent par le biais d'une description statistique. Dans ce cas, l'utilisation d'une approche statistique, plutôt qu'une approche de type « tout ou rien », permet notamment de corriger les biais systématiques observés dans les paramétrisations (microphysique, rayonnement, ...) et engendrés par l'hypothèse d'homogénéité dans une maille présentant une forte variabilité nuageuse sous-maille horizontale. Le développement des schémas de nuages sous-maille (ainsi que leur validation) dans la communauté GCSS (Gewex Cloud System Study) reposent couramment sur une analyse statistique de données de fine échelle obtenues lors de campagnes d'observation *in-situ* ou spatiale ou à partir de simulations numériques de type LES ou CRM. Par exemple, LARSON et al. 2001 ont défini un nouveau schéma de nuages inséré dans un modèle 1D (unidimensionnel) en considérant une double distribution gaussienne pour la densité de probabilité de la paramétrisation des processus de sous-échelle, et en utilisant des données aéroportées portant sur les transitions de stratocumulus vers des cumulus. L'étude de PRICE 2001 considère des données recueillies par des ballons radiosondes pour plusieurs cas de nuages de couche limite, afin de considérer une grande variété de conditions atmosphériques. Les formes des distributions de l'humidité dans la couche limite sont ainsi examinées et l'efficacité de plusieurs distributions théoriques pour les approcher est évaluée. Considérant les propriétés radiatives des nuages, BONY et KERRY 2001 emploient

des données satellitaires pour la validation d'un nouveau schéma de nuages s'appuyant sur une distribution log-normale couplée à un schéma de convection profonde.

Le manque de données expérimentales pour la validation des schémas de nuages est fréquemment pallié par l'utilisation de données issues de simulations à fine échelle. Ainsi, GOLAZ et al. 2002 ont évalué un schéma de nuages en considérant une distribution double gaussienne par comparaison à des données de la vitesse verticale, de la température et de l'humidité obtenues à partir de simulations LES. A.M TOMPKINS 2002 a utilisé des données issues de CRMs pour déterminer les caractéristiques des distributions et trouver une distribution théorique adéquate pour les approcher.

Globalement, dans les modèles, les fractions nuageuses sont calculées à partir d'un schéma de nuages reposant sur une distribution *a priori* de l'eau totale dans une maille. Les caractéristiques de cette distribution sont obtenues à partir des propriétés des processus convectifs ou de grande échelle à l'origine de leur formation. CESANA et CHEPFER 2012 ont comparé les observations de CALIPSO avec cinq modèles de climat (IPSL-CM5B-LR, CNRM-CM5, HadGEM2, CanAM4, MPI-ESM) et constaté que la représentation des nuages (bas, moyens et hauts) est meilleure en Arctique que sous les Tropiques et aux moyennes latitudes. Dans une évaluation axée sur les processus des modèles de climat, dans le cadre du projet d'intercomparaison CMIP5, ROEHRIG et al. 2013 ont montré, à l'aide d'observations de la fraction nuageuse donnée par CloudSat-CALIPSO, la difficulté des modèles de climat (dont les résultats sont moyennés entre 1979 et 2008) à reproduire l'occurrence des nuages de mi-niveau en Afrique de l'Ouest [10°W-10°E, 5°S-45°N]. Ils proposent différentes origines à la sous-estimation des nuages de mi-niveau. La première concerne les résolutions verticale et horizontale des modèles actuels. Elles sont souvent très lâches afin de faire tourner beaucoup plus rapidement les modèles sur des temps beaucoup plus longs. Les nuages de mi-niveau et à l'échelle du globe, peuvent être géométriquement très fins ; cela implique donc la simulation de faibles fractions nuageuses. Une autre origine est vraisemblablement la représentation des processus dynamiques et thermodynamiques, c'est-à-dire l'humidité, la température et les vents, qui sont des composants essentiels dans la formation des nuages (cf Chapitre 1). La repré-

sensation des nuages dans les modèles dépend donc fortement des hypothèses des schémas de nuages et des paramétrisations microphysiques. Des observations précises de la thermodynamique et des différentes phases nuageuses sont donc indispensables afin de documenter les nuages dans un souci d'amélioration des modèles et, par conséquent, de leur validation. Il est donc important, une fois ces nuages documentés en termes de caractéristiques moyennes, de comprendre de manière plus précise pourquoi les modèles climatiques ne simulent pas correctement les nuages et, en particulier, les nuages de basses couches.

Dans les modèles numériques de prévision du temps météorologique, la difficulté de paramétrer les nuages ressort notamment pour la prévision des nuages bas, de couche limite, comme les stratocumulus, les stratus ou même le brouillard. C'est actuellement le cas dans le modèle de prévision de méso-échelle AROME (LUCAS-PICHER et al. 2021), opérationnel à Météo-France depuis fin 2008, dans lequel la variabilité nuageuse sous-maille horizontale est diagnostiquée par un schéma statistique sous-maille couplé à un schéma de turbulence et à un schéma de convection peu profonde. Les nébulosités obtenues pour ces nuages bas s'apparentent trop fréquemment aux résultats d'un schéma « tout ou rien » avec des sauts brusques de la nébulosité entre 0 et 100%. Le problème est particulièrement visible avec l'humidité relative qui peut atteindre jusqu'à 95% sans qu'aucun nuage ne soit créé, alors qu'une augmentation de quelques pourcents fait brutalement apparaître une nébulosité de 100%.

2.2.3 La vapeur d'eau dans les modèles

La vapeur d'eau joue un rôle prépondérant dans le bilan radiatif et le cycle hydrologique. Elle est à la fois, un élément moteur du cycle de l'eau sur la planète, et le gaz à effet de serre le plus important. Avec une masse totale moyenne de $1,5 \times 10^{15}$ kg, la vapeur d'eau atmosphérique contribue fortement à la masse totale atmosphérique, estimée en moyenne à $5,2 \times 10^{18}$ kg (TRENBERTH et SMITH 2005). Sachant qu'une piscine olympique contient officiellement un volume d'eau entre 2 500 et 3 750 m³, la masse de vapeur d'eau atmosphérique, si elle se condensait, représenterait entre 0,4 et 0,6 milliards de telles piscines, soit presque une piscine pour dix personnes dans le monde. C'est ainsi un élément

principal de la thermodynamique de l'atmosphère, notamment parce qu'elle contribue à l'absorption et à l'émission de la lumière et qu'elle se condense pour former des nuages qui, à leur tour, réfléchissent et absorbent le rayonnement solaire, affectant ainsi directement le bilan énergétique.

Dans les basses couches de l'atmosphère, les concentrations de vapeur d'eau peuvent varier considérablement d'un endroit à l'autre. Cette variabilité crée un problème fondamental dans la modélisation du climat en raison de la très haute résolution (temporelle et/ou spatiale) nécessaire pour résoudre tous les processus liés à cette variabilité. L'estimation de la contribution de la vapeur d'eau aux phénomènes atmosphériques, à différentes échelles de temps et d'espace, est indispensable et la surveillance de la vapeur d'eau essentielle. Cette dernière est une condition préalable à la validation d'un modèle et une contribution importante à la compréhension du comportement de l'atmosphère. Il est prouvé que seule la validation de plus d'une composante du cycle hydrologique conduit à une meilleure compréhension et à une amélioration des simulations numériques (JACOB 2001).

En outre, dans AROME, la variabilité nuageuse est calculée à partir d'un schéma de turbulence et d'un schéma de convection peu profonde tandis que, dans ARPEGE/ALADIN, elle ignore les effets de la dynamique et est simplement liée à l'humidité relative (basé sur le principe « RH-scheme »). Les distributions statistiques sont alors très étroites et il n'y a pas de saturation locale malgré les fortes valeurs d'humidité relative (à moins d'atteindre 100%). Une paramétrisation dépendant de l'humidité relative, comme dans ARPEGE/ALADIN, est, dans ce cas, plus avantageuse car elle permet de forcer le déclenchement de la condensation sous-maille avant d'atteindre 100% d'humidité dans la maille.

D'après le dernier rapport de l'IPCC axé sur la vapeur d'eau (DOUVILLE et al. 2021, Chapitre 8), il est argumenté que des progrès ont été réalisés dans la compréhension des changements de précipitations prédits par les modèles. Ces changements peuvent être décomposés en une partie liée à la circulation atmosphérique, appelée composante dynamique, et une partie liée aux changements de vapeur d'eau, la composante thermodynamique. Les modèles globaux actuels ont du mal à représenter les précipitations et les événements extrêmes associés. Cependant, des efforts pour développer des modèles climatiques à échelle ki-

lométrique sont réalisés pour pallier ce problème (SLINGO et al. 2022). Sur la base de la compréhension et de la modélisation des processus (FLÄSCHNER et al. 2016; SAMSET et al. 2016), les précipitations moyennes mondiales augmenteront très probablement de 1 à 3% par degré de réchauffement. L'augmentation de la vapeur d'eau atmosphérique est un changement encore plus robuste dans le cadre du réchauffement climatique car la sensibilité des précipitations mondiales au réchauffement est plus faible (2% par degré) par rapport à celle de la vapeur d'eau (7% par degré; HELD et SODEN 2006).

Enfin, GUTIÉRREZ et al. 2021 donne l'exemple de l'Arctique qui s'est réchauffé à plus de deux fois le taux mondial au cours des cinquante dernières années, soit le plus grand réchauffement enregistré (DAVY et al. 2018; Box et al. 2019; PRZYBYLAK et WYSZYŃSKI 2020; Xiao et al., 2020). Ceci est fondé sur divers processus d'amplification arctique, en particulier l'effet combiné de plusieurs rétroactions connexes entre divers composants de rayonnement, la vapeur d'eau et les nuages.

2.3 Approche abordée dans cette thèse

Les modèles actuels pour l'analyse des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages sont de bons outils qui ont beaucoup progressé ces dernières années. Cependant, le traitement des aérosols dans les modèles est entravé par le manque de mesures et la compréhension encore incomplète des mécanismes entre les aérosols et les nuages. **Une meilleure représentation de ces aérosols est alors nécessaire, et particulièrement leur sensibilité aux nuages dans divers régimes météorologiques.** Incorporer une meilleure représentation du cycle de vie des nuages (formation/dissipation, temps de vie, évolution spatiale, ...) ainsi que de l'évolution de l'humidité atmosphérique serait également une bonne stratégie pour l'amélioration des modèles (J. SEINFELD et al. 2016).

Il existe actuellement deux approches principales au moment de choisir une modélisation : (i) les modèles de circulation générale (à différentes échelles) de l'atmosphère et/ou de l'océan (comme présenté précédemment), et (ii) les modèles idéalisés (c'est-à-dire simplifiés) qui sont généralement utilisés pour la compréhension du comportement d'un phénomène précis (HELD 2005). Les pre-

miers sont largement utilisés, plus ou moins validés et complétés au fil du temps. Pour la seconde approche, **HELD 2005 met en avant la nécessité de mieux comprendre des systèmes idéalisés, non linéaires, ne possédant que quelques degrés de liberté avant d'aborder la compréhension de systèmes bien plus complexes. Pour cela, il est intéressant d'utiliser une approche interdisciplinaire conciliant physique théorique, sciences du climat et mathématiques** (WETTLAUFER 2016).

C'est dans cette perspective que ce travail de thèse se positionne. Les interactions aérosols-nuages constituent un élément capital dans le système atmosphérique, cependant qu'elles restent encore mal comprises et modélisées. **C'est pourquoi nous proposons, dans un premier temps, une modélisation simplifiée, à trois équations, fondées sur la dynamique de la compétition entre espèces (modèle de type proie-prédateur).** Nous allons voir qu'un système à trois degrés de liberté permet de décrire le comportement macroscopique des interactions aérosols-nuages-vapeur d'eau-pluie.

Nous avons également souhaité étudier l'organisation des champs de nuages à méso-échelle à travers une nouvelle approche de la modélisation en deux dimensions horizontales (2D). Pour cela, nous nous sommes inspirés de la physique statistique car son efficacité dans l'étude de comportements collectifs n'est plus à justifier (citons par exemple le magnétisme de la matière condensée). Étant donné que les nuages interagissent entre eux et avec leur environnement, à l'instar des spins dans un milieu magnétique ou des atomes dans un alliage, nous formulons l'hypothèse que la physique statistique peut être une approche fructueuse pour l'étude des champs nuageux. **Nous présentons donc, en fin de manuscrit un modèle statistique 2D de type Ising nommé IOCIM (Indian Ocean Cloud Ising Model), qui prend en compte différentes interactions entre une parcelle d'air (nuageuse ou non), ses voisines et son environnement.**

Contexte, zone d'étude & méthodologie de la thèse

Sommaire du présent chapitre

| | |
|--|-----------|
| 3.1 Contexte de l'étude | 37 |
| 3.1.1 Interêt des régions océaniques « pristines » | 37 |
| 3.1.2 Le Sud de l'océan Indien | 41 |
| 3.1.3 Emplacement stratégique de l'île de La Réunion | 44 |
| 3.2 Méthodologie et motivation de la thèse | 45 |

3.1 Contexte de l'étude

3.1.1 Interêt des régions océaniques « pristines »

Les régions pristines présentent un intérêt de premier plan dans l'étude du changement climatique car elles sont grandement épargnées par les pollutions d'origines anthropiques. Ce sont des régions caractérisées par des épaisseurs optiques d'aérosols (AOD) inférieures à 0,1. L'AOD est une mesure de l'extinction des rayonnements optiques par les aérosols. Ces derniers (poussière, fumée, pollution, aérosols marins) absorbent et diffusent la lumière du soleil; l'AOD

quantifie la lumière directe du soleil qui n'atteint pas le sol (ou l'instrument) et mesure donc la transparence atmosphérique (ou d'une couche atmosphérique). Par définition, l'AOD, ou plus largement la profondeur optique totale τ_t , est le logarithme népérien (changé de signe) du rapport entre le flux reçu Φ et le flux solaire Φ_o au sommet de l'atmosphère, *i.e.* $\tau_t = -\ln(\Phi/\Phi_o)$. Cette grandeur dépend évidemment de la fréquence du rayonnement incident. Il s'agit d'un nombre sans dimension qui dépend de la quantité d'aérosols dans la colonne verticale d'atmosphère au-dessus du lieu d'observation ou, plus précisément, dans la ligne de visée entre l'émetteur (le Soleil) et un récepteur (l'instrument de mesure – un photomètre). En raison de ces faibles AODs dans les régions proustines, l'interaction aérosols-nuages peut montrer une sensibilité exacerbée, dans le sens où de petites variations de l'AOD ou de la quantité de vapeur d'eau peuvent avoir des conséquences importantes (non linéaires) sur la formation des nuages et leurs propriétés. Ces régions proustines sont de fait des indicateurs précieux pour la composante naturelle du climat, composante qui reste toujours mal comprise car masquée par des contributions anthropiques.

KOREN et al. 2014 ont identifié plusieurs régions océaniques proustines, mises en évidence dans la Figure 3.1 par des contours noirs. Ces contours représentent ainsi les régions où l'AOD moyen (calculé sur plusieurs mois) est inférieur à 0,1. Nous pouvons observer sur cette carte que l'hémisphère Nord et les zones proches des continents présentent des AODs moyens plus élevés. Ainsi, la majorité des régions proustines ($AOD \leq 0,1$) se situent dans l'hémisphère Sud, en particulier le long d'une ceinture entre l'équateur et environ $30^\circ S$ de latitude (océans Pacifique, Atlantique Sud, et Indien Sud).

D. S. HAMILTON et al. 2014 définissent l'état proustin d'une région par le fait que les aérosols ressemblent et se comportent actuellement comme ils le faisaient lors de l'ère pré-industrielle, en 1750 (année de référence). En accord avec KOREN et al. 2014, ils mettent en avant que des conditions proustines devraient encore être observables quelques jours par mois dans certaines régions de la Terre, et qu'environ 90% d'entre elles se situent dans l'hémisphère Sud.

Ces océans sont d'importants réservoirs d'aérosols marins (Sea Salt Aerosols – SSA) et d'aérosols organiques. Les SSA sont une composante majeure de la masse d'aérosols marins primaires (voir Chapitre 1) au-dessus des régions où le

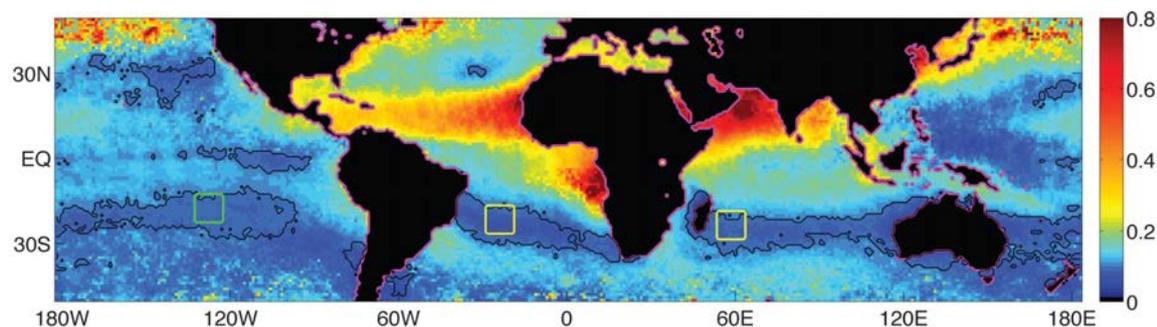


FIGURE 3.1 – AOD moyen au-dessus des océans pour juin, juillet et août 2007. Les régions délimitées par un contour noir correspondent à des régions océaniques primitives (AOD ≤ 0.1). Source : Fig. 1 de KOREN et al. 2014.

vent est fort et/ou les autres sources d'aérosols sont faibles (LEWIS et SCHWARTZ 2004). Or l'une des plus grandes incertitudes du système aérosols-nuages est la concentration de fond de ces aérosols naturels, particulièrement dans les zones océaniques primitives (ANDREAE et ROSENFELD 2008).

Ceci est dû à la difficulté particulière de quantifier les émissions marines, et ce même par télédétection spatiale (JAEGLÉ et al. 2011), probablement en raison des incertitudes sur l'albédo de surface des océans ou encore parce que les mesures satellitaires sont moins bonnes proche du sol qu'en altitude. En outre, les estimations des émissions marines issues des observations *in-situ* dans l'hémisphère Nord sont biaisées par les émissions terrestres. PETRENKO et ICHOKU 2013 ont ainsi montré un biais systématique et une erreur moyenne dans les mesures d'AOD par satellite au-dessus de l'océan par rapport aux données au sol du réseau AERONET. En particulier, les satellites POLDER et CALIOP ont un biais relativement important de 0,06 et 0,04 respectivement. Ce résultat a été approfondi dans une étude de l'AOD au-dessus de l'océan Indien (MALLET et al. 2018), l'une des régions primitives identifiée par KOREN et al. 2014. Selon MALLET et al. 2018, ce biais est lié à une erreur dans la quantification des aérosols marins au-dessus de l'océan. Aussi, des mesures des propriétés optiques des aérosols marins depuis la surface sont-elles nécessaires pour compléter et affiner les mesures par satellite au-dessus de l'océan.

Cependant, les stations de mesures dans les océans sont rares. La Figure 3.2 présente la localisation des stations AERONET (AERosol ROBotic NETwork), une

collaboration internationale qui fournit des observations à l'échelle mondiale des propriétés optiques des aérosols, comme l'AOD, ou encore des produits d'inversion et de l'eau précipitable dans divers régimes d'aérosols. Nous pouvons rapidement constater, sur cette figure, que la grande majorité des stations se situent sur les continents; elles fournissent donc des mesures influencées par les activités humaines (aérosols d'origine anthropique dominants). La plupart des stations AERONET en mer, bien plus rares, se trouvent dans l'hémisphère Sud dans les océans Pacifique et Indien.



FIGURE 3.2 – Stations de mesures AERONET (AEROSOL ROBOTIC NETWORK) dans le monde. Source : <https://aeronet.gsfc.nasa.gov/>.

En comparant les informations fournies par les Figures 3.1 et 3.2, nous constatons la présence de stations AERONET pour quelques-unes des régions océaniques proustines identifiées précédemment. Nous avons concentré nos recherches, durant cette thèse, sur l'une de ces régions proustines et présentons, dans ce manuscrit, notre zone d'étude : le Sud de l'océan Indien. Nous nous intéressons particulièrement à la région autour de l'île de La Réunion, laquelle offre la possibilité d'effectuer des mesures *in-situ* au sol dans ce contexte proustin.

3.1.2 Le Sud de l'océan Indien

L'océan Indien, et notamment la partie Sud, est un bon candidat pour l'étude des aérosols naturels (marins) et leurs effets sur les nuages. En effet, il s'agit d'une région éloignée des continents où les activités humaines ont peu ou pas d'impact sur la composition atmosphérique en termes d'aérosols.

Cet océan a fait l'objet de plusieurs études (observations, modélisations) sur la caractérisation des aérosols, notamment le transport des masses d'air Nord et Sud. Il a été révélé une transition abrupte entre les masses d'air Nord et Sud, à proximité de l'ITCZ (Inter Tropical Convergence Zone), appelée « ITCZ chimique » (LAWRENCE, RASCH et al. 2003) ou « équateur chimique » (J. F. HAMILTON et al. 2008). Par exemple, à partir de mesures embarquées, MOORTHY et al. 1999 ont noté un gradient d'AOD à ondes courtes fortement négatif vers le Sud, à travers l'ITCZ, sans variation d'AOD à ondes longues, suggérant de gros aérosols d'origine océanique au Sud de l'ITCZ. En outre, NORMAN et al. 2003 ont montré de fortes diminutions (pouvant aller jusqu'à un facteur quarante) des sources anthropiques et continentales des concentrations d'aérosols submicrométriques. De surcroît, au cours de la campagne de terrain intensive INDOEX en 1999, WELTON et al. 2002 ont mesuré un AOD (à 523 nm) de $0,05 \pm 0,03$ pour les aérosols marins en l'absence de toute influence continentale avec un pic d'extinction proche du sommet de la couche limite marine. RAJEEV et al. 2000 ont examiné la distribution des aérosols grâce à l'observation AVHRR (radiomètre à très haute résolution) en février-mars 1998. Ils ont constaté que l'AOD est inférieur à 0,1 dans l'hémisphère Sud de l'océan Indien, mais estiment que, parfois, la composante non-SSA dépasse la composante SSA en raison d'un transport inter-hémisphérique, malgré la forte production de SSA associée à des valeurs de vent élevées autour de 20°S.

Des modèles atmosphériques ont également été utilisés pour décrire l'AOD et le forçage radiatif des aérosols de janvier à mars 1999 (par exemple, RASCH et al. 2001 ; S. REDDY et al. 2004). Des valeurs d'AOD inférieures à 0,1 ont été obtenues de 10°S à 30°S et la contribution des SSA à l'AOD totale a été estimée à environ 40% à 60%. D'autres études postérieures à INDOEX ont analysé l'impact de la contamination de l'Asie vers le Sud de l'océan Indien (ex. PANT et al. 2009);

LAWRENCE et LELIEVELD 2010 ont passé en revue les connaissances actuelles sur les sorties de polluants de l'Asie du Sud et ont encouragé la poursuite des études.

Le Sud de l'océan Indien (encadré rouge de la Fig. 3.3) est également une région identifiée, dans la littérature récente, comme une région de fortes émissions d'embruns marins, de formation d'aérosols marins non sulfatés et où l'impact radiatif des aérosols marins est important. Cette région est l'une des trois régions pristines identifiées par KOREN et al. 2014, et analysée en détail par MALLET et al. 2018 à l'aide d'une analyse statistique de plusieurs années s'appuyant sur les réanalyses MACC et POLDER. MALLET et al. 2018 ont obtenu une description cohérente de la distribution et de la variabilité des aérosols pour le Sud de l'océan Indien. Ils ont, entre autres choses, estimé que les aérosols marins sont principalement situés en dessous de 2 km d'altitude et représentent en moyenne 60% à 80% de l'AOD total. Ils ont montré également que la zone où les aérosols marins dominent est assez stable dans le temps en termes d'AOD et correspond à l'emplacement de l'anticyclone des Mascareignes, c'est-à-dire centrée autour de 30°S des côtes Est du continent africain aux côtes occidentales de l'Australie. Enfin, MALLET et al. 2018 ont confirmé un gradient latitudinal frappant de l'AOD qui suit le mouvement de l'ITCZ et suggère donc que l'ITCZ agit comme une barrière naturelle pour le transport interhémisphérique en empêchant (sinon réduisant) la contamination indienne et asiatique pendant toute l'année.

De plus, cet océan est oligotrophe : c'est un océan où l'activité biologique marine est faible, avec un cycle saisonnier clair dans la production marine primaire. Ceci implique que, lors de la formation des aérosols dans cette région (par les mécanismes présentés dans le Chapitre 1), les aérosols de matière organique et les sulfates ont une faible contribution à la charge en aérosols au-dessus de ces zones (les aérosols marins restent dominants).

Alors que les nuages au-dessus des océans Pacifique et Atlantique ont été largement étudiés, les nuages au-dessus de l'océan Indien ne sont pas aussi bien caractérisés. Jusqu'à présent, nos connaissances sur les nuages de l'océan Indien proviennent essentiellement d'observations par bateaux (par exemple, WARREN et al. 1988) ou par satellites. S. BONY, COLLINS et al. 2000 ont examiné la présence de nuages au-dessus de l'océan Indien en utilisant plusieurs sources de données satellitaires. Les types prédominants de nuages diffèrent dans les régions

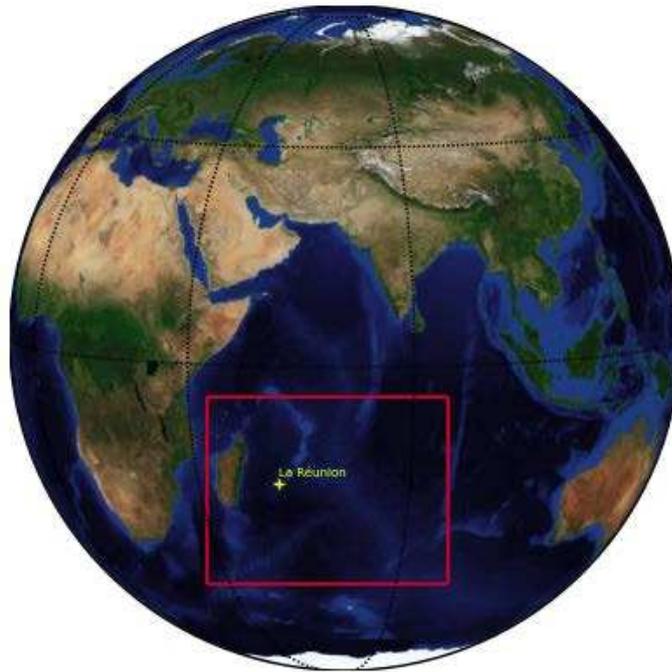


FIGURE 3.3 – Carte du monde. Encadré rouge : zone d'étude.

Nord et Sud de l'océan Indien ; le Sud de l'océan Indien est principalement couvert, à grande échelle, de nuages bas stratiformes tels que les stratocumulus. L'occurrence maximale des nuages bas se produit, notamment, aux latitudes subtropicales dans le Sud de l'océan Indien. Leur étude montre une fréquence d'occurrence dans notre zone d'étude de 15% à 70%. Cela a été corroboré par l'étude de SÈZE et PAWLOWSKA 2001 qui analyse la couverture nuageuse de la région avec les données METEOSAT-5 pour la période 1984-1994. Dans le Sud de l'océan Indien, les nuages bas stratiformes sont les plus fréquemment observés avec une fréquence d'occurrence pouvant atteindre 80%.

Le Sud de l'océan Indien (Fig.3.3) est une zone trop peu étudiée, comparé aux autres océans ou aux continents de l'hémisphère Nord. Elle est pourtant essentielle selon nous dans l'étude du climat en tant que représentative des composantes naturelles, en termes d'aérosols marins. C'est pourquoi nous avons choisi de nous y consacrer. L'île de la Réunion, avec son équipement instrumental et sa position géographique, constitue un emplacement stratégique.

3.1.3 Emplacement stratégique de l'île de La Réunion

L'île de La Réunion, dans le Sud-Ouest de l'océan Indien (Fig. 3.3), se situe donc dans un environnement de fond, propre en termes d'aérosols (KOREN et al. 2014), dans des conditions d'alizés. Pendant la saison des pluies (de décembre à avril), la masse continentale sous le vent la plus proche est l'Australie à l'Est. Pendant la saison sèche, des masses d'air peuvent provenir d'Afrique et de Madagascar, à l'Ouest de l'île, de sorte que la composition en aérosols dans la couche limite marine peut être mélangée avec des aérosols continentaux.

L'île de La Réunion constitue un site unique dans l'hémisphère Sud pour effectuer des mesures *in-situ* d'aérosols dans une région pristine. Dans la section précédente, nous avons montré la présence de stations AERONET dans les océans. L'île de La Réunion possède deux de ces stations : l'une à Saint-Denis, au Nord de l'île, et une seconde à l'Observatoire du Maïdo, situé à 2,2 km d'altitude, à l'Ouest de l'île (localisations visibles sur la Figure 3.4).



FIGURE 3.4 – Carte de l'île de La Réunion. Les marqueurs rouges indiquent la localisation de Saint-Denis et de l'Observatoire du Maïdo. Source : Google Earth.

La première station AERONET de l'île de La Réunion, à Saint Denis, assure des mesures depuis le niveau de la mer, dans un contexte urbain côtier (avec une grande influence maritime). Cet environnement conduit à l'apparition fréquente de nuages insulaires se formant en début d'après-midi, surtout en été. Cette

station, qui accueille divers instruments, se caractérise par un climat tropical (étés chauds et humides, hivers secs et chauds).

L'Observatoire du Maïdo est l'un des trois sites de l'OPAR (Observatoire de Physique de l'Atmosphère de La Réunion), géré par l'OSU-Réunion (Observatoire des Sciences de l'Univers), situé en altitude sur le massif du Maïdo (Latitude : 21°S ; Longitude : 55°E). Il dispose d'un parc instrumental (lidars, spectromètres, radiomètres, radiosondages, analyseurs *in-situ*, etc.) dont le fonctionnement est prévu sur le long terme et permet une surveillance constante de l'atmosphère. Dans le cadre de collaborations nationales et internationales, l'infrastructure de l'Observatoire est aussi utilisée pour des campagnes dédiées d'études de processus atmosphériques divers et variés. L'Observatoire dispose alors de nombreux instruments de pointe permettant de mieux connaître la composition de l'atmosphère, depuis le sol jusqu'aux hautes altitudes. Ceci répond à un besoin de surveillance du changement climatique. L'Observatoire bénéficie d'une situation unique dans l'hémisphère Sud tropical. Le jour, il (Fig. 3.4) réside dans la couche limite planétaire (Planetary Boundary Layer – PBL) tandis que la nuit, il est fréquemment dans ou près de la troposphère libre (LESOUËF et al. 2013, BARAY et al. 2013, GUILPART et al. 2017, DUFLLOT et al. 2019). Son altitude permet de s'affranchir de la pollution d'origine anthropique, ce qui améliore la qualité des mesures pour l'étude de la composition naturelle de l'atmosphère.

En résumé, ces divers instruments déployés en continu et la localisation particulière de l'île fait de La Réunion un lieu stratégique de mesures *in-situ* dans l'hémisphère Sud, particulièrement pour l'étude des aérosols naturels d'origine marine et des nuages bas, en s'affranchissant de la contribution des aérosols anthropiques.

3.2 Méthodologie et motivation de la thèse

Les interactions entre aérosols, vapeur d'eau et nuages sont encore difficiles à comprendre totalement, notamment en raison de la variété des aérosols qui sont souvent impliqués, variété qui est accentuée par les mélanges d'aérosols naturels et anthropiques. Le contexte de notre région d'étude présente alors un grand intérêt pour l'étude de ces interactions, en partie parce que les aérosols

dominants sont naturels (d'origine marine) et parce que l'occurrence des nuages dans le Sud de l'océan Indien est importante, particulièrement pour les nuages bas de type stratocumulus.

Le Sud de l'océan Indien, et particulièrement l'île de La Réunion, a justement fait l'objet, au printemps boréal 2019, d'une campagne de mesures (campagne AEROMARINE) de plusieurs mois visant à collecter des données sur les aérosols marins, leurs propriétés optiques et leur distribution verticale au large des côtes de l'île de La Réunion. Un radiomètre micro-ondes était également déployé à Saint Denis afin de caractériser l'état thermodynamique de l'atmosphère au cours de la campagne. L'objectif fut donc d'analyser les données acquises durant cette campagne, en particulier les données d'AOD et de vapeur d'eau, afin de mieux comprendre les échanges océan-atmosphère dans ce contexte océanique pristine et d'apporter ainsi une contribution à la compréhension du rôle de la composante naturelle de ces échanges dans le système climatique.

Le prochain chapitre présente les résultats obtenus grâce aux mesures effectuées lors d'AEROMARINE. **Une distribution en taille et une caractérisation de la distribution verticale des aérosols naturels, principalement marins, sont alors présentées (voir Chapitre 4).** Ces données *in-situ* seront utiles pour l'élaboration de deux nouveaux modèles qui pourraient aider à mieux comprendre le système aérosols-vapeur d'eau-nuages.

Le premier (Chapitre 5) est **une modélisation simplifiée qui permet de décrire, à partir de trois équations différentielles non-linéaires (trois degrés de liberté) les propriétés macroscopiques des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages.** Les données de la campagne AEROMARINE serviront également à alimenter un second modèle destiné à l'étude des champs de nuages à méso-échelle (Chapitre 6). **Ce second modèle présente la particularité d'utiliser une approche originale en physique de l'atmosphère de la modélisation 2D prenant en compte diverses interactions entre une parcelle d'air, ses voisines et l'océan. Nous formons ainsi l'espoir scientifique qu'ils auront au moins une valeur heuristique, complémentaire de ce qui se fait actuellement**

Ces modèles n'ont pas la prétention de remplacer ou de surpasser les modèles complets prenant en compte la plupart des aspects des interactions aérosols-

nuages, mais seulement d'aider à la compréhension de ces interactions, sans considérer toute la complexité du système, de manière simple et peu coûteuse (en temps de calculs).

Deuxième partie

Mesures *in-situ* dans le Sud de l'océan Indien

Campagne de mesures AEROMARINE (2019)

Sommaire du présent chapitre

| | |
|---|-----------|
| 4.1 Contexte & objectifs | 51 |
| 4.2 Résultats principaux | 54 |
| 4.2.1 Propriétés optiques mesurées en vol | 54 |
| 4.2.2 Mesures en vol de concentrations d'aérosols | 56 |
| 4.2.3 Origines des masses d'air (modèle FLEXPART) . . . | 58 |
| 4.3 Conclusion | 59 |
| 4.4 MASCAUT et al. (2022) | 61 |

4.1 Contexte & objectifs

Le projet AEROMARINE s'est déroulé au cours de l'été austral 2019 (de mi-décembre 2018 à mi-mars 2019), et visait à recueillir des données sur les émissions d'aérosols marins, leurs propriétés optiques, leur transport et leur distribution au large des côtes de l'île de La Réunion. Cette région (présentée de façon plus détaillée dans le Chapitre 3) a l'avantage d'être épargnée par la

pollution d'origine anthropique : c'est une région océanique, éloignée des continents et donc des activités humaines. Les mesures effectuées dans ce contexte pristin permettent ainsi d'étudier des aérosols naturels et de quantifier une concentration de fond en aérosols marins. Pour cette campagne, des instruments ont été installés à bord d'un avion ULM (Ultra Léger Motorisé) afin de mesurer la concentration, la distribution en taille et l'AOD au-dessus de l'océan Indien.

En outre, afin de caractériser les conditions thermodynamiques de l'atmosphère et les échanges entre la couche limite marine et la troposphère libre, un radiomètre micro-ondes RPG-HATPRO G5 a été déployé à Saint Denis sur le campus de l'Université de La Réunion.

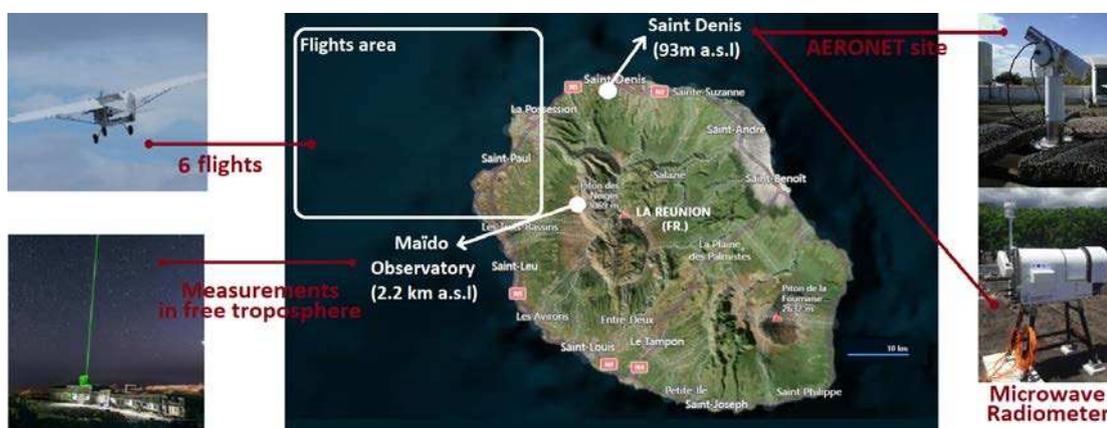


FIGURE 4.1 – Vue d'ensemble de la localisation des différentes mesures de la campagne de terrain AEROMARINE (île de La Réunion, océan Indien).

La Figure 4.1 présente une vue d'ensemble de la campagne AEROMARINE, en particulier la localisation des différentes mesures *in-situ* utilisées dans notre étude. L'emplacement unique de l'île de La Réunion et ses instruments géographiquement proches sont alors bien adaptés pour caractériser les aérosols dans un contexte océanique (cf Chapitre 3).

Les différents instruments de l'Observatoire du Maïdo et le photomètre AERONET (Saint-Denis, campus Univ. Réunion) ont également permis une comparaison avec les mesures en vol.

Des modèles (FLEXPART et AROME) et les réanalyses du modèle CAMS¹

1. Copernicus Atmosphere Monitoring Service

sont venus compléter ces mesures *in-situ*. Les instruments (à bord de l'ULM et au sol) ainsi que les modèles utilisés sont précisément décrits dans l'article présenté Section 4.4.

La campagne de mesures AEROMARINE s'articule alors autour de six vols instrumentés pour lesquels trois compteurs de particules (POPS², Magic et TSI) et un photomètre (PLASMA³), spécialement conçus pour être fixés sur des plateformes mobiles, ont été installés.

Le compteur de particules POPS fournit la distribution en nombre des aérosols dans la gamme de taille 132 nm – 3 μ m (en rouge sur le schéma 4.2), ce qui correspond aux modes d'accumulation et grossier. Deux CPCs (Condensable Particle Counters) sont utilisés simultanément pour mesurer la concentration totale des particules plus grandes que 2 nm (CPC-Magic200, en bleu sur la Figure 4.2) et les particules plus grandes que 10 nm (CPC TSI model 3007, en vert). La différence de concentration entre ces deux CPCs donne la concentration des particules dans la gamme de taille 2 – 10 nm, qui est représentative d'une formation récente de particules nanométriques, c'est-à-dire par nucléation.

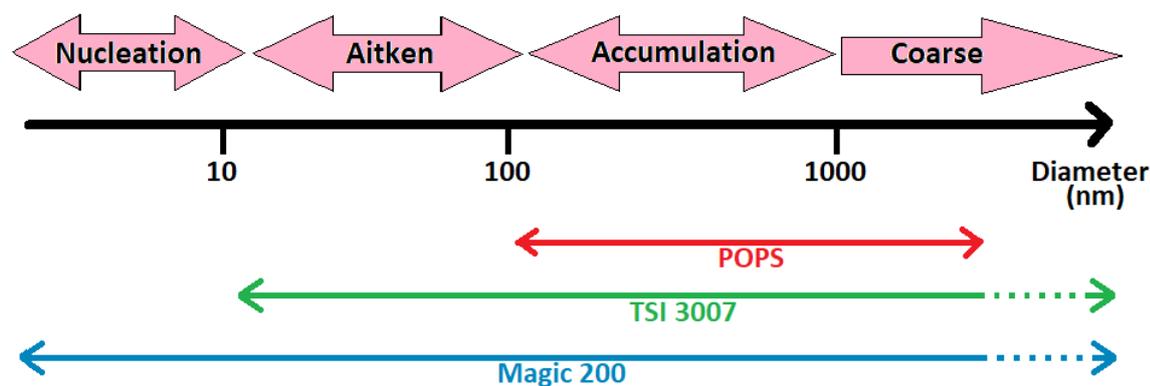


FIGURE 4.2 – Gammes de tailles considérées par les trois compteurs de particules (POPS, Magic et TSI) installés sur l'avion pour la campagne AEROMARINE.

En outre, en synergie avec POPS, les concentrations du CPC TSI permettent de mesurer des concentrations en aérosols dans la gamme de taille 10-150 nm (mode d'Aitken), qui est indicative d'aérosols marins primaires (SCHWIER et al. 2017).

2. Portable Optical Particle Counter

3. Photomètre Léger Aéroporté pour la Surveillance des Masses d'Air

4.2 Résultats principaux

Les vols ULM ont eu lieu à l’Ouest des côtes de l’île de La Réunion (voir les trajectoires des différents vols sur la figure 4 de l’article), excepté pour l’un d’entre eux, le 22 mars 2019, qui sert de cas spécial pour l’analyse (Section 3.3.4 de l’article).

4.2.1 Propriétés optiques mesurées en vol

Le photomètre PLASMA nous a fourni les profils verticaux de l’AOD. Le comportement d’ensemble des mesures au cours des six vols montre des AODs toujours inférieurs à 0,1, quelles que soient l’altitude et la longueur d’onde (voir un exemple de profil sur la figure 4.3). Pour rappel, une valeur de 0,1 est représentative d’une atmosphère pristine, alors qu’une valeur comprise entre 0,5 et 1 correspondrait à une région continentale et urbaine (comme Lille par exemple).

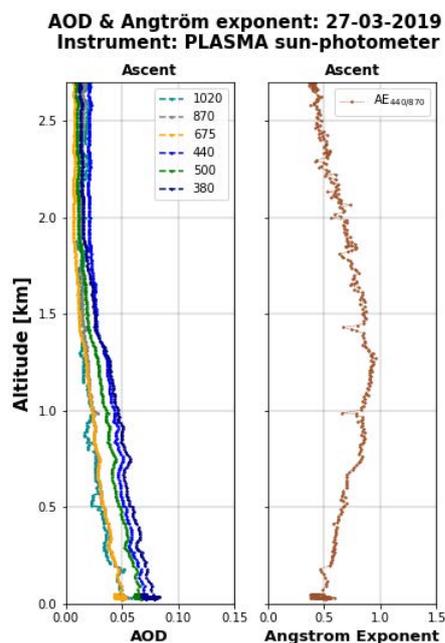


FIGURE 4.3 – Profil vertical de l’AOD et de l’exposant d’Angström (α) à partir des mesures PLASMA pour le vol du 27 Mars 2019.

L'exposant d'Angström α , qui est un bon indicateur qualitatif de la taille des aérosols échantillonnés (comme l'indique la figure 4.4 qui représente le rapport d'AOD à deux longueurs d'onde en fonction du rapport de ces longueurs d'onde), affiche toujours des valeurs inférieures à 1,5, indépendamment de l'altitude (voir un exemple de profil sur la Figure 4.3). D'après les mesures au cours des six vols, le comportement de l'exposant d'Angström indiquerait que les plus grosses particules sont situées entre 0,5 et 1,5 km au-dessus du niveau de la mer. Cela suggère clairement la présence d'aérosols marins ou encore d'aérosols de poussières désertiques (SCHUSTER et al. 2006). Or pour cette étude, nous avons utilisé les réanalyses du modèle CAMS (voir Section 3.1 de l'article) afin de déterminer les types d'aérosols dominants dans la région. Les résultats indiquent que la contribution des aérosols de poussières désertiques était négligeable dans la région, aux dates et altitudes de vol. Nous pouvons donc raisonnablement en conclure que les aérosols mesurés au cours des vols ULM sont principalement d'origine océanique.

La relation $AOD_1/AOD_2 = (\lambda_1/\lambda_2)^{-\alpha}$ est du type $f(x) = 1/x^\alpha$

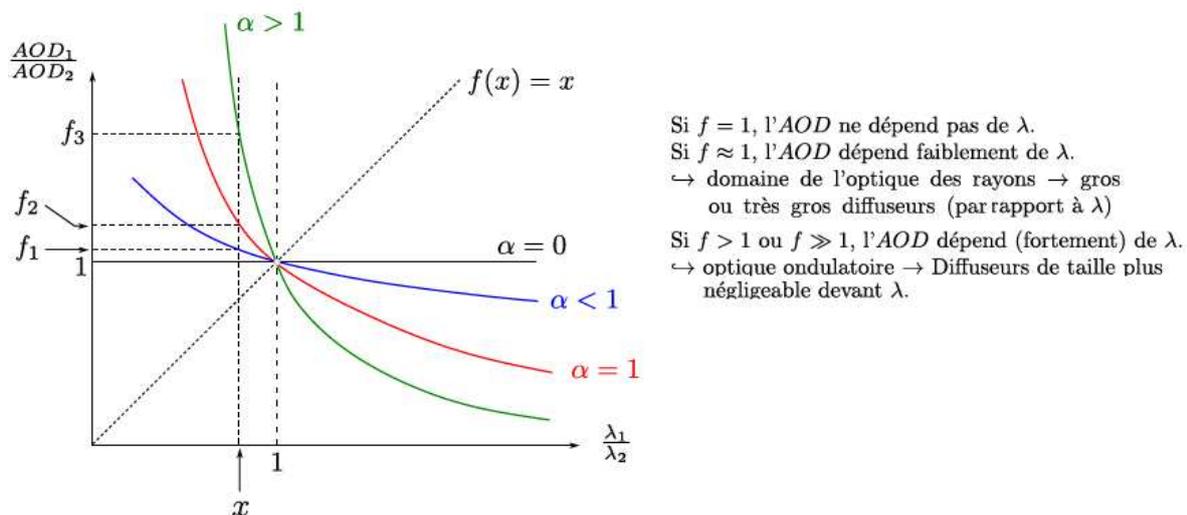


FIGURE 4.4 – Courbe du rapport d'AOD à deux longueurs d'onde en fonction du rapport de ces longueurs d'onde représentant le lien entre α et la taille caractéristique des diffuseurs.

Ces résultats s'accordent avec ceux de publications récentes portant sur les mesures de masses d'air marines. Par exemple, HOROWITZ et al. 2017 propose

une moyenne journalière sur plusieurs années de $0,06 \pm 0,04$ (pour l'AOD) et de $0,70 \pm 0,36$ (pour α).

Enfin, plus l'altitude est importante, moins l'AOD varie ; il devient constant au-delà de 2 km. Cela signifie que la plupart des aérosols qui contribuent à l'AOD (*i.e.* les plus gros aérosols) sont situés en dessous de 2 km, ce qui est en accord avec des travaux précédents (par exemple, LESOUËF et al. 2013, MALLET et al. 2018 et DUFLLOT et al. 2019).

4.2.2 Mesures en vol de concentrations d'aérosols

La Figure 4.5.A présente un exemple de profil de concentrations mesurées par Magic (taille des particules supérieure à 2,5 nm), TSI (taille supérieure à 10 nm) et POPS (taille des particules entre 132 et 3 μm). Les profils de concentrations POPS (en rouge sur la Figure 4.5) montrent que les particules échantillonnées (dans les modes d'accumulation et grossier) ont une valeur maximale de concentrations entre 0,5 et 1,5 km. Cela confirme que les particules les plus grosses se trouvent dans cette couche, en accord avec les conclusions déduites des mesures optiques.

La comparaison des concentrations mesurées par POPS aux mesures de Magic et du TSI permet d'évaluer davantage la distribution verticale des aérosols en fonction de leur taille. Les différences dans les concentrations du TSI et de Magic (en vert sur la Fig. 4.5.B) sont minimales pour une altitude supérieure à 1,5 km. En particulier, leurs valeurs sont presque identiques au-dessus de cette altitude limite. En dessous ($z \leq 1,5$ km), les concentrations données par Magic sont environ deux fois supérieures à celles du TSI. Ceci signifie que les petites particules (mode de nucléation) sont deux fois plus importantes (en concentration) que les particules plus grosses (mode d'Aitken) en dessous de 1,5 km, alors qu'au-dessus il y a peu de petites particules (rapport Magic-TSI proche de 1). De telles valeurs de concentrations dans le mode nucléation (entre 10^3 et 10^4 cm^{-3}) ont également été mesurées en Méditerranée (ELEFTHERIADIS et al. 2006).

En moyenne sur les six vols, les concentrations données par Magic sont deux à trois fois plus élevées que les concentrations mesurées par TSI. Les

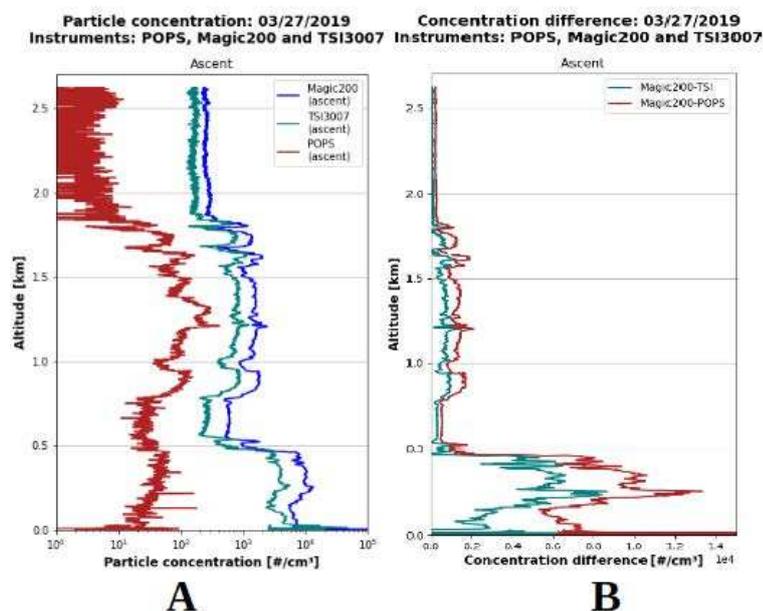


FIGURE 4.5 – Profil vertical de concentrations (A) et différences de concentrations (B) à partir des mesures POPS, Magic et TSI pour le vol du 27 mars 2019.

concentrations les plus élevées sont obtenues dans la couche limite marine en dessous de 0,5 km d'altitude.

D'autres informations importantes se déduisent de la comparaison des profils POPS et Magic (en rouge sur la Fig. 4.5.B). En effet, les différences de profils de concentrations « Magic - POPS » présentent des valeurs relativement faibles au-dessus de 0,5 km. Des différences plus significatives sont obtenues en dessous de cette altitude.

En résumé, les mesures indiquent que la couche limite, pour une altitude inférieure à 0,5 km, est beaucoup plus riche en aérosols dans les modes de nucléation ou d'Aïtken (taille inférieure à 132 nm). Au-dessus de la couche limite, et jusqu'à 1,5 km environ (selon le vol), ces modes ont une concentration plus faible et les particules plus grosses (taille supérieure à 132 nm - mode d'accumulation) sont dominantes.

4.2.3 Origines des masses d'air (modèle FLEXPART)

Pour évaluer davantage l'origine des masses d'air identifiées dans la section précédente, nous avons utilisé les rétrotrajectoires à méso-échelle du modèle FLEXPART (couplé avec les sorties météorologiques du modèle Meso-NH⁴). Il s'agit en effet de distinguer les masses d'air influencées par les émissions terrestres locales de celles d'origine marine ou représentatives du contexte régional.

Lorsque nous libérons une masse d'air à une altitude donnée z , FLEXPART est capable de retracer ses trajectoires les plus probables, sur une grille géographique. À partir de cela, il devient possible d'identifier (et de compter) les pixels océaniques, c'est-à-dire les points de grille de trajectoire situés au-dessus de l'océan ; de même pour les pixels insulaires qui sont des points de grille de trajectoire situés au-dessus de l'île de la Réunion. En d'autres termes, nous pouvons quantifier dans quelle mesure l'océan peut contribuer ou avoir un impact sur la teneur en aérosols de la masse d'air considérée.

Outre l'origine géographique, on peut déterminer la couche troposphérique d'où provient une masse d'air. Les résultats des sections précédentes nous ont aidés à identifier trois couches : (L1) en dessous de 0,5 km, (L2) entre 0,5 et 1,5 km, et (L3) au-dessus de 1,5 km.

Les résultats obtenus par le modèle FLEXPART sont résumés dans les tableaux II et III de l'annexe de l'article (Section 4.4). La Figure 4.6 montre un exemple de rétrotrajectoires obtenues pour le vol du 15 mars 2019.

D'un point de vue général, nous notons que les masses d'air d'origine océanique dominante sont restées, en grande partie, dans la couche d'où elles provenaient. À l'exception de quelques rares exceptions, la couche qui présente les pourcentages les plus élevés inclut l'altitude de libération. Cependant, les échanges de masses d'air entre les couches ne sont pas négligeables, même s'ils ne dominent pas. Cela signifie que la teneur en aérosols dans la basse troposphère est également affectée par le mélange entre les couches contiguës.

Ces conclusions sur la distribution verticale des aérosols sont résumées sur la Figure 4.7. Nous observons, d'une part, une prédominance des aérosols océaniques qui s'explique par l'interaction entre le champ de vent et le terrain

4. Présenté dans l'article Section 4.4

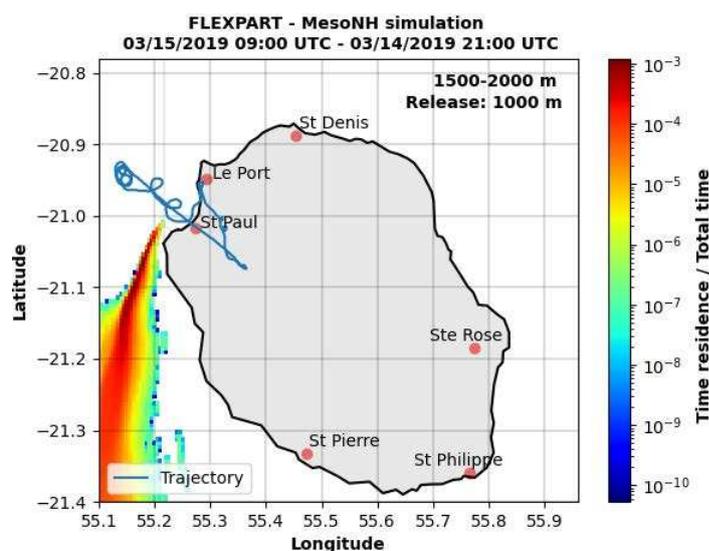


FIGURE 4.6 – Exemple de rétrotrajectoires les plus probables issues d’une simulation FLEXPART (vol du 15 mars 2019).

complexe de l’île de la Réunion. D’autre part, nous avons déduit des mesures en vol une stratification verticale qui se décompose en trois couches atmosphériques : (i) la couche la plus haute, dans laquelle les concentrations mesurées représentent une concentration de fond d’aérosols naturels (marins); (ii) la couche limite marine ($z \leq 0,5$ km), où nous observons que les aérosols mesurés sont issus de l’environnement direct (insulaire ou océanique selon le vent); et (iii) la couche intermédiaire qui est une couche de mélange dans laquelle la majorité des aérosols proviennent des couches contigües. La Figure 4.7 quantifie également les échanges entre ces différentes couches atmosphériques.

4.3 Conclusion

Les six vols instrumentés ont permis d’échantillonner les aérosols de la surface jusqu’à une altitude d’environ 4 km, grâce à une synergie instrumentale. Les propriétés optiques des aérosols ont été mesurées par le photomètre PLASMA et trois compteurs de particules (POPS, TSI et Magic) ont mesuré les concentrations d’aérosols pour différentes gammes de taille (modes de nucléation, d’accumulation, grossier et d’Aitken). L’analyse des concentrations indique que presque

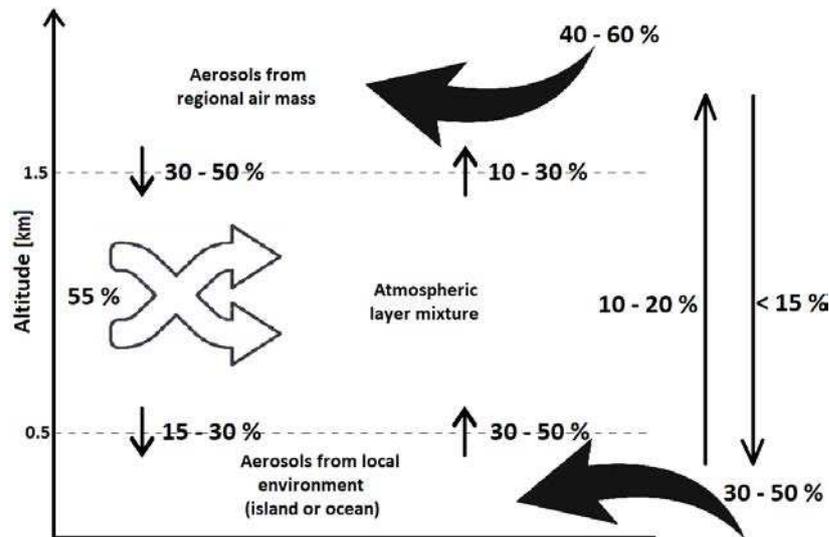


FIGURE 4.7 – Diagramme synthétique décrivant les échanges d'aérosols entre les couches atmosphériques L1 ($z \leq 0,5$ km), L2 (0,5 – 1,5 km) et L3 ($z \geq 1,5$ km)

toutes les particules appartiennent au mode d'accumulation, centrées autour d'une taille moyenne de particules de 132 nm. Les propriétés optiques obtenues montrent des AODs inférieurs à 0,1, ce qui est typique d'une région pristine. Les différentes mesures (AOD, exposants d'Angström et concentrations) indiquent également que les aérosols sont principalement localisés en dessous de 2 km d'altitude.

Les simulations FLEXPART ont permis de déterminer l'origine la plus probable des aérosols mesurés pendant les vols. En conséquence, les aérosols suivent la distribution verticale suivante :

- Au-dessus d'une altitude de 1,5 km, les aérosols échantillonnés ne sont pas sensiblement influencés par la surface (la couche L1 a une contribution relativement faible). Ceci permet de quantifier la concentration de fond en aérosols. Pour tous les vols, nous avons estimé que les concentrations en nombre sont, en moyenne, de 300 cm^{-3} (Magic), 230 cm^{-3} (TSI) et 15 cm^{-3} (POPS). De plus, les AODs (à 550 nm) et α moyens sont respectivement de 0,01 et 0,75.
- En dessous de 0,5 km (dans la couche limite marine), les aérosols proviennent essentiellement de la surface. L'origine peut être océanique ou

insulaire.

- La couche intermédiaire, c'est-à-dire entre 0,5 et 1,5 km, est une couche de mélange : les aérosols sont mélangés à ceux provenant des couches atmosphériques inférieures et/ou supérieures.

4.4 MASCAUT et al. (2022)

Les résultats présentés dans ce chapitre ne concernent que les vols instrumentés de la campagne AEROMARINE. Ces données ont été comparées avec les mesures au sol du photomètre AERONET et du parc instrumental de l'Observatoire du Maïdo. L'impact du confinement 2020, dû à la pandémie de Covid-19, sur les mesures du photomètre AERONET de Saint Denis a également été évalué. De plus, une analyse de l'état thermodynamique de l'atmosphère au cours de la campagne a été réalisée grâce aux mesures d'un radiomètre micro-ondes.

Cette étude, qui s'appuie sur la campagne de mesures AEROMARINE, a fait l'objet d'un article dans le journal *Atmospheric Environment* en 2022. Les contributions des différents co-auteurs sont les suivantes : analyse de données, synthèse des résultats, écriture du manuscrit (F. Mascout) et relecture principale (O. Pujol et J. Brioude) ; provenance des données AOD (L. Blarel, T. Podvin et P. Goloub) ; provenance des données des compteurs de particules (K. Sellegri, T. Thornberry et B. Verreyken), PI station AERONET et Observatoire du Maïdo (V. Dufлот et J.M. Metzger) et simulations Méso-NH (P. Tulet et R. Peroni).

Les résultats obtenus, notamment les mesures du radiomètre et les concentrations en aérosols, vont nous permettre, par la suite, d'alimenter les deux modèles présentés dans les Chapitre 5 (modèle de type proie-prédateur) et Chapitre 6 (Indian Ocean Cloud Ising Model – IOCIM).



Contents lists available at ScienceDirect

Atmospheric Environment

journal homepage: www.elsevier.com/locate/atmosenv

Aerosol characterization in an oceanic context around Reunion Island (AEROMARINE field campaign)

Faustine Mascout^a, Olivier Pujol^a, Bert Verreyken^{b,c,d}, Raphaël Peroni^a, Jean Marc Metzger^e, Luc Blarel^a, Thierry Podvin^a, Philippe Goloub^a, Karine Sellegri^f, Troy Thornberry^{g,h}, Valentin Dufлот^b, Pierre Tuletⁱ, Jérôme Brioude^{b,*}

^a Université de Lille, Département de Physique, Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA), 59655, Villeneuve d'Ascq, France

^b Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy), UMR 8105, Météo France/CNRS/Université de La Réunion, St Denis de La Réunion, France

^c Royal Belgian Institute for Space Aeronomy, 1180, Brussels, Belgium

^d Department of Chemistry, Ghent University, 9000, Ghent, Belgium

^e Observatoire des Sciences de l'Univers de La Réunion, UMS3365, 97744, St Denis, France

^f Laboratoire de Météorologie Physique, Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal – CNRS, 63177, Aubière, France

^g NOAA Chemical Sciences Laboratory (CSL), Boulder, USA

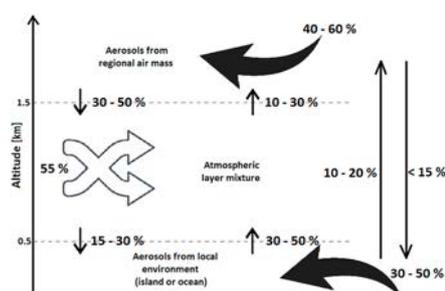
^h CIRES, University of Colorado Boulder, Boulder, USA

ⁱ Laboratoire d'Aérodynamique, Université de Toulouse, UT3, CNRS, IRD, 31400, Toulouse, France

HIGHLIGHTS

- Optical properties, vertical distribution and transport pathways, from the marine boundary layer to the free troposphere, of marine aerosols in a pristine environment are examined.
- Aerosol size does not exceed the accumulation mode.
- A sketch is proposed as a characterization of marine aerosols distribution. Oceanic and insular influences in the aerosol content are separated.
- It is argued that the AERONET station at St Denis (Reunion Island) is well representative of marine conditions.
- With data from a microwave radiometer, water vapour-aerosol-cloud models in a pristine ocean can be feeded.

GRAPHICAL ABSTRACT



ARTICLE INFO

Keywords:

Sea salt aerosols
Pristine conditions
Southern Indian Ocean
AEROMARINE field Campaign

ABSTRACT

This article presents the results of the AEROMARINE field campaign which took place between February and April 2019 off the coast of Reunion Island in the South West Indian Ocean basin. The Southern Indian Ocean is of major interest for the study of marine aerosols, their distribution and variability. Six instrumented light plane flights and a ground-based microwave radiometer were used during the field campaign. These measurements were compared with the long-term measurements of the AERONET sun-photometer (based in St Denis, Reunion Island) and various instruments of the high altitude Maïdo Observatory (2.2 km above sea level, Reunion Island). These results were also analyzed using different model outputs: (i) the AROME mesoscale weather forecast model

* Corresponding author.

E-mail address: jerome.brioude@univ-reunion.fr (J. Brioude).

<https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118770>

Received 29 July 2021; Accepted 26 September 2021

Available online 3 October 2021

1352-2310/© 2021 Published by Elsevier Ltd.

to work on the thermodynamics of the boundary layer, (ii) the FLEXPART-AROME Lagrangian particle dispersion model to assess the geographical and vertical origin of air masses, and (iii) the chemical transport model CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) to work on the aerosol chemical composition of air masses. This allowed to highlight two points: (1) the atmospheric layer above 1.5 km is mainly composed of aerosols from the regional background; (2) the local environment (ocean or island) has little impact on the measured concentrations. Marine aerosols emitted locally are mostly measured below 0.5 km. The daytime marine aerosol distributions in the free troposphere measured by the aircraft were compared to the night-time aerosol distributions measured at the high altitude Maïdo Observatory when the Observatory is located in the free troposphere. The results indicate that this high altitude site of measurements is representative of the marine aerosol concentrations in the free troposphere. We also found that the CAMS reanalyses overestimated the aerosol optical depth in this region. Finally, our study strongly suggests that the AERONET station in St Denis (Reunion Island) can be considered as a representative marine station under the Tropics.

Acronyms

| | |
|----------------|---|
| AERONET | Aerosol RObotic NETwork |
| AODs | Aerosol Optical Depths |
| CAMS | Copernicus Atmosphere Monitoring Service. |
| CPC | Condensable Particle Counter |
| MAP-IO | Marion Dufresne Atmospheric Program - Indian Ocean |
| MBL | Marine Boundary Layer |
| MWRP | MicroWave Radiometer Profiler |
| OM | Organic Matter |
| PLASMA | Photomètre LégerAéroporté pour la Surveillance des Masses d'Air |
| POPS | Portable Optical Particle Counter |
| SSA | Sea Salt Aerosols |
| SST | Sea Surface Temperature |
| TAF | Terres Australes Françaises |

1. Introduction

Because of their direct and indirect radiative forcings, atmospheric aerosols have a major impact on the climate. These forcings are still poorly understood and lead to uncertainties that have persisted in models since the 1990s (Myhre et al., 2013). One of the largest uncertainties of the aerosol-cloud system is the background concentration of natural aerosols, especially over clean marine regions (Andreae and Rosenfeld, 2008). Oceans cover about 70% of the Earth's surface and are an important reservoir of marine aerosols (mainly sea salt and organic aerosols). Sea Salt Aerosols (SSA) are one of the largest contributors to global aerosol loading and, therefore, they play an important role in global climate. Also, they were proposed to be a major component of primary marine aerosol mass over the regions where wind speeds are high and/or other aerosol sources are weak (Gantt and Meskhidze, 2013; O'Dowd and de Leeuw, 2007). Luo et al. (2014) showed that the AOD at 532 nm of SSA in the Marine Boundary Layer (MBL) is governed by different physical factors: the surface wind speed, the Sea Surface Temperature (SST), the MBL height, the lower troposphere stability, and the relative humidity (impact on size and optical properties of sea salt particles). However, there is a notable lack of data, in particular over the oceans and in the Southern Hemisphere, describing the characteristics of aerosols such as optical properties, size distribution, temporal and spatial variabilities (Ramachandran, 2004). Pant et al. (2009) carried out measurements of the total number concentration and the size distribution of aerosols over the Indian Ocean in 2004. They observed that the aerosol concentration-wind speed correlation coefficient depends on the latitude and has a maximum value where winds are the strongest.

The southwestern Indian Ocean has been identified as a region with frequent pristine conditions (where land and human activities have little impact) that can reasonably be considered to be close to the

preindustrial conditions. Few data have been collected in this region (Pant et al., 2009). However, it is a crucial reference point to quantify the background concentration of natural aerosols and the contribution of natural emissions to the changing climate. In pristine regions, SSA are dominant and concentrations are relatively low (e.g. Mallet et al., 2018).

Reunion Island in the southwestern Indian Ocean can be considered as a background aerosol pristine environment under trade wind conditions (Koren et al., 2014), mostly during the wet season from December to April. For details about wind circulation in the Southern Indian Ocean, including Reunion Island, see the statistical study by Mallet et al. (2018) and refs therein. Reunion Island is also a unique site in the Southern Hemisphere for making aerosol observations. Indeed, being in an oceanic environment and far from continents, the Island is in a strategic location for carrying out measurements in a clean region, and also for the validation of spatial measurements. In addition, the Maïdo Observatory (located at 2.2 km above sea level (a.s.l.)¹) allows: (i) to take measurements directly in the free troposphere at night (Guilpart et al., 2017; Foucart et al., 2018) and (ii) to perform long-term *in-situ* observations including detailed profiles of wind, temperature and water, as well as concentration, size and chemical composition of aerosols collected by ground instruments (Baray et al., 2013).

The AEROMARINE project, which took place between February and April 2019, aimed at collecting data on marine aerosol emissions, their optical properties, their transport and distribution off the coast of Reunion Island. For this, ground-based instruments and instruments on board ultra light plane were used to measure concentration, size distribution and optical thickness of marine aerosols over the Indian Ocean, on the western side of Reunion Island. In addition, in order to characterize the thermodynamics of the MBL and the exchanges between the MBL and the free troposphere, a MicroWave Radiometer Profiler (MWRP) was set up in St Denis (in the north of the Island). Aerosol data have been complemented by the measurements of the Aerosol RObotic NETwork (AERONET) sun-photometer (St Denis) and the various instruments of the Maïdo Observatory. Models, such as FLEXPART-MesoNH or AROME as well as Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) reanalyses, allowed to compare and/or support *in-situ* measurements. The instruments (on board and on the ground) and the models used are briefly presented in the following section.

The overall objectives of the AEROMARINE project include:

- 1) To characterize marine aerosol optical properties and their vertical distribution. The instruments on board the light plane helped characterize the marine aerosol optical properties, number concentration, and size distribution within the MBL and the free troposphere. Those results were compared with aerosol measurements at the Maïdo Observatory. Furthermore, AOD-measurements were compared with those of the AERONET station at St Denis.
- 2) To examine the transport pathways of marine aerosols from the boundary layer to the free troposphere. Hence, it is important to estimate accurately the vertical distribution of the marine aerosols.

¹ In this paper, altitudes are given above sea level (a.s.l).

Indeed, the MBL dynamics affect marine emission mechanisms, vertical dilution, while shallow convection is important for exchange and mixing of aerosols with the free troposphere.

The aim of this paper is to present the results obtained (Section 3) during AEROMARINE that answer the above objectives. Section 4 is the conclusion of this work.

2. Instruments and models used

2.1. On-board instruments

2.1.1. PLASMA

Photomètre Léger Aéroporté pour la Surveillance des Masses d'Air (PLASMA) is a sun-tracking photometer developed by LOA and SNO PHOTONS (Karol et al., 2013). Compact (23 cm) and light (3 kg), it can be put on different mobile platforms (Popovici et al., 2018). Sun tracking is performed by means of elevation (0 – 88°) and azimuth (0 – 360°) rotations. Aerosol Optical Depths (AODs) at various wavelengths² (λ) are derived from extinction measurements of the solar radiation by molecular and aerosol scattering and absorption processes. The instrument provides AODs over a wide spectral range ($\lambda = 0.34 - 2.25 \mu\text{m}$) with an accuracy ΔAOD ranging from 0.005 to 0.01 according to λ . Aerosol size distribution is retrieved from the AOD spectral dependence (Karol et al., 2013). The Angström exponent α is determined from the law of Angström: $\text{AOD}_1/\text{AOD}_2 = (\lambda_1/\lambda_2)^{-\alpha}$ where AOD_i is the aerosol optical depth at the wavelength λ_i (Angström, 1961). This exponent describes how the AOD varies with λ and so provides information on the size distribution of the aerosols (Kusmierczyk-Michulec et al., 2002).

2.1.2. Particle counters

The Portable Optical Particle Counter (POPS) is a 900 g *in situ* instrument designed by US laboratories NOAA and CIRES that provides aerosol number size distribution (in the size range 132 nm – 3 μm) using single-particle light scattering (Gao et al., 2016). POPS is a prototype made by a 3D printer to reduce weight. It flew on board a light plane during the AEROMARINE campaign within the MBL and the free troposphere.

Two Condensable Particle Counters (CPCs) (accuracy: $\pm 20\%$) are used simultaneously to measure the total concentration of particles larger than 2 nm (CPC-MAGIC200) and particles larger than 10 nm (CPC TSI model 3007). The difference of concentration between the two CPCs gives the particle concentration in the size range 2 – 10 nm, which is indicative of the recent formation of nanometric particles, i.e. nucleation. The combination of two CPCs to investigate nucleation was proven to be adequate in past airborne studies (Crumevolle et al., 2010). Additionally, in synergy with the POPS, the CPC TSI 3007 concentration enables to measure the aerosol concentration in the 10–150 nm size range, which is indicative of grown nucleated particles, and fine marine primary aerosols (size range 50 – 100 nm) that dominate the primary marine aerosol size distribution (Schwier et al., 2017).

2.2. Ground-based instruments

2.2.1. AERONET stations

The AERONET collaboration provides globally distributed observations of spectral AOD, inversion products, and precipitable water in diverse aerosol regimes. Aerosol optical properties are measured at multiple wavelengths ranging from the ultraviolet to shortwave infrared. AOD data (accuracy: ± 0.02) are computed for three data quality levels: Level 1.0 (un-screened), Level 1.5 (cloud-screened), and Level 2.0 (cloud screened and quality-assured) (Holben et al., 1998). For

comparison with PLASMA measurements, only Level 2.0 data quality for AOD and Angström exponent ($\alpha_{440/870}$) are used. The 2020 data from the AERONET station (St Denis) is Level 1.5. The sun-photometer we used is located on the University campus, at St Denis located in the north of the Island.

2.2.2. Microwave radiometric profiler (MWRP)

The microwave profiler RPG-HATPRO G5 gives us measurements of the microwave radiation emitted by the troposphere which provides tropospheric vertical profiles (0 – 10 km) of absolute humidity and temperature, with a special focus on the MBL. It allows to monitor with a high temporal resolution (1 min) the thermodynamic state of the atmosphere and to investigate fruitfully a wide variety of weather phenomena related to water vapour (e.g. Louf et al., 2015). A zenith-looking infrared ceilometer provides, together with the temperature profile retrieved from the MWRP, an estimate of the cloud-base height. The MWRP is also equipped with *in situ* sensors for ground level measurement of temperature, water vapour and pressure (Louf et al., 2015). It was on the University campus between December 12th, 2018 and March 11th, 2019.

2.3. Models and reanalyses

2.3.1. AROME

AROME-Indian Ocean (Bousquet et al., 2020) is used in this study in order to obtain the horizontal wind fields at different altitudes, at the places and dates where the flights were performed. This model is an adaptation of Météo-France's operational model AROME (Seity et al., 2011) to the Indian Ocean. AROME-IO has a horizontal resolution of 2.5 km and is initialized and coupled to the lateral limits by Integrated Forecasting System (Inness et al., 2013) operational analyzes (ECMWF, <https://www.ecmwf.int>). It is also equipped with a 1D coupling with the ocean in order to better represent the ocean-atmosphere exchanges (Bielli et al., 2021).

2.3.2. Meso-NH

Meso-NH is a non-hydrostatic mesoscale model which was developed in partnership by the Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) and the Laboratoire d'Aérodynamique (LA) and whose equations are described by Lafore et al. (1998) and Lac et al. (2018). This multidimensional model (1D, 2D or 3D) integrates a system of anelastic equations which allows simulations of a wide range of meteorological phenomena from the sub-synoptic scale (a few hundred kilometers) to the microscopic scale (a few meters). In this study, the resolution used is 500 m. Meso-NH takes into account different physical aspects such as turbulence, radiation, surface processes, microphysics ... It is also coupled with gaseous, aqueous chemistry and aerosol modules which provide a privileged dynamic framework for any numerical study of atmospheric physico-chemistry.

2.3.3. FLEXPART

The FLEXPART Lagrangian Particle Dispersion Model is a comprehensive community tool for atmospheric transport modeling and analysis. It is a Lagrangian particle dispersion model that simulates the transport, diffusion, dry and wet deposition and radioactive decay of tracers released from point, line, surface or volume sources. FLEXPART can be used forward in time to simulate the dispersion of tracers from their sources, or backward in time to determine their potential source contributions (Stohl et al., 2015). In our study, FLEXPART was used to determine the back-trajectories of particles in order to know their origin. Lagrangian particle models calculate the trajectories of a large number of so-called particles (which do not necessarily represent real particles, but infinitely small patches of air) to describe the transport and diffusion of tracers in the atmosphere. FLEXPART's source code and a manual are freely available from the internet page <https://www.flexpart.eu/>. Recently, FLEXPART has been coupled to the Eulerian models AROME

² In this text, wavelengths are given with respect to the vacuum.

(Verreyken et al., 2019). In this paper, we also use a version of FLEX-PART that has been coupled to meteorological output from Meso-NH.

2.3.4. CAMS reanalyses

Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS, previously MACC, <https://atmosphere.copernicus.eu/>) is an atmospheric model that simulates the mixing ratios of various aerosols, AODs or thermodynamic parameters (for example humidity, wind, temperature ...) on a large scale and regional scale. The data assimilation system used for CAMS is based on the ECMWF' Integrated Forecast System (IFS). Satellite observations are implemented in this model and allow the study of the atmospheric composition (chemically reactive gases, aerosols, greenhouse gases) at global scale (Morcrette et al., 2009). CAMS allows in particular to differentiate various types of aerosols such as: (i) Sea Salt Aerosols (0.03–0.5 μm ; 0.5 – 5 μm and 5 – 20 μm) and Dust aerosols (0.03 – 0.55 μm ; 0.55 – 5 μm and 5 – 20 μm) divided into three size ranges, (ii) Black Carbon and Organic Matter divided into two modes (hydrophobic and hydrophilic) and (iii) Sulfate.

In our study, we use the mixing ratios of these different species (Mallet et al., 2018) as well as the AOD. Mixing ratios and aerosol concentrations are directly related, allowing comparison between *in-situ* measurements and CAMS data.

3. Results

3.1. From the global to local scales

Mallet et al. (2018) investigated statistically, over a 8-years period, the distribution and variability of marine aerosols in the southern Indian Ocean {10° S - 40° S; 50° E – 110° E}, by means of satellite data (POLDER and CALIOP), CAMS reanalyses, and AOD measurements from the AERONET sun-photometer located in St Denis (Reunion Island). They found that aerosols are mainly located below 2 km and they estimated that SSA represents 60%–80% of the total AOD, while sulfate and Organic Matter (OM) aerosols have low contributions.

For example, Fig. 1 shows the CAMS mixing ratios for March 22nd, 2019 at 850 hPa ($z \approx 1.5$ km). We observe, in agreement with Mallet et al. (2018), that SSA dominate the aerosol loading in the southwestern Indian Ocean region, while sulfates and OM (hydrophilic) appear in smaller amounts, and dust aerosols are negligible. The large-scale situation for this date is representative of the different days of the AEROMARINE field campaign.

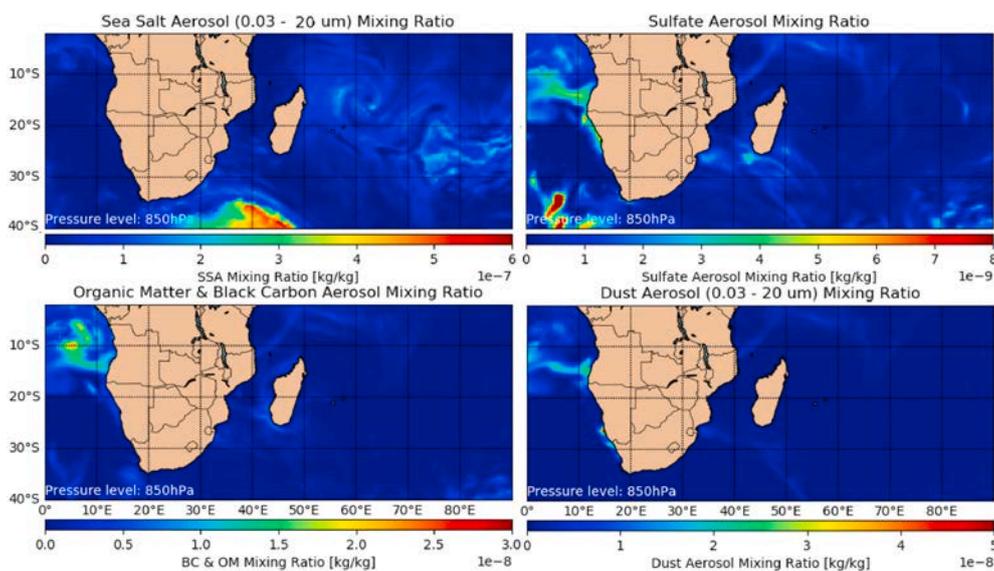


Fig. 1. CAMS reanalysis (0.25°/0.25°): mixing ratio of SSA 0.03–20 μm (top left), sulfate (top right), Organic Matter and Black Carbon (bottom left) and Dust Aerosols 0.03–20 μm (bottom right) at 850 hPa. Date: 03/22/2019 at 06:00:00 UTC.

Fig. 2 shows the CAMS mixing ratios η_{SSA} (for three ranges of different SSA sizes $R_{\text{SSA}} = 0.03, 0.5, 5, \text{ and } 20 \mu\text{m}$) corresponding to the days and location of (or around) the flights of the AEROMARINE field campaign. These mixing ratios have been converted from kg/kg into a SSA number concentration $\#/ \text{cm}^3$ (Table 1) in order to better compare with further *in situ* (POPS, MAGIC and TSI) measurements. A simple enough but realistic way to perform this conversion is as follows. We first calculated the mass of SSA (in kg) for each radius R_{SSA} , $m_{\text{SSA}} = N_{\text{SSA}} \rho_{\text{SSA}} (4\pi R_{\text{SSA}}^3 / 3)$ where $\rho_{\text{SSA}} \approx 1183 \text{ g/cm}^3$ is a typical mass density of SSA (Bozzo et al., 2020) and N_{SSA} is the number of SSA particles. Then, the ideal gas law gave us the volume occupied by 1 kg of dry air at standard temperature T and pressure p , i.e. $V = m_{\text{air}} RT / (pM)$, where $M \approx 29 \text{ g mol}^{-1}$ and $R \approx 8.314 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$. Since $\eta = m_{\text{SSA}} / m_{\text{air}}$, it ensues directly $N_{\text{SSA}} / V = 3pM \eta_{\text{SSA}} / (4\pi R_{\text{SSA}}^3 RT \rho_{\text{SSA}})$.

The results of this conversion are summarized in Table 1. These orders of magnitude are realistic values. Another precise approach would be to consider a size distribution if it were fully available. The POPS, TSI and MAGIC size ranges of measurements (respectively 132 nm – 3 μm , < 10 nm and < 2 nm) correspond to the two smallest size ranges of the CAMS reanalyses (SSA between 0.03 μm and 5 μm). The CAMS concentrations retrieved (SSA_{0.03–0.5 μm} and SSA_{0.5–5 μm}) are of the same order of magnitude as the concentrations measured by POPS, TSI and MAGIC (see Table 1). The largest SSA concentrations (SSA_{5–20 μm}) are negligible compared to the other two CAMS size ranges.

We note for these flights that the SSA are not located on the same side of Reunion Island depending on the day. We will see later that this is explained by the wind regimes.

3.2. Thermodynamic parameters

Fig. 3 present the averaged profiles (for March 2019) of the relative humidity and the temperature resulting from the measurements made by the MWRP and by the CAMS reanalyses.

The radiometer and CAMS reanalysis are in agreement on the relative humidity values between 0 and 1 km, with a surface value of 70% and a maximum of 80% around 0.5–1 km in altitude. However, above 1 km, CAMS reanalyses underestimate the relative humidity from 5% at 2 km to 20% at 5 km altitude. For the temperature, CAMS reanalyses and radiometer measurements are very close to each other.

From the radiometer measurements, we observe that relative humidity varies between 50% and 100% and temperature between 283 K

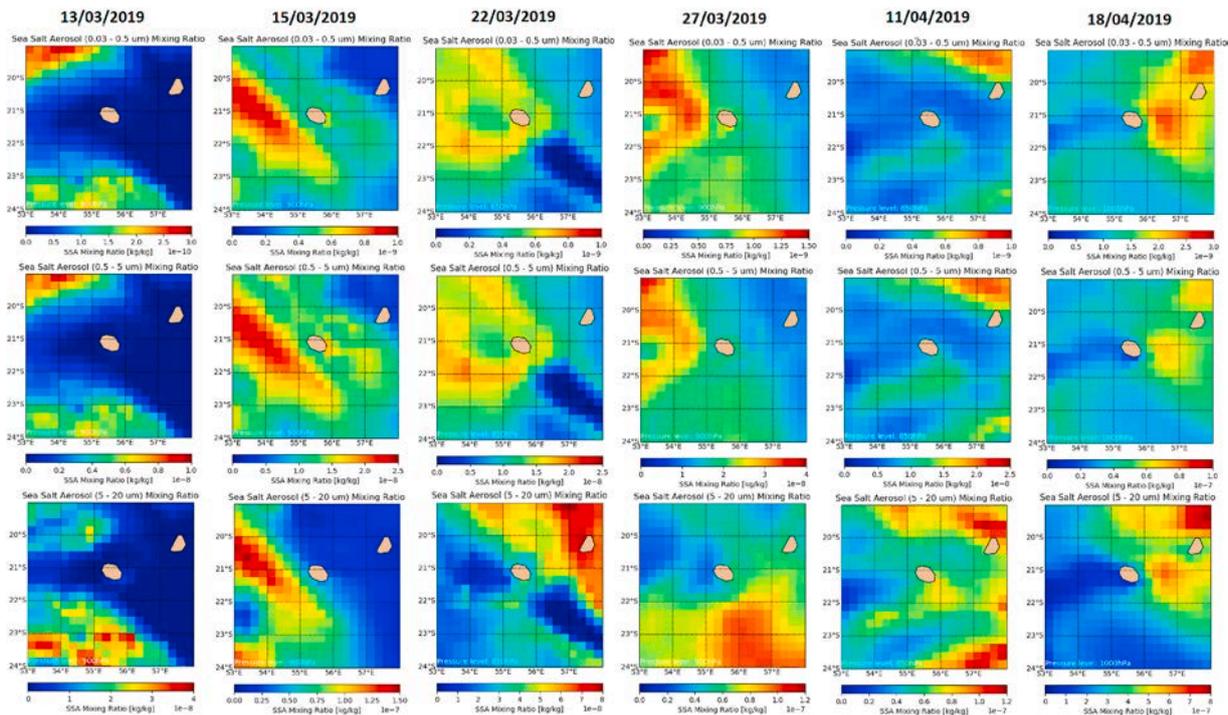


Fig. 2. CAMS reanalysis (0.25°/0.25°): mixing ratio of SSA 0.03–0.5 μm, SSA 0.5–5 μm, and SSA 5–20 μm (from top to bottom) on 03/13/2019, 03/15/2019 (at 900 hPa), 03/22/2019 (at 850 hPa), 03/27/2019 (at 900 hPa), 04/11/2019 (at 850 hPa) and 04/18/2019 (at 1000 hPa) from left to right.

Table 1

Range of concentrations measured by POPS, TSI and MAGIC and range of SSA concentrations (size ranges: 0.03–0.5 μm; 0.5 – 5 μm and 5 – 20 μm) from CAMS reanalyses in the pixel where the flight took place, for the six flight dates.

| Date | MAGIC (#/cm ³) | TSI (#/cm ³) | POPS (#/cm ³) | SSA _{0.03–0.5μm} (#/cm ³) | SSA _{0.5–5μm} (#/cm ³) | SSA _{5–20μm} (#/cm ³) |
|-------|----------------------------|--------------------------|---------------------------|--|---|--|
| 03/13 | 200 to 2.10 ³ | 100 to 10 ³ | 5 to 100 | 0.3 to 1.4.10 ³ | 1.2.10 ⁻³ to 0.1 | 4.6.10 ⁻⁴ to 0.03 |
| 03/15 | 200 to 300 | 100 to 200 | 50 to 100 | 2.3 to 1.0.10 ⁴ | 0.06 to 60 | 3.7.10 ⁻³ to 0.2 |
| 03/22 | – | 10 to 300 | 32 to 100 | 3 to 1.3.10 ⁴ | 0.08 to 76.3 | 2.8.10 ⁻³ to 0.2 |
| 03/27 | 500 to 2.10 ³ | 200 to 10 ³ | 30 to 130 | 4.1 to 1.9.10 ⁴ | 0.01 to 12.1 | 1.8.10 ⁻³ to 0.1 |
| 04/11 | 800 to 8.10 ³ | – | 74 to 130 | 2.4 to 1.1.10 ⁶ | 0.06 to 58.7 | 5.5.10 ⁻³ to 0.4 |
| 04/18 | 200 to 2.10 ⁴ | – | 7 to 132 | 6.0 to 2.7.10 ⁴ | 0.2 to 180 | 0.02 to 1.2 |

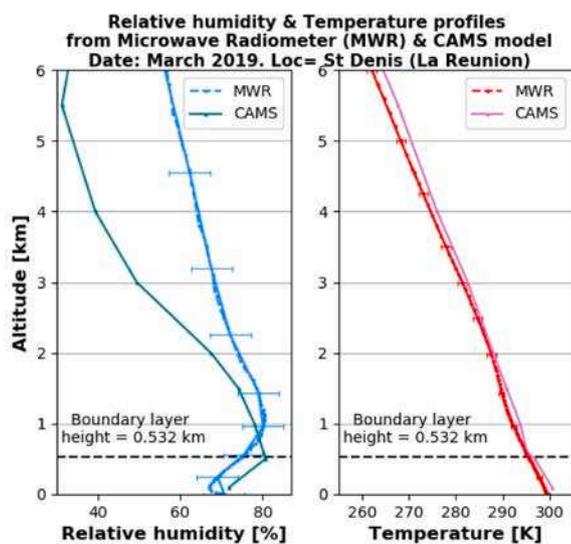


Fig. 3. Average profiles of temperature and relative humidity from microwave radiometer and from CAMS reanalysis (20.8 S; 55.2 E) for March 2019.

and 300 K in the 0 – 3 km atmospheric layer. In addition, the averaged height of the boundary layer for March 2019 is 0.532 km.

These values are representative of the thermodynamic situation during the field campaign flights. These data will be helpful to examine cloud formation under marine conditions.

3.3. The AEROMARINE field campaign

The AEROMARINE field campaign allowed to better understand the 3D distribution of marine aerosols around Reunion Island and how it is influenced by the dynamics of the MBL thanks to an instrumental synergy: PLASMA, POPS, Tandem CPC TSI3007 and MAGIC200 (Table 2). Six flights, of a duration of about 90 min, allowed to sample the aerosols

Table 2 Availability of instruments during flights (F1 to 6).

| AVAILABLE INSTRUMENTS | | | | |
|-----------------------|--------|-------|------|-----|
| Flight | PLASMA | MAGIC | POPS | TSI |
| F1 | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ |
| F2 | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ |
| F3 | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ |
| F4 | ✓ | ✓ | ✓ | X |
| F5 | ✓ | ✓ | ✓ | X |
| F6 | ✓ | ✓ | ✓ | ✓ |

from an altitude of 100 m up to 4 km and up to about 2 km off the west coast. The flight paths are shown on Fig. 4. They were designed to have most of the time a vertical profile above the ocean, and to measure air masses above the Maïdo mountain on the way back to the airport. Since focus is put on marine aerosols, we are going to divide these flights into two groups: (I) when only the ascending part is over the ocean (F1, F2, F3) and (II) when the whole flight is over the ocean (F4, F5). Finally, flight F6 is treated separately since the plane flew over the city of St Denis (red box on Fig. 4). We will see that this flight is interesting to segregate data between land/ocean conditions.

3.3.1. Optical properties from PLASMA measurements

Fig. 5 displays the AOD and α vertical profiles measured by PLASMA during each flight. For group II, we have separated the ascending phase from the descending phase. For each flight and for each wavelength, the AOD is lower than 0.1 during the ascending phase, with values below 0.05 between 500 m and 1 km, and up to 1.5 km for flight F5. It is in agreement with other published results on marine air masses (e.g., Horowitz et al., 2017) shows as multiyear daily average $AOD = 0.06 \pm 0.04$ and $\alpha = 0.7 \pm 0.36$). Higher in altitude, the AOD changes little with the altitude, and is constant with altitude above 2 km. It means that most of the aerosols that contribute to AOD (i.e. the largest ones) are located below 2 km, which is in agreement with previous works by Lesouëf et al. (2013) and Dufлот et al. (2019).

For group II, the AOD-profiles during the descent differ from the ascent, especially below around 1 km of altitude, where AODs can reach 0.15 during the descent phase. For flight F4, the AOD peaks at 500 m, in particular at 500 and 650 nm. Beside the AOD values below 1 km altitude during the descent phase, the behaviour of the AOD with the wavelength does not depend on the altitude: the shortest wavelengths (380, 440 nm) show the highest AOD. This suggests that the sampled atmosphere was made of particles with size of the order of, or

comparable to, these wavelengths, so particles rather in the accumulation mode, with the exception just mentioned which could indicate the presence of larger particles.

The Angström exponent (α) is a good qualitative indicator of the mean size of the sampled aerosols. The PLASMA measurements reveal that α is lower than 1.2, independently of the altitude. This clearly suggests the presence of marine aerosols like sea salt (Schuster et al., 2006), since the CAMS retrievals (Fig. 1) indicate that the contribution of dust aerosols were negligible. For group I, α presents in general a maximum around 1.0 within the 0.5–1.5 km layer. Regardless of local maxima in α that corresponds to sudden and localized changes in the corresponding AOD, the overall behaviour of α with altitude suggests that the larger particles are situated between 0.5 and 1.5 km. For flight F1, α reaches a maximum of 1.5 at about 800 m in altitude, in agreement with the peak in AOD at 440 nm and the almost null value of AOD at 1 020 nm, indicating the presence of smaller particles at this altitude.

For group II, the ascent profiles share similar characteristic to those from group I with an increase of α with the altitude up to 1.5 km and a slight decrease above. The values of α vary between 0.6 and 1.2. However, larger particles seems to occupy the altitudes above 1.5 km compared to group I. Below 1.5 km, a decrease of 0.5 can be found in α values between the descent (<0.5) and ascent phases, which could indicate a depletion of small particles in favor to larger ones.

3.3.2. Aerosol concentration measurements

Fig. 6 presents the aerosol concentration measurements by MAGIC (particle size larger than 2.5 nm), TSI (particle size larger than 10 nm) and POPS (particle size larger than 132 nm). POPS concentration profiles show that the sampled particles (accumulation and coarse modes) have a maximum number concentrations of around 10^2 cm^{-3} between 0.5 and 1.5 km, and around 10 to $3 \times 10^2 \text{ cm}^{-3}$ above. It confirms that larger particles are found between 0.5 and 1.5 km in altitude, in

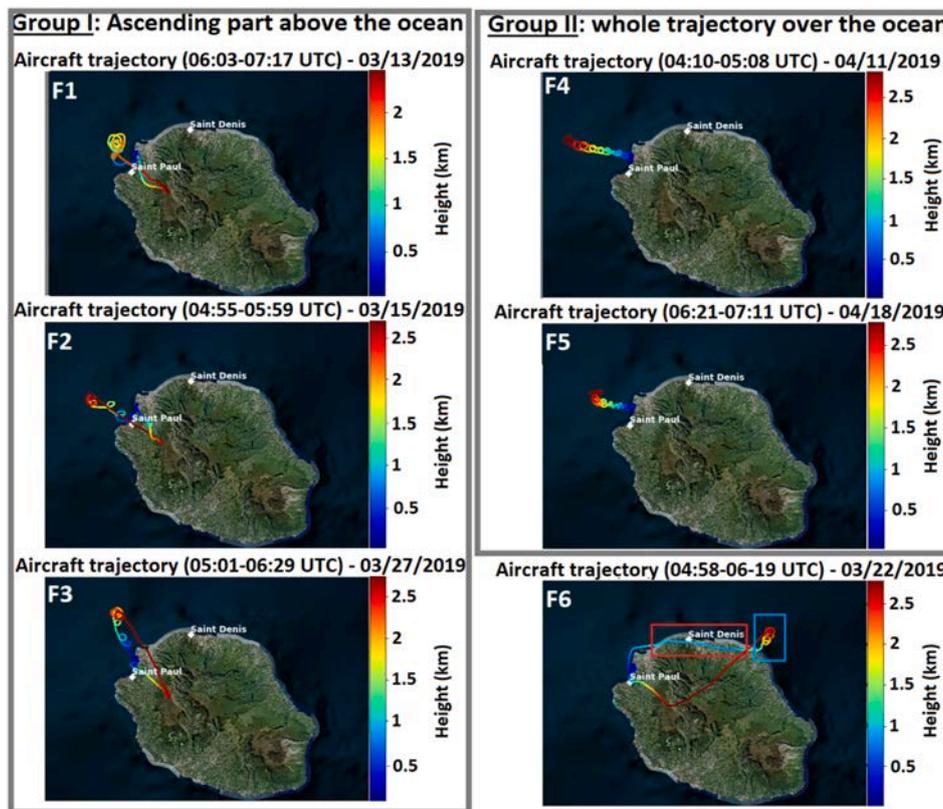


Fig. 4. Flight trajectories and altitudes on 03/13/2019, 03/15/2019, 03/27/2019 (Group I) and 04/11/2019, 04/18/2019 (Group II). The sixth flight is a particular case (see text for details).

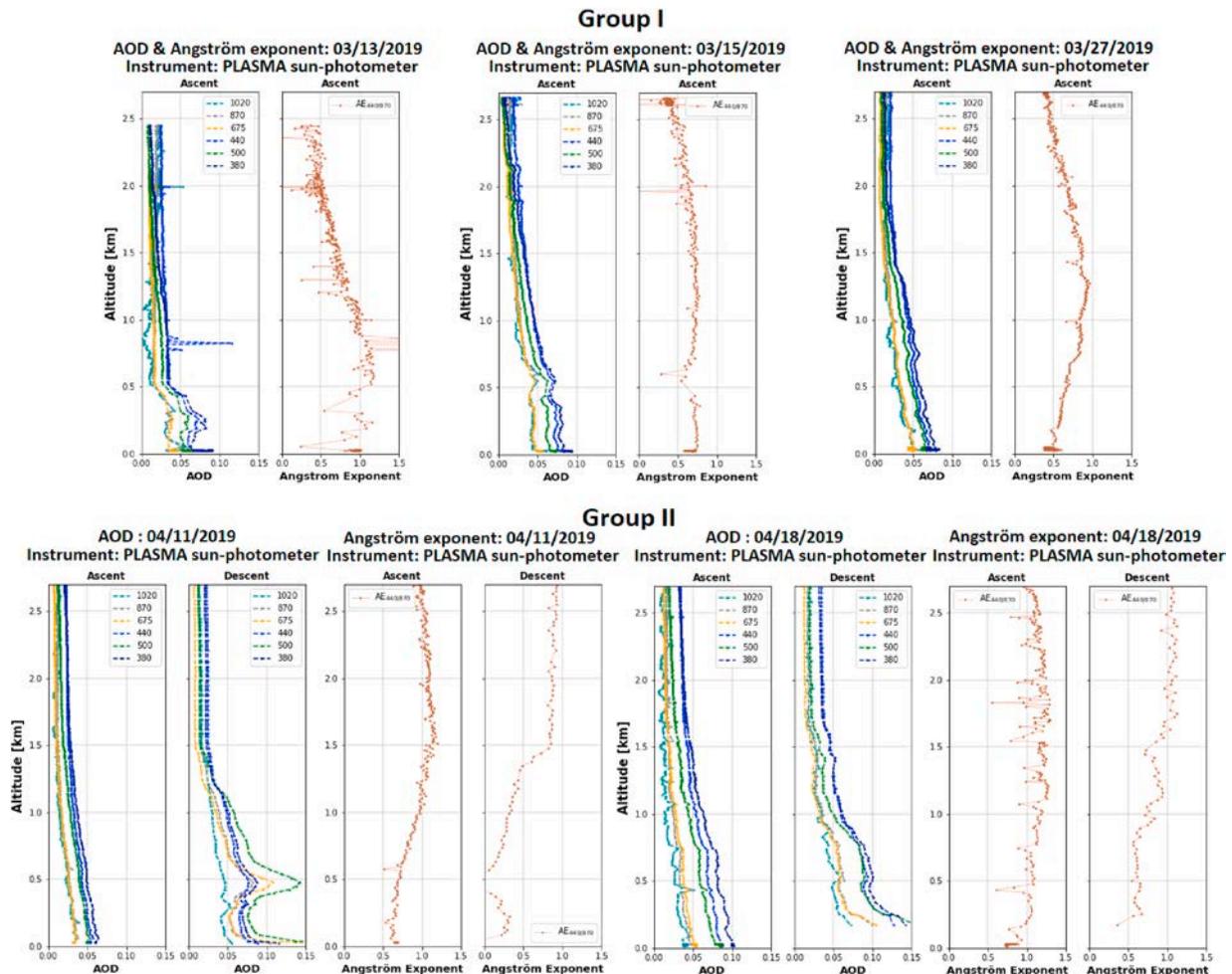


Fig. 5. AOD and Angström exponent (α) vertical profiles (PLASMA measurements) for flights F1, F2, F3 (Group I) and flights F4, F5 (Group II).

agreement with the conclusions deduced from the optical measurements. Below 0.5 km a.s.l., the POPS concentrations increase with altitude during the ascent phase.

The shape of the measured concentration profile can show a maximum (group I) or a minimum (group II) in the layer below 0.5 km. During the descent (group II), the POPS concentrations decrease with altitude between the surface and 0.5 km. Furthermore, the aerosol concentrations are higher between 1 and 1.5 km compared to the ascent phase, up to a factor of 10 for flight F4 at 1 km. Above 1.5 km, the POPS profiles during the ascent and descent phases are in agreement, with similar shapes and concentrations. POPS counts more particles during the descending phase of the flight. This is tempting to explain this increase by physico-chemical processes that would modify the aerosol number or the aerosol size so that small particles became large enough to be counted by POPS. However, we have to keep in mind that the trajectory of the plane during the descent is the same as the ascending trajectory, so we cannot exclude an influence of the plane in the aerosol content when coming back. Also, we cannot totally exclude that the air mass has changed by advection between the ascent and the descent of the plane.

Comparing the aerosol concentrations measured by POPS to the measurements from MAGIC and TSI will help further evaluate the vertical distribution of aerosols according to their size. Differences in TSI and MAGIC concentrations are minimum above 1.5 km. In particular, their values are almost identical above 1.5 km for flight F2, and above 2 km for flight F1. Below those altitudes, the MAGIC concentrations are around twice those of TSI. This means that small particles (nucleation mode) are twice (in concentration) than larger particles (Aitken mode)

below 1.5 km while above, there is no small particles (MAGIC-TSI ratio close to one). Such values of number concentration in the nucleation mode, between 10^3 and 10^4 cm^{-3} , have been measured also in the Mediterranean (Eleftheriadis et al., 2006).

For the flights in group I, the concentration vertical profiles obtained from MAGIC and TSI present similar shapes. On average, MAGIC concentrations are 2–3 times higher than TSI concentrations. The highest concentrations are found in the marine boundary layer below 0.7 km for flight F1, and below 0.5 km for flight F2 and F3, with values ranging from 2.10^3 to 10^4 cm^{-3} . This difference of 200 m in the marine boundary layer may be due to the fact that flight F1 occurred 1 h later in the morning compared to flights F2 and F3, so the boundary layer may have time to develop a bit more.

For flight F1, the MAGIC and TSI concentration profiles are rather constant at 2.10^2cm^{-3} above 1 km. For flight F2, the concentrations are constant above 1.5 km at 4.10^2cm^{-3} . For flight F3, a value of 4.10^2cm^{-3} is found above 2 km, and a value of 10^3cm^{-3} is found in the layer between 0.8 and 1.6 km.

For group II, only MAGIC was available. Similar features can be found in the profiles of flights F4 and F5 compared to group I. Furthermore, contrary to the aerosol concentration measured by POPS, the aerosol concentrations are rather similar between the ascent and descent phases.

Other important information are obtained when comparing the POPS and MAGIC profiles. Indeed, the concentration profile differences “MAGIC - POPS” (not shown) present relatively smaller values above 0.5 km. More significant differences are obtained below this altitude. An exception occurs for flight F1 since the critical altitude is 1 km because

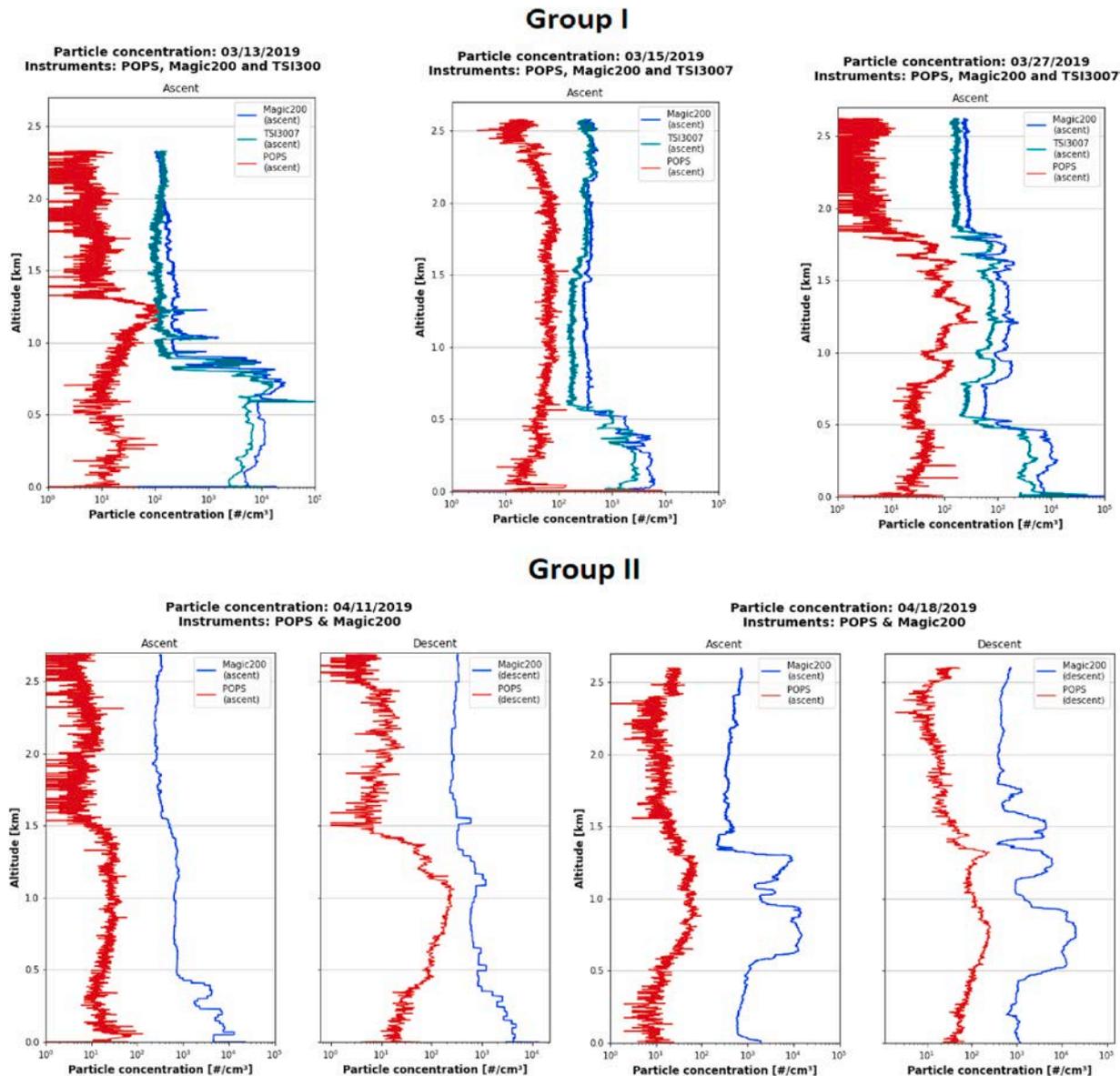


Fig. 6. Particle concentration profiles (from POPS, TSI3007 and MAGIC200 instruments) during F1, F2, F3 (Group I) and F4, F5 (Group II).

of a more developed boundary layer, as already suggested above. Another exception is for flight F5 where significant differences are between 0.5 and 1.5 km and small differences elsewhere. For group II, no significant differences are noted between the ascent and the descent *i.e.* same shape and order of magnitudes in the concentration profile differences.

In summary, the measurements indicate that the boundary layer below 0.5 km–0.7 km is much richer in aerosols in the nucleation or Aitken modes (size lower than 132 nm). Above the boundary layer, and up to 1.5 km–2 km depending on the flight, these modes have a lower concentration and larger particles (size greater than 132 nm - accumulation mode) are dominant. The exception in the marine boundary layer for flight F5, *i.e.* below 0.5 km, means that this layer is poorer in terms of small aerosols.

3.3.3. Origin of the air masses

To further evaluate the origin of the air masses identified in the previous section, we used FLEXPART mesoscale backtrajectories to distinguish air masses influenced by local terrestrial emissions from those with marine origin or representative of the regional background.

Here, we have chosen a backtime of 12 h because it corresponds to the domain of AROME.

tables A1 and A2 in the appendix presents statistical products from the FLEXPART output.

The scientific meaning of the FLEXPART outputs needs to be briefly reminded in order to avoid misunderstandings about the result presented in those tables. When we release an air mass at a given altitude z_r , FLEXPART is able to trace back its probable trajectories, over a geographical grid, during an user-decided time interval. From that, it is then possible to identify (and reckon) the oceanic pixels, *viz.* the trajectory grid-points located over the ocean, and similarly for the island pixels which are trajectory grid-points located over Reunion Island. In other words, we can quantify how much could the ocean contribute to, or impact, the aerosol content of the considered air mass.

Beside the geographic origin, it is possible to determine the tropospheric layer from where an air mass originates. The results from the previous sections helped us identify three layers: (L1) below 0.5 km, (L2) between 0.5 and 1.5 km, and (L3) above 1.5 km. For instance, in Table A1, the results after 12 h of backward simulations for an altitude release at 200 m for flight F1 show that 88% (first row, last column) of

the air mass originated from grid cells over the ocean, and 12% from grid cells over Reunion Island. In addition, the origin of the air mass can be analyzed in terms of geographic location and height. Hence, 43% of the air mass originated from 0 to 500 m in altitude (layer L1), 38% from 500 to 1500 m in altitude (layer L2), and 7% above 1500 m (layer L3) and above the ocean. Therefore, the origin of this air mass is mainly oceanic.

We have thus used FLEXPART to calculate the origin of air masses from different altitudes. For group I, we can see that the origin of the air masses is mainly oceanic since more than 73% of the backtrajectories originate from grid cells above the ocean.

In contrast, 28% of the air mass was located above Reunion Island, and within the layer L2 and L3. For group II, the results are different since the air masses present a significant origin above Reunion Island. In particular, the air masses released at the 200 m and 1 km altitudes for flight F4 have a dominant origin above Reunion Island.

Comparing the altitude where the backtrajectories are released, and the distribution in the vertical of the backtrajectories give additional information on the vertical transport between layers. Let us first look at oceanic pixels for group I. First, we note that the air masses with a dominant marine origin stayed, for a large part, within the same layer they originated from. For example, for a release at 200 m, 43% of the air mass with marine origin were in the layer L1. Excepted for some rare exceptions (underlined in tables), the layer that presents the highest percentages (in bold fonts in tables) includes the altitude of release. However, exchanges of air masses (in italic fonts in tables) between layers are not negligible, even if they are not dominant. For instance (flight F1), for a release at 1 km, 29% of the air mass with marine origin come from the layer L1. This means that the aerosol content in the lower troposphere is also impacted by the mixing between contiguous layers. This result holds for the air masses originating from Reunion Island, although the terrestrial component in the lower troposphere is mostly significant in the layer L2 (percentages greater than 10%). For the group II flights, we have the same results although we recognize that the insular influence is more present, especially at low level for flight F4. This may be correlated with MAGIC and PLASMA measurements. Indeed, for flight F4, the maximum MAGIC concentrations are measured below 0.5 km, which corresponds to a majority of island pixels in Table A1. It is also at this altitude that PLASMA measures the most important AODs (during the descending phase).

We are summarized with typical orders of magnitude the results given in Tables A1 and A2. These conclusions are summarized on Fig. 7. The vertical layering we found, and in particular the predominance of the oceanic aerosols, are explained by the interaction between the wind field and Reunion Island's complex terrain. The AROME model outputs (not shown) reveal a dominant south-west and south wind weather

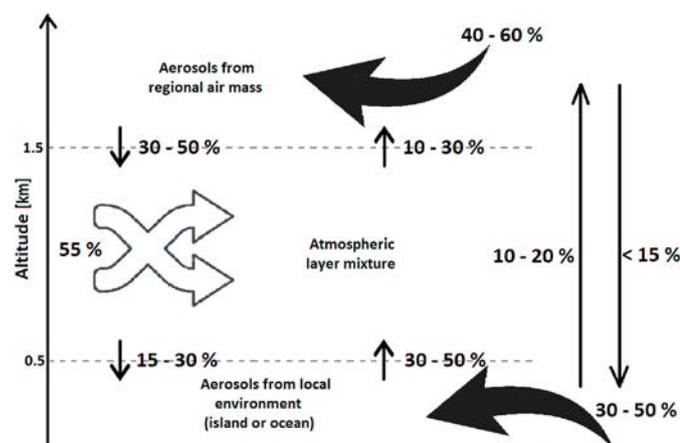


Fig. 7. Descriptive diagram of aerosols inputs and the exchanges between the atmospheric layers L1 (below 0.5 km), L2 (0.5 – 1.5 km) and L3 (above 1.5 km).

regime occurred over the sea at the time of the flights, with sometimes strong recirculation on the lee side, off the west coast of Reunion Island.

3.3.4. Special case: flight of March 22, 2019 (F6)

This flight (F6) is of particular interest since the plane flew over St Denis between 05:20 and 05:30UTC at an altitude of about 900 m (red box on Fig. 4), then ascended in spirals above the ocean up to 2.5 km (blue box on Fig. 4). It finally flew over St Paul before landing.

The measured AODs and α over St Denis (grey boxed area on Fig. 8) have a local maximum of 0.05 and minimum of 0.5 respectively, while over the ocean (blue box in Fig. 8), the measured AODs are constant ($AOD < 0.05$) and α is around 0.8 – 1. This suggests that smaller particles are sampled when the plane is over St Denis.

The difference in concentration between MAGIC and POPS is much larger over St Denis than over the ocean. This means that, as indicated by the PLASMA optical measurements, small particles (size lower than 132 nm) are the dominant mode over St Denis. The MAGIC - TSI differences in concentration further indicates that the smallest particles are those that dominate. In contrary, the MAGIC - TSI difference is close to zero and confirm that larger particles are found above 1.5 km over the ocean north east of the island.

The wind direction given by AROME (not shown here) indicate (i) at 1 km (overflight of St Denis) a southeast wind of around 10 m s^{-1} coming from the island and (ii) at 1.5 km, when the plane begins these spirals above the ocean, a southeast wind from the ocean with a speed of about 8 m s^{-1} .

The FLEXPART backtrajectory results (Table A2 in the appendix section) indicate that for a release at 1.5 km, the air mass origin was purely marine and stayed above 500 m over the past 12 h. This is due to a southeasterly wind regime, according to AROME wind fields (not shown). Hence, the layer at 1.5 km in altitude is representative of the regional background.

3.4. Comparisons with other databases

3.4.1. Comparison with AERONET measurements

Assuming that the AOD is mostly influenced by marine aerosols on the north and west shore, one can compare AOD measured by the AERONET station at St Denis and the AOD measured by PLASMA on the runway.

Table 3 brings together the mean values of the AOD_{500nm} on the runway (before takeoff) measured by PLASMA and the AOD_{500nm} measured by the AERONET sun-photometer (St Denis) at the same time. Both the AOD and α from AERONET and PLASMA are in agreement for flights F2, F3 and F4. For the flight F1, the AERONET sun-photometer measures a larger Angström exponent while for flights F5 and F6 it is the AODs measured on the runway by PLASMA which are larger. However, these differences are consistent with the accuracy of the two photometers (AERONET: $\Delta AOD = \pm 0.02$ and PLASMA: $\Delta AOD = \pm 0.005-0.01$ according to λ). The exception of the flight over St Denis (flight F6) where $AOD_{AERONET} > AOD_{PLASMA}$ can be explained by the difference in altitude of the two measurements (0.9 km for PLASMA and ground-based for AERONET).

So AERONET measurements are generally in agreement with those carried out during flights. If one relies on the AERONET retrievals, the general agreement with the PLASMA retrievals suggests that PLASMA offered a representative sampling of the aerosol content around Reunion Island. We further evaluated this by comparing the AOD AERONET measurements before and during the 2020-lockdown due to the Covid19 pandemic, assuming that the terrestrial sources were similar between both periods. Reunion Island experienced a lockdown between March 17, 2020 and May 17, 2020 and hence mobile traffic and anthropogenic activities were reduced. The three plots presented in Fig. 9 show that no statistically significant change in the AOD or Angström exponent can be clearly attributed to the lockdown. This tends to indicate that indeed the AERONET station at St Denis is not significantly impacted by local

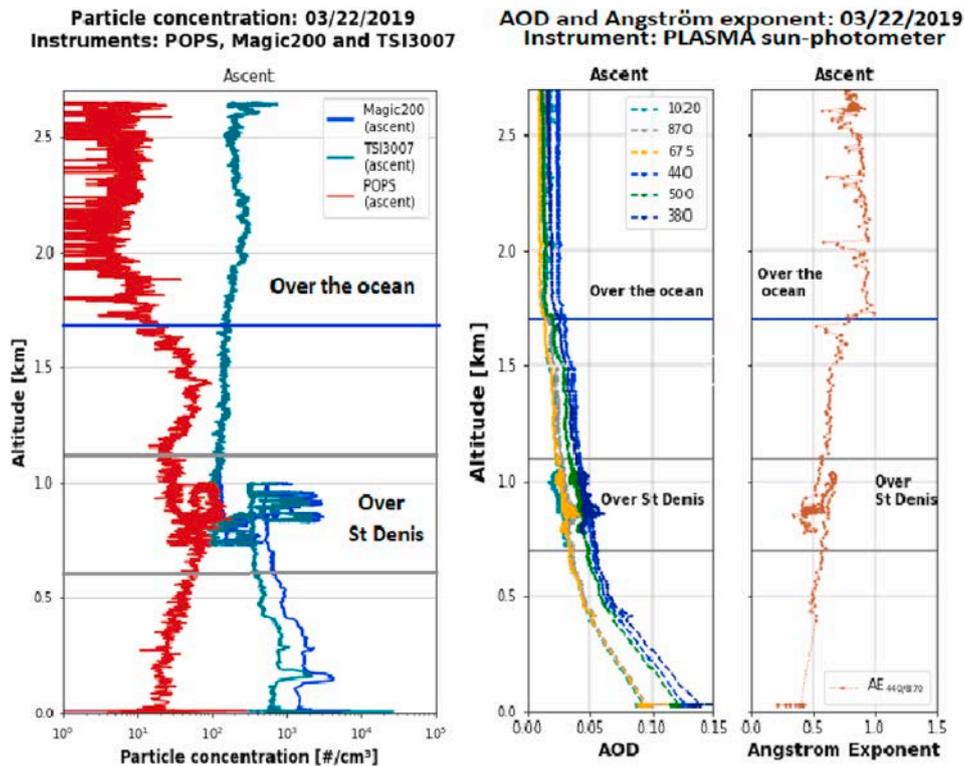


Fig. 8. Particle concentration profiles from POPS, TSI3007 and MAGIC200 instruments (left), AOD and Angström exponent ($\alpha_{440/870}$) profile from PLASMA sun-photometer (right) during flight on 03/22/2019 (F6).

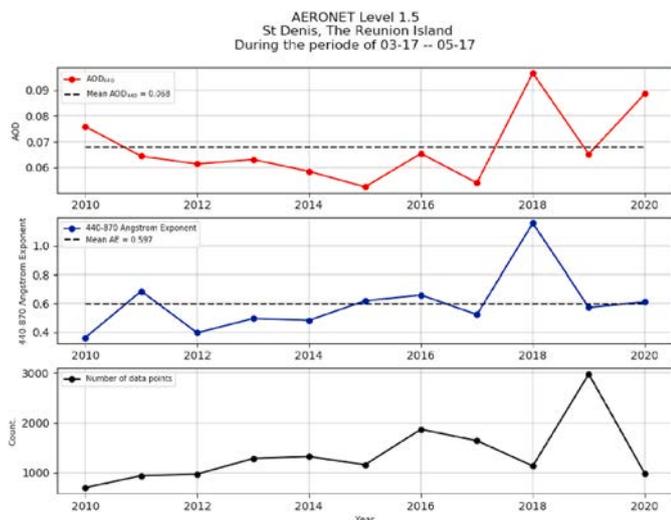


Fig. 9. Mean AOD, mean α and number of data points from AERONET station in St Denis (Level 1.5) for the period from March 17 to May 17 (2010–2020).

anthropogenic aerosols and confirms the results of Hamill et al. (2016) that it is a marine station.

3.4.2. Comparison with CAMS reanalyses

Fig. 10 presents the daily AOD averages of the CAMS model (model grid point: 20.8 S; 55.2 E) and of the AERONET sun-photometer (St Denis) for March and April 2019. Over this period, CAMS overestimates the AOD by 0.03.

Daily differences between CAMS reanalyses and AERONET measurements are presented in Table 4 (values rounded to the hundredth).

The monthly averages of the AODs given by the CAMS reanalyses is

Table 3

AOD at 500 nm and Angström exponent (α) on the runway from the PLASMA sun-photometer and from the AERONET sun-photometer (St Denis) for each flight date.

| Flight | PLASMA | | AERONET | |
|----------------|-----------------------|---------------|-----------------------|---------------|
| | AOD _{500 nm} | α (AE) | AOD _{500 nm} | α (AE) |
| F1 | 0.06 | 1.0 | 0.06 | 1.7 |
| F2 | 0.07 | 0.6 | 0.07 | 0.7 |
| F3 | 0.07 | 0.5 | 0.06 | 0.4 |
| F4 | 0.05 | 0.6 | 0.04 | 0.7 |
| F5 | 0.09 | 0.6 | 0.06 | 0.6 |
| F6 | 0.12 | 0.4 | 0.06 | 0.4 |
| Over St D.(F6) | 0.04 | 0.5 | 0.07 | 0.2 |

0.11, for March and April 2019. The monthly averages of the AODs measured by the AERONET sun-photometer is 0.08 for March and April 2019. This shows an overestimate of CAMS of 0.03 for March and April 2019. In particular, the CAMS reanalyses overestimate the AODs from 0.03 to 0.09 for flights F1, F3, F4 and F6. The difference between CAMS and the AERONET sun-photometer is statistically insignificant for flights F2 and F5.

These results agree with those obtained by Mallet et al. (2018) who determined that the AODs given by CAMS overestimate by about 0.05 the local AERONET measurements.

3.4.3. Comparison with Maïdo measurements

The *in situ* measurements on board the light plane in the free troposphere are further compared to the measurements from the high altitude Maïdo Observatory (21.08° S, 55.38° E; 2.2 km). We use the measurements made by a Scantron particle counter described in Foucart et al. (2018) (concerning aerosols of size 10 – 600 nm) and a CPC TSI (aerosols greater than 10 nm) from the Maïdo Observatory for comparison with the in-flight data (POPS, TSI and MAGIC). Due to a complex interplay between land-sea breeze, catabatic wind and complex

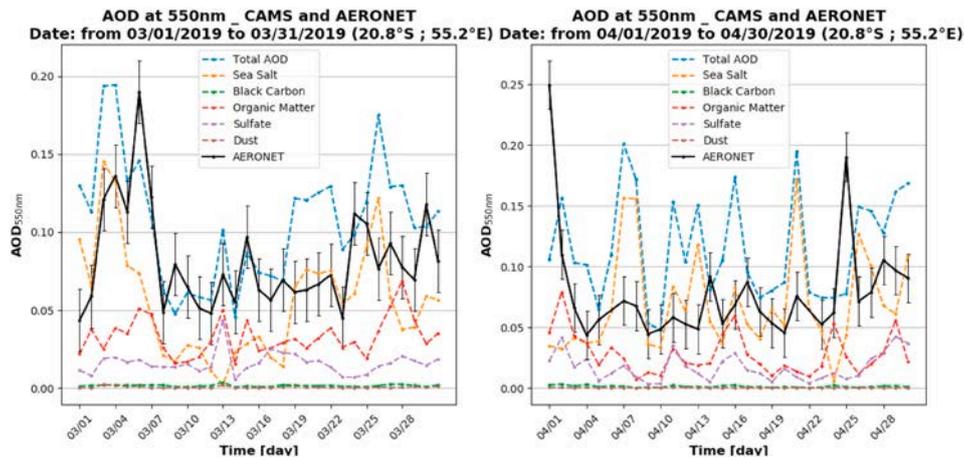


Fig. 10. AOD measurements from AERONET sun-photometer (Level 1.5) and from CAMS reanalysis (20.8 S; 55.2 E) for March 2019 and April 2019.

Table 4

Differences in daily AOD averages of the CAMS model (20.8 S; 55.2 E) and of the AERONET sun-photometer (St Denis) for each flight.

| Flight | $AOD_{CAMS} - AOD_{AERONET}$ |
|--------|------------------------------|
| F1 | +0.03 |
| F2 | -0.01 |
| F3 | +0.04 |
| F4 | +0.09 |
| F5 | +0.01 |
| F6 | +0.06 |

terrain, only the in-situ measurements Maïdo taken between 21:00 and 03:00 UTC can be considered as free tropospheric (Verreyken et al., 2021).

Fig. 11 display the mensual averages for March and April 2018 for the Scanotron and the TSI located at Maïdo. The time series (POPS, TSI and MAGIC measurements) during the flights of March 22, 2019 and April 11, 2019 are also presented for comparison.

For March, the average TSI measurements at Maïdo and during the flight have the same order of magnitude concentrations (between 40 and $4.10^3 \# \cdot cm^{-3}$). However, the POPS measurements during the flight (March and April) are much lower than those of the Scanotron at 2.2 km. The Scanotron (10 – 600 nm) measures aerosols smaller than the POPS (132 nm - 3 μm). This would mean that the majority of the aerosols measured above 2.2 km are less than 132 nm (in agreement with CAMS section 3.1).

Table 5 presents the measurements made during flights in the free troposphere (measurements for an altitude higher than 2 km) and the average concentrations measured at the Maïdo Observatory (2.2 km) during the nights before and after the flights, when the observatory is in the free troposphere.

Overall, the MAGIC and TSI measurements made during flight in the free troposphere are of the same order of magnitude as the Scanotron night measurements made at the Maïdo Observatory, in the free troposphere (between 1×10^2 and $7 \times 10^2 cm^{-3}$). The two TSI CPCs (at the Maïdo Observatory and on the plane) also measure identical concentrations above 2 km (around $10^2 cm^{-3}$).

We can conclude that the night-time measurements at the Maïdo Observatory (at 2.2 km) are representative of the daytime measurements (during flights) in the free troposphere and allow sampling of purely marine aerosols.

4. Conclusion

In this paper, we have presented the AEROMARINE field campaign

which took place between February and April 2019 off the coast of Reunion Island (southwestern Indian Ocean). This area, identified as a pristine region, is of major interest for the study of marine aerosols, their vertical distribution and their optical properties.

During this campaign, a MWRP was deployed in St Denis (93 m in the north of the Island) between mid-December 2018 and mid-March 2019. This made it possible to determine that, during the austral summer in this region, the thermodynamic situation (humidity, temperature, and height of the boundary layer) is relatively stable.

In addition, six instrumented flights allowed the aerosols to be sampled from an altitude of 100 m up to 4 km by spiraling above the ocean thanks to an instrumental synergy.

The optical properties of the aerosols were measured by the PLASMA photometer and three particle counters (POPS, TSI and MAGIC) measured the aerosol concentrations for different size ranges (accumulation, coarse and Aitken modes). POPS analysis indicates that almost all of the particles are in the accumulation mode, centered around a particle size of 132 nm.

The results obtained show AODs less than 0.1 (with some exceptions), which is representative of a pristine region. The various measurements (AOD, Angström exponents, and concentrations) also indicate that the aerosols are in the accumulation and coarse modes, and mainly below 2 km of altitude.

The FLEXPART simulations enabled to determine the most probable origin of the aerosols measured during the flights. As a result, the aerosols follow the following vertical distribution:

- Above an altitude of 1.5 km, the sampled aerosols are not substantially impacted by the surface (layer L1 has a relatively little contribution). This is interesting since it allows to quantify the background aerosol concentration. For all the flights, we have estimated that the number concentrations (in cm^{-3}) are 300 (MAGIC), 230 (TSI) and 15 (POPS). Also, the assessed AOD_{550nm} and α are respectively 0.01 and 0.75.
- Below 0.5 km (in the MBL), aerosols come essentially from the surface. The origin can be oceanic (33%) or insular (8%). Insular influence are nonetheless due to special events depending on the wind regime (e.g., the Cap La Houssaye may bring sometimes dust aerosols).
- The intermediate layer, i.e. between 1.5 and 0.5 km, is a layer of mixture: aerosols are mixed with those coming from the lower or upper atmospheric layers.

These results meet the initial objectives of the AEROMARINE campaign: (i) to characterize marine aerosol optical properties and their vertical distribution and (ii) to examine the transport pathways of

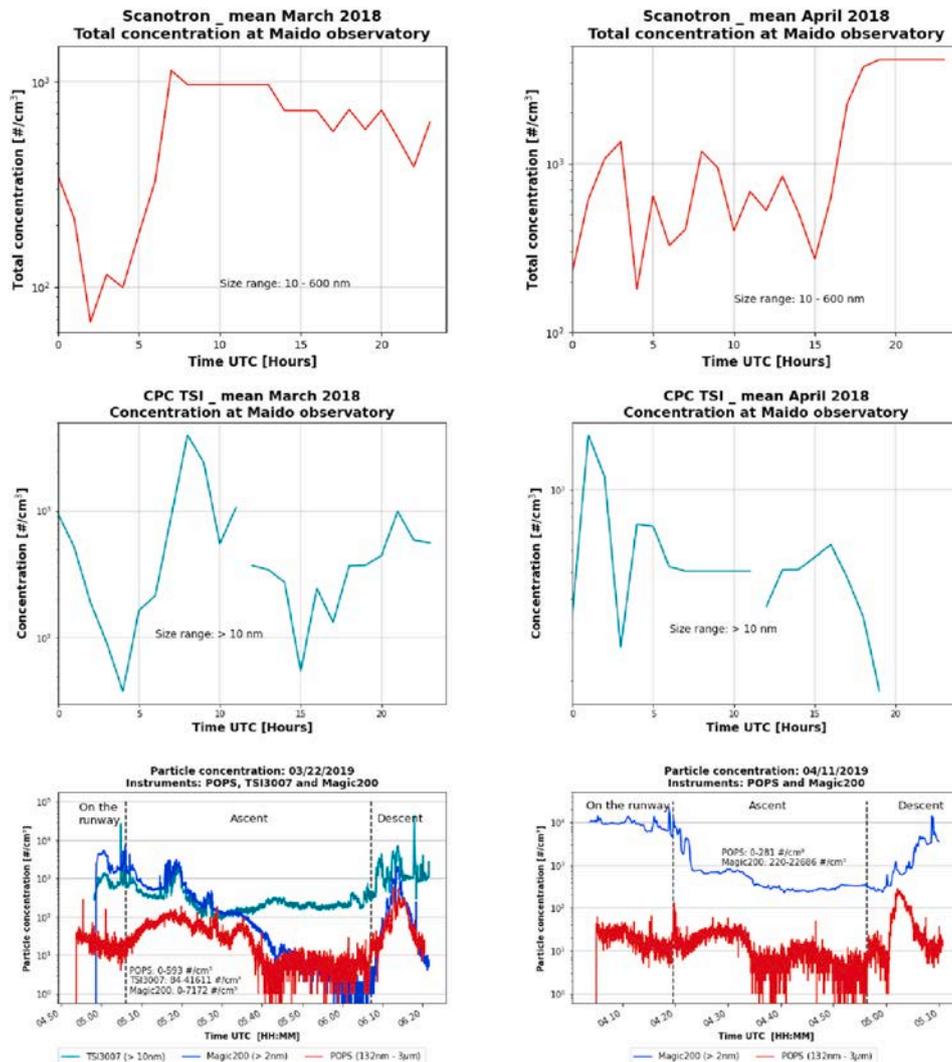


Fig. 11. March and April 2018 averages of measurements at the Maïdo Observatory by the Scantron and the CPC TSI and time series of concentrations measured during the flights of 03/22/2019 (F6) and 04/11/2019 (F4).

Table 5
Comparison of average night-time concentrations (Maïdo Observatory) and concentrations in the free troposphere during flights.

| Date | Mean night-time concentration | | Concentrations during flights | | | Mean night-time concentration | |
|-------|--------------------------------|----------------------|-------------------------------|----------------------|----------------------|--------------------------------|----------------------|
| | at Maïdo D-1 (21:00–03:00 UTC) | | (in free troposphere) | | | at Maïdo D+1 (21:00–03:00 UTC) | |
| | Scantron | TSI | POPS | TSI | MAGIC | Scantron | TSI |
| | (#/cm ³) | (#/cm ³) | (#/cm ³) | (#/cm ³) | (#/cm ³) | (#/cm ³) | (#/cm ³) |
| 03/13 | 130 | X | 0–21 | 102–180 | 101–146 | X | X |
| 03/15 | 190 | X | 3–97 | 226–542 | 244–542 | 211 | 247 |
| 03/22 | 321 | X | 0–29 | 147–746 | X | 143 | X |
| 03/27 | 268 | X | 0–12 | 126–221 | 213–302 | 191 | X |
| 04/11 | 129 | 376 | 0–50 | X | 236–347 | 110 | 347 |
| 04/18 | X | 549 | 1–54 | X | 379–771 | X | 671 |

marine aerosols from the MBL to the free troposphere. It is worth mentioning that the flights were carried out between 04:00 and 07:00 UTC, viz. during the transient convection regime between nocturnal and diurnal conditions. Further observational studies and field campaign may be necessary to examine aerosol distributions during purely diurnal and nocturnal regimes, i.e. for well established regimes. The AEROMARINE campaign presented here is interesting in the sense that it documents a transient regime, namely a more complex regime in terms of thermodynamics compared to established ones.

The measurements taken during the flights were compared with the

CAMS reanalyses. They showed that, like in-flight measurements, SSAs are predominant around Reunion Island and that aerosols are mainly located below 2 km. It was also shown that CAMS overestimates the AODs (from 0.01 to 0.09) in this region in agreement with results from Mallet et al. (2018). In addition, a comparison between PLASMA measurements (on the runway) and the AERONET sun-photometer (located in St Denis) as well as a study on the impact of 2020-lockdown due to the Covid-19 pandemic on AERONET measurements were carried out. The results strongly suggested that the AERONET station is a marine station. In other words, measurements are not impacted by local anthropogenic

activities and the station can be considered as representative of marine conditions. The AEROMARINE campaign occurred around Reunion Island. Another field campaign, the Marion Dufresne Atmospheric Program - Indian Ocean (MAP-IO), aboard the Marion Dufresne around the Terres Australes Françaises (TAF) is planned for January 2021. Among the objectives, one of them is to better document the exchanges between the pristine Southern Indian Ocean and the atmosphere. For our topic, this campaign will allow the results presented in this paper to be deepened, since it will provide data about marine aerosol emissions and of aerosol and humidity exchanges between the pristine ocean and the MBL far from any land. All of these data (from AEROMARINE and then MAP-IO) will be helpful to feed models of water vapour-aerosols-clouds interactions (Pujol and Jensen, 2019). Such features will be the topic of future research.

Declaration of competing interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

Acknowledgements

This work was supported by the French national programme LEFE/INSU. We are grateful to the Labex CAPP (ANR-11-LABX-0005-01) which has funded this work in the context of the Cloud-aerosol interactions work package. We acknowledge the ECMWF for providing freely reanalysis.

Appendix. FLEXPART simulations. Flights: F1, F2, F3 and F4

Table A1

Origin of air masses for L1, L2 and L3 according to a 12 h-simulation of the FLEXPART model for F1, F2, F3 and F4.

| Group I: F1 and F2 | | | | | Group II: F4 and F5 | | | | |
|--|---------|------------|----------|-------|--|---------|------------|----------|-------|
| FLEXPART simulation. Flight: F1. 12 h-simulation | | | | | FLEXPART simulation. Flight: F2. 12 h-simulation | | | | |
| Altitude | 0–500 m | 500–1500 m | > 1500 m | Total | Altitude | 0–500 m | 500–1500 m | > 1500 m | Total |
| Altitude release: 200 m | | | | | Altitude release: 200 m | | | | |
| Ocean | 43% | 38% | 7% | 88% | Ocean | 25% | 44% | 24% | 93% |
| Island | 2% | 6% | 4% | 12% | Island | 3% | 3% | 0.0% | 7% |
| Altitude release: 1000 m | | | | | Altitude release: 1000 m | | | | |
| Ocean | 29% | 37% | 11% | 77% | Ocean | 14% | 51% | 33% | 98% |
| Island | 4% | 17% | 2% | 23% | Island | 0 | 0 | 0 | 0 |
| Altitude release: 1500 m | | | | | Altitude release: 1500 m | | | | |
| Ocean | 13% | 29% | 31% | 73% | Ocean | 2% | 37% | 61% | 100% |
| Island | 3% | 19% | 15% | 27% | Island | 0 | 0 | 0 | 0 |
| FLEXPART simulation. Flight: F4. 12 h-simulation | | | | | FLEXPART simulation. Flight: F5. 12 h-simulation | | | | |
| Altitude | 0–500 m | 500–1500 m | >1500 m | Total | Altitude | 0–500 m | 500–1500 m | >1500 m | Total |
| Altitude release: 200 m | | | | | Altitude release: 200 m | | | | |
| Ocean | 23% | 15% | 4% | 43% | Ocean | 33% | 28% | 6% | 67% |
| Island | 28% | 21% | 8% | 57% | Island | 4% | 14% | 13% | 33% |
| Altitude release: 1000 m | | | | | Altitude release: 1000 m | | | | |
| Ocean | 7% | 21% | 11% | 39% | Ocean | 12% | 27% | 11% | 50% |
| Island | 18% | 33% | 10% | 61% | Island | 6% | 31% | 13% | 50% |
| Altitude release: 1500 m | | | | | Altitude release: 1500 m | | | | |
| Ocean | 1% | 20% | 20% | 61% | Ocean | 1% | 15% | 23% | 41% |
| Island | 0 | 22% | 17% | 39% | Island | 5% | 27% | 24% | 59% |

FLEXPART simulation. Flights: F3 and F6

Table A2

Same as Table A1 but for F3 and F6.

| F3 (Group I) and F6 | | | | |
|--|---------|------------|----------|-------|
| FLEXPART simulation. Flight: F3 | | | | |
| Altitude | 0–500 m | 500–1500 m | > 1500 m | Total |
| Altitude release: 200 m | | | | |
| Ocean | 43% | 38% | 15% | 96% |
| Island | 2% | 1% | 1% | 4% |
| Altitude release: 1000 m | | | | |
| Ocean | 19% | 42% | 27% | 88% |
| Island | 2% | 7% | 4% | 12% |
| Altitude release: 1500 m | | | | |
| Ocean | 8% | 41% | 39% | 88% |
| Island | 2% | 8% | 3% | 13% |
| FLEXPART simulation. Flight: F6 12h-simulation | | | | |
| Altitude release: 1500 m | | | | |
| Ocean | 0.0% | 35% | 65% | 100% |
| Island | 0.0% | 0.0% | 0.0% | 0.0% |

References

- Andreae, M., Rosenfeld, D., 2008. Aerosol–cloud–precipitation interactions. part 1. the nature and sources of cloud-active aerosols. *Earth Sci. Rev.* 89, 13–41.
- Angström, A., 1961. Techniques of determining the turbidity of the atmosphere. *Tellus* 13, 214–223. <https://doi.org/10.3402/tellusa.v13i2.9493>.
- Baray, J.L., Courcoux, Y., Keckhut, P., Portafaix, T., Tulet, P., Cammas, J.P., Hauchecorne, A., Godin-Beekmann, S., De Mazière, M., Hermans, C., Desmet, F., Sellegri, K., Colomb, A., Ramonet, M., Sciare, J., Vuillemin, C., Hoareau, C., Dionisi, D., Duflot, V., Vérèmes, H., Porteneuve, J., Gabarrot, F., Gaudo, T., Metzger, J.M., Payen, G., Leclair De Bellevue, J., Barthe, C., Posny, F., Abchiche, A., Delmas, R., Ricaud, P., 2013. Maïdo observatory: a new high-altitude station facility at Reunion Island (21° S, 55° E) for long-term atmospheric remote sensing and in situ measurements. *Atmospheric Measurement Techniques* 6, 2865–2877. <https://doi.org/10.5194/amt-6-2865-2013>.
- Bielli, S., Barthe, C., Bousquet, O., Tulet, P., Pianezze, J., 2021. The effect of atmosphere-ocean coupling on the structure and intensity of tropical cyclone bejisa in the southwest indian ocean. *Atmosphere* 12. <https://doi.org/10.3390/atmos12060688>.
- Bousquet, O., Barbary, D., Bielli, S., Kebir, ., Raynaud, L., Malardel, S., Faure, G., 2020. An evaluation of tropical cyclone forecast in the southwest indian ocean basin with arome-indian ocean convection-permitting numerical weather predicting system. *Atmos. Sci. Lett.* 21, e950 <https://doi.org/10.1002/asl.950>.
- Bozzo, A., Benedetti, A., Flemming, J., Kipling, Z., Rémy, S., 2020. An aerosol climatology for global models based on the tropospheric aerosol scheme in the integrated forecasting system of ecmwf. *Geosci. Model Dev. (GMD)* 13, 1007–1034. <https://doi.org/10.5194/gmd-13-1007-2020>.
- Crumevolle, S., Manninen, H.E., Sellegri, K., Roberts, G., Gomes, L., Kulmala, M., Weigel, R., Laj, P., Schwarzenboeck, A., 2010. New particle formation events measured on board the ATR-42 aircraft during the EUCAARI campaign. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 6721–6735. <https://doi.org/10.5194/acp-10-6721-2010>.
- Duflot, V., Tulet, P., Flores, O., Barthe, C., Colomb, A., Deguillaume, L., Vaïtilingom, M., Perring, A., Huffman, A., Hernandez, M.T., Sellegri, K., Robinson, E., O'Connor, D.J., Gomez, O.M., Burnet, F., Bourriane, T., Strasberg, D., Rocco, M., Bertram, A.K., Chazette, P., Totems, J., Fournel, J., Stamenoff, P., Metzger, J.M., Chabasset, M., Rousseau, C., Bourriane, E., Sancelme, M., Delort, A.M., Wegener, R.E., Chou, C., Elizondo, P., 2019. Preliminary results from the farce 2015 campaign: multidisciplinary study of the forest–gas–aerosol–cloud system on the tropical island of la réunion. *Atmos. Chem. Phys.* 19, 10591–10618. <https://doi.org/10.5194/acp-19-10591-2019>.
- Eleftheriadis, K., Colbeck, I., Housiadas, C., Lazaridis, M., Mihalopoulos, N., Mitsakou, C., Smolík, J., Ždímal, V., 2006. Size distribution, composition and origin of the submicron aerosol in the marine boundary layer during the eastern mediterranean “sub-aero” experiment. *Atmos. Environ.* 40, 6245–6260. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.03.059>.
- Foucart, B., Sellegri, K., Tulet, P., Rose, C., Metzger, J.M., Picard, D., 2018. High occurrence of new particle formation events at the maïdo high-altitude observatory (2150 m), réunion (indian ocean). *Atmos. Chem. Phys.* 18, 9243–9261. <https://doi.org/10.5194/acp-18-9243-2018>.
- Gantt, B., Meskhidze, N., 2013. The physical and chemical characteristics of marine primary organic aerosol: a review. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 3979–3996.
- Gao, R.S., Telg, H., McLaughlin, R.J., Ciciora, S.J., Watts, L.A., Richardson, M.S., Schwarz, J.P., Perring, A.E., Thornberry, T.D., Rollins, A.W., Markovic, M.Z., Bates, T.S., Johnson, J.E., Fahey, D.W., 2016. A light-weight, high-sensitivity particle spectrometer for pm_{2.5} aerosol measurements. *Aerosol. Sci. Technol.* 50, 88–99. <https://doi.org/10.1080/02786826.2015.1131809>.
- Guilpart, E., Vimeux, F., Evan, S., Brioude, J., Metzger, J.M., Barthe, C., Risi, C., Cattani, O., 2017. The isotopic composition of near-surface water vapor at the maïdo observatory (reunion island, southwestern indian ocean) documents the controls of the humidity of the subtropical troposphere. *J. Geophys. Res.: Atmosphere* 122, 9628–9650. <https://doi.org/10.1002/2017JD026791>.
- Hamill, P., Giordano, M., Ward, C., Giles, D., Holben, B., 2016. An aeronet-based aerosol classification using the mahalanobis distance. *Atmos. Environ.* 140, 213–233. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.06.002>.
- Holben, B., Eck, T., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J., Kaufman, Y., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., Smirnov, A., 1998. Aeronet—a federated instrument network and data archive for aerosol characterization. *Rem. Sens. Environ.* 66, 1–16. [https://doi.org/10.1016/S0034-4257\(98\)00031-5](https://doi.org/10.1016/S0034-4257(98)00031-5).
- Horowitz, Hannah M., Garland, Rebecca M., Thatcher, Marcus, Landman, Willem A., Dedekind, Zane, van der Merwe, Jacobus, Engelbrecht, Francois A., 2017. Evaluation of climate model aerosol seasonal and spatial variability over Africa using AERONET. *Atmos. Chem. Phys.* 17, 13999–14023. <https://doi.org/10.5194/acp-17-13999-2017>.
- Inness, A., Baier, F., Benedetti, A., Bouarar, I., Chabrilat, S., Clark, H., Clerbaux, C., Coheur, P., Engelen, R.J., Errera, Q., Flemming, J., George, M., Granier, C., Hadji-Lazarou, J., Huijnen, V., Hurtmans, D., Jones, L., Kaiser, J.W., Kapsomenakis, J., Lefever, K., Leitão, J., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M.G., Simmons, A.J., Suttie, M., Stein, O., Thépaut, J.N., Thouret, V., Vrekoussis, M., Zerefos, C., 2013. The MACC reanalysis: an 8 yr data set of atmospheric composition. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 4073–4109. <https://doi.org/10.5194/acp-13-4073-2013>.
- Karol, Y., Tanré, D., Goloub, P., Vervaerde, C., Balois, J.Y., Blarel, L., Podvin, T., Mortier, A., Chaikovskiy, A., 2013. Airborne sun photometer plasma: concept, measurements, comparison of aerosol extinction vertical profile with lidar. *Atmospheric Measurement Techniques* 6. <https://doi.org/10.5194/amt-6-2383-2013>.
- Koren, I., Dagan, G., Altartaz, O., 2014. From aerosol-limited to invigoration of warm convective clouds. *Science* 344, 1143–1146. <https://doi.org/10.1126/science.1252595>.
- Kusmierczyk-Michulec, J., de Leeuw, G., Gonzalez, C.R., 2002. Empirical relationships between aerosol mass concentrations and Ångström parameter. *Geophys. Res. Lett.* 29 (49), 1–49. <https://doi.org/10.1029/2001GL014128>, 4.
- Lac, C., Chaboureaud, J.P., Masson, V., Pinty, J.P., Tulet, P., Escobar, J., Leriche, M., Barthe, C., Aouizerats, B., Augros, C., Aumond, P., Auguste, F., Bechtold, P., Berthet, S., Bielli, S., Bosseur, F., Caumont, O., Cohard, J.M., Colin, J., Couvreux, F., Cuxart, J., Delautier, G., Dauhut, T., Ducrocq, V., Filippi, J.B., Gazen, D., Geoffroy, O., Gheusi, F., Honnert, R., Lafore, J.P., Lebeaupin Brossier, C., Libois, Q., Lunet, T., Mari, C., Maric, T., Mascart, P., Mogé, M., Molinié, G., Nuissier, O., Pantillon, F., Peyrillé, P., Pergaud, J., Perraud, E., Pianezze, J., Redelsperger, J.L., Ricard, D., Richard, E., Riette, S., Rodier, Q., Schoetter, R., Seyfried, L., Stein, J., Suhre, K., Taufour, M., Thouron, O., Turner, S., Verrelle, A., Vié, B., Visentin, F., Vionnet, V., Wautelet, P., 2018. Overview of the meso-nh model version 5.4 and its applications. *Geosci. Model Dev. (GMD)* 11, 1929. <https://doi.org/10.5194/gmd-11-1929-2018>.
- Lafore, J.P., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Hérel, P., Mascart, P., Masson, V., Pinty, J.P., Redelsperger, J.L., Richard, E., Vilà-Guerau de Arellano, J., 1998. The meso-nh atmospheric simulation system. part i: adiabatic formulation and control simulations. *Ann. Geophys.* 16, 90–109. <https://doi.org/10.1007/s00585-997-0090-6>.
- Lesouéf, D., Gheusi, F., Chazette, P., Delmas, R., Sanak, J., 2013. Low tropospheric layers over reunion island in lidar-derived observations and a high-resolution model. *Boundary-Layer Meteorol.* 149, 425–453. <https://doi.org/10.1007/s10546-013-9851-9>.
- Louf, V., Pujol, O., Sauvageot, H., Riédi, J., 2015. Seasonal and diurnal water vapour distribution in the sahelian area from microwave radiometric profiling observations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 141, 2643–2653. <https://doi.org/10.1002/qj.2550>.
- Luo, T., Yuan, R., Wang, Z., 2014. On factors controlling marine boundary layer aerosol optical depth. *J. Geophys. Res.: Atmosphere* 119, 3321–3334. <https://doi.org/10.1002/2013JD020936>.
- Mallet, P.E., Pujol, O., Brioude, J., Evan, S., Jensen, A., 2018. Marine aerosol distribution and variability over the pristine southern indian ocean. *Atmos. Environ.* 182, 17–30. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.03.016>.
- Morcrette, J.J., Boucher, O., Jones, L., Salmond, D., Bechtold, P., Beljaars, A., Benedetti, A., Bonet, A., Kaiser, J.W., Razinger, M., Schulz, M., Serrar, S., Simmons, A.J., Sofiev, M., Suttie, M., Tompkins, A.M., Untch, A., 2009. Aerosol analysis and forecast in the european center for medium-range weather forecasts integrated forecast system: toward modeling. *J. Geophys. Res.: Atmosphere* 114. <https://doi.org/10.1029/2008JD011235>.
- Myhre, G., Shindell, D., Bréon, F.M., Collins, W., Fuglestedt, J., Huang, J., Koch, D., Lamarque, J.F., Lee, D., Mendoza, B., Nakajima, T., Robock, A., Stephens, G., Takemura, T., Zhang, H., 2013. *Anthropogenic and Natural Radiative Forcing*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, pp. 659–740. <https://doi.org/10.1017/CBO9781107415324.018> book section 8.
- O'Dowd, C.D., de Leeuw, G., 2007. Marine aerosol production: a review of the current knowledge. *Phil. Trans. Math. Phys. Eng. Sci.* 365, 1753–1774. <https://doi.org/10.1098/rsta.2007.2043>.
- Pant, V., Deshpande, C., Kamra, A., 2009. The concentration and number size distribution measurements of the marine boundary layer aerosols over the indian ocean. *Atmos. Res.* 92, 381–393. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2008.12.004>.
- Popovici, I., Goloub, P., Mortier, A., Podvin, T., Blarel, L., Loisel, R., Deroo, C., Victori, S., Torres, B., Unga, F., Choël, M., 2018. Un système mobile pour l'étude de la distribution verticale des aérosols dans l'atmosphère : description et premiers résultats. *Pollut. Atmos.* <https://doi.org/10.4267/pollution-atmospherique.6510> [Online] 236.
- Pujol, Olivier, Jensen, Andrew, 2019. Cloud–rain predator–prey interactions: Analyzing some properties of the Koren–Feingold model and introduction of a new species-competition bulk system with a Hopf bifurcation. *Phys. Nonlinear Phenom.* 399, 86–94.
- Ramachandran, S., 2004. Spectral aerosol optical characteristics during the northeast monsoon over the arabian sea and the tropical indian ocean: 1. aerosol optical depths and their variabilities. *J. Geophys. Res.: Atmosphere* 109. <https://doi.org/10.1029/2003JD004476>.
- Schuster, G.L., Dubovik, O., Holben, B.N., 2006. Ångström exponent and bimodal aerosol size distributions. *Journal of Geophysical Research - Atmospheres* 111.
- Schwier, A., Sellegri, K., Mas, S., Charrière, B., Pey, J., Rose, C., Temime-Roussel, B., Jaffrezo, J.L., Parin, D., Picard, D., Ribeiro, M., Roberts, G., Sempere, R., Marchand, N., D'Anna, B., 2017. Primary marine aerosol physical flux and chemical composition during a nutrient enrichment experiment in mesocosms in the Mediterranean Sea. *Atmos. Chem. Phys.* 17, 14645–14660. <https://doi.org/10.5194/acp-17-14645-2017>.
- Seity, Y., Brousseau, P., Malardel, S., Hello, G., Bénard, P., Bouttier, F., Lac, C., Masson, V., 2011. The arome-france convective-scale operational model. *Mon. Weather Rev.* 139, 976–991.

- Stohl, A., Sodemann, H., Eckhardt, S., Frank, A., Seibert, P., Wotawa, G., 2015. The Lagrangian particle dispersion model flexpart version 8.2. <https://www.flexpart.eu/wiki/FpDocumentation>.
- Verreyken, B., Amelynck, C., Schoon, N., Müller, J.F., Brioude, J., Kumps, N., Hermans, C., Metzger, J.M., Stavrakou, T., 2021. Measurement report: source apportionment of volatile organic compounds at the remote high-altitude maïdo observatory. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions 2021 1–37. <https://doi.org/10.5194/acp-2021-124>.
- Verreyken, B., Brioude, J., Evan, S., 2019. Development of turbulent scheme in the flexpart-arome v1.2.1 Lagrangian particle dispersion model. Geosci. Model Dev. (GMD) 12, 4245–4259. <https://doi.org/10.5194/gmd-12-4245-2019>.

Troisième partie

Modélisation de l'interaction aérosols-vapeur d'eau-nuages au-dessus de l'océan Indien

Modèle de type proie-prédateur

Sommaire du présent chapitre

| | |
|--|------------|
| 5.1 Contexte & objectifs | 79 |
| 5.1.1 Modèle de PUJOL et JENSEN 2019 | 80 |
| 5.1.2 Introduction de la vapeur d'eau dans le modèle . . . | 83 |
| 5.1.3 Contexte et ajustement des constantes | 86 |
| 5.2 Résultats | 91 |
| 5.2.1 Pour un nuage individuel | 92 |
| 5.2.2 Pour un champ de nuages sur une grille 2D | 96 |
| 5.3 Conclusions | 107 |
| 5.4 MASCAUT et al. (2023) | 109 |
| 5.4.1 Commentaire critique sur le modèle proposé | 110 |
| 5.4.2 Réponses à quelques questions | 112 |

5.1 Contexte & objectifs

Nous avons évoqué, au Chapitre 2, l'intérêt que peut offrir une modélisation simplifiée, mais physiquement réaliste, pour la compréhension du comportement de phénomènes spécifiques du système climatique. C'est au travers d'une

telle modélisation que nous étudions les interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages-pluie. Pour cela, nous nous appuyons sur le modèle de O. PUJOL et JENSEN 2019, qui ont proposé un système d'équations pour décrire certaines caractéristiques macroscopiques des interactions aérosols-nuages-pluie en s'inspirant de la théorie de la compétition des espèces (utilisée en biologie par exemple); ce modèle présente alors un comportement de type proie-prédateur.

5.1.1 Modèle de PUJOL et JENSEN 2019

O. PUJOL et JENSEN 2019 proposent le système d'équations différentielles couplées du premier ordre suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dL_c}{dt} = \underbrace{A_c L_c}_1 - \underbrace{K N_d^{-2} L_c^4}_{\text{Auto-conversion}} - \underbrace{k_r L_c L_r}_{\text{Accretion}} \\ \frac{dL_r}{dt} = - \underbrace{A_r L_r}_1 + \underbrace{K N_d^{-2} L_c^4}_{\text{Auto-conversion}} + \underbrace{k_r L_c L_r}_{\text{Accretion}} \\ \frac{dN_d}{dt} = \underbrace{A_c (N_0 - N_d)}_2 - \underbrace{k_c L_c^2}_{\text{Auto-collection}} - \underbrace{k_r L_r N_d}_{\text{Accretion}} \end{array} \right. \quad (5.1)$$

Dans ce système, les populations (degrés de liberté) sont la teneur en eau des nuages L_c (en gm^{-3}), la teneur en eau de pluie L_r (en gm^{-3}) et la concentration (en nombre) de gouttelettes nuageuses N_d (en cm^{-3}). Ces populations sont couplées entre elles (Éqs. 5.1), et dans cette configuration, N_0 (en cm^{-3}) est la concentration de fond en aérosols : la quantité qui alimente le modèle (en rouge dans le système 5.1).

La signification physique et les valeurs des différentes constantes impliquées, à savoir l'ensemble $\{A_c, A_r, K, k_r, k_c\}$, sont résumées dans le Tableau 5.1. Les échelles de temps de l'évolution des contenus en eau des nuages et de pluie sont définies, respectivement, par $\tau_c = 1/A_c$ et $\tau_r = 1/|A_r|$. Dans un premier temps, la teneur en eau des nuages et le contenu en eau de pluie sont supposés évoluer sur les échelles de temps $\tau_c = 50 \text{ min}$ et $\tau_r = 10 \text{ min}$. On a ainsi $\tau_c \geq \tau_r$ car la formation de précipitations est un processus rapide par rapport à l'évolution du contenu en eau des nuages. Les valeurs des constantes cinétiques k_c et k_r

sont choisies d'après SEIFERT et BEHENG 2001. Enfin, la constante K représente la probabilité qu'il y ait, dans un nuage, collision entre deux gouttes et est définie selon l'étude de LONG 1974. Ces constantes théoriques sont un bon point de départ pour décrire mathématiquement les processus considérés. Cependant, nous montrerons par la suite que les valeurs de ces constantes peuvent être affinées et optimisées selon les conditions météorologiques étudiées.

TABEAU 5.1 – Détails (processus physiques représentés, valeurs et unités SI) des différentes constantes dans les Éqs. 5.1 (O. PUJOL et JENSEN 2019).

| Cstes cinétiques | Signification physique | Valeur et unité SI |
|------------------|---|--|
| A_c | Constante positive (terme source ou puit) qui donne l'échelle de temps ($\tau_c = 1/A_c \simeq 50$ min) de l'évolution du contenu en eau du nuage | $0,02 \text{ min}^{-1}$ |
| A_r | Constante positive (terme source ou puit) qui donne l'échelle de temps ($\tau_r = 1/ A_r \simeq 10$ min) de l'évolution du contenu en eau de pluie (processus de formation de précipitations) | $0,1 \text{ min}^{-1}$ |
| k_c | Constante du noyau de l'eau nuageuse (SEIFERT et BEHENG 2001) | $7,55 \times 10^{11} \text{ cm}^3 \text{ g}^{-2} \text{ min}^{-1}$ |
| k_r | Constante du noyau de l'eau de pluie (SEIFERT et BEHENG 2001) | $3,47 \times 10^5 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-2} \text{ min}^{-1}$ |
| K | $K = [k_c/(20x^*)](\nu + 2)(\nu + 4)(\nu + 1)^{-2}$ où x^* est la masse des gouttes nuageuses séparant les gouttelettes des gouttes de pluie, et $\nu = 2$ est le paramètre de forme de la distribution gamma (LONG 1974) | $3,41 \times 10^{17} \text{ cm}^3 \text{ g}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |

Chaque terme des équations 5.1 représente, à chaque pas de temps : (i) les sources/puits de L_c ou L_r pour les premiers termes notés 1 et 2 dans le système ; (ii) l'auto-conversion et l'auto-collection pour le second terme et (iii) l'accrétion

pour le troisième et dernier terme. Ces différents termes, et en particulier l'auto-conversion et l'accrétion, ont été déterminés d'après SEIFERT et BEHENG 2001 et PRUPPACHER et KLETT 2010. L'ensemble du système d'équations n'est pas rigoureusement équivalent à un modèle de compétition à trois espèces, mais il s'en inspire. Le terme d'auto-conversion (2^{nd} terme des équations de \dot{L}_c et \dot{L}_r), qui modifie le système traditionnel prédateur-proie, dépend du comportement de N_d , lequel est déterminé par la troisième équation, à savoir celle de \dot{N}_d .

Ce système d'équations a été testé avec différentes valeurs (théoriques) de concentration de fond en aérosols (N_0). Le modèle présente un comportement oscillatoire réaliste du système aérosols-nuages-pluie (Fig. 5.1), en particulier un délai entre la formation des nuages et l'apparition de la pluie de quelques dizaines de minutes ($\approx 20-30$ min), en accord avec ceux qui est généralement observé (voir par exemple YAU et ROGERS 1996; cf. Chapitre 1). Sur la Figure 5.1, nous constatons que N_d et L_c augmentent initialement (le premier plus rapidement que le second) jusqu'à ce que la pluie apparaisse. Peu de temps après, le contenu en eau de pluie (L_r) et la concentration de gouttelettes (N_d) diminuent considérablement en un court intervalle de temps. L_c atteint ses valeurs minimales et le contenu en eau de pluie (L_r) diminue jusqu'à zéro. Ce comportement oscillatoire se répète ensuite de manière périodique. Nous avons évalué le système d'équations avec différentes conditions initiales et fonctions de N_0 (constantes ou dépendantes du temps *via* un sinus, un signal carré, etc...); dans certains cas, notamment lorsque la valeur de N_0 introduite dans le système est inférieure à la valeur initiale $N_d(0)$, le système n'est pas suffisamment alimenté, oscille puis s'amortit au cours du temps (exemples donnés Figs.3 et 4 dans l'étude de O. PUJOL et JENSEN 2019).

Dans ce modèle, un nuage est considéré comme un système physique défini par les variables macroscopiques L_c , L_r et N_d dont les valeurs calculées sont uniques, c'est-à-dire qu'elles concernent l'ensemble du nuage (il n'y a pas de variation spatiale). Certaines propriétés macroscopiques des interactions nuages-précipitations sont alors mises en évidence à l'aide de ces trois équations relativement simples. Ainsi, le modèle semble reproduire, de façon réaliste, le comportement du système nuage-pluie. Le lecteur est invité à lire les détails du fonctionnement du modèle de O. PUJOL et JENSEN 2019, qui sert de base au

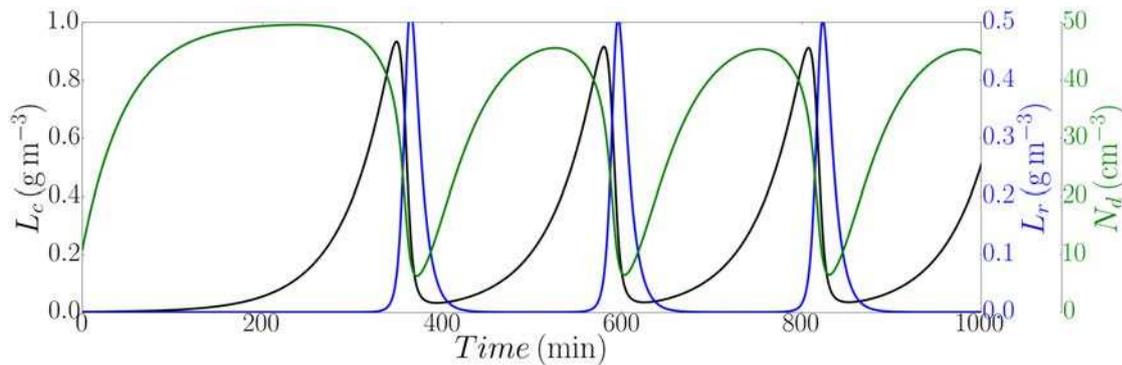


FIGURE 5.1 – Évolutions de L_c , L_r et N_d avec les valeurs théoriques du Tableau 5.1 pour les constantes (Fig.2; O. PUJOL et JENSEN 2019).

modèle présenté ici.

5.1.2 Introduction de la vapeur d'eau dans le modèle

Dans le cycle de vie des nuages et des précipitations, non seulement les aérosols (précisément les noyaux de condensation des nuages, CCN) sont importants, mais la vapeur d'eau est également un élément clé (voir Chapitres 1 et 2). Sans vapeur d'eau, ou trop peu, pas de nuages, quelle que soit la quantité d'aérosols. La vie des nuages (naissance, croissance, mort) est un jeu subtil entre la vapeur d'eau et les aérosols. Ici, notre étude se déroule dans un contexte océanique, dominé par les aérosols marins (voir Chapitre 3), des particules hydrophiles et hygroscopiques (leurs propriétés optiques varient en fonction de l'humidité atmosphérique, par exemple). Ainsi, l'ajout de la vapeur d'eau dans le modèle précédent permettrait de mieux analyser la formation des nuages, dans le contexte choisi, ou dit autrement la sensibilité des relations entre les contenus en aérosols marins et en humidité atmosphérique.

C'est pourquoi, le modèle de O. PUJOL et JENSEN 2019 a été généralisé en introduisant *explicitement* la vapeur d'eau (L_v) au travers d'une quatrième variable dans le système d'équations. L'ajout d'un paramètre supplémentaire ne modifie que légèrement les équations initiales; les changements sont mis en évidence par les accolades dans les Éqs. 5.2 qui définissent le nouveau modèle. Comme précédemment, L_c représente le contenu en eau du nuage, L_r le contenu en eau

de pluie, N_d la concentration en nombre de gouttelettes du nuage et L_v la vapeur d'eau qui est une donnée d'entrée du modèle au même titre que N_0 (en rouge dans les Éqs. 5.2).

$$\begin{cases} \frac{dL_c}{dt} = \alpha A_c \underbrace{(L_v - L_c)} - KN_d^{-2} L_c^4 - k_r L_c L_r \\ \frac{dL_r}{dt} = -A_r L_r + KN_d^{-2} L_c^4 + k_r L_c L_r \\ \frac{dN_d}{dt} = A'_c \underbrace{(L_v - L_c)} (N_0 - N_d) - k_c L_c^2 - k_r L_r N_d \end{cases} \quad (5.2)$$

Dans ce système d'équations, les constantes cinétiques $\{A_r, A_c, k_c, k_r, K\}$ sont, dans un premier temps, définies comme précédemment (O. PUJOL et JENSEN 2019 et Table 5.1). Nous posons $A'_c = A_c/x^*$, où $x^* = 2,6 \times 10^{-7}$ g est la masse des gouttes nuageuses séparant les gouttelettes des gouttes de pluie. Le paramètre α est un nombre binaire qui vaut 0 ou 1 selon l'humidité relative RH . Sa variation dans le temps dépend d'une valeur seuil d'humidité relative (selon la zone d'étude) pour laquelle α prend la valeur 0 ou 1. Par exemple, si $RH(t) \geq 95\%$, $\alpha = 1$ sinon $\alpha = 0$. Par conséquent, la formation de gouttelettes nuageuses dépend directement de l'humidité relative. Ce système d'équations est alors fondé sur le principe « RH-scheme » (cf Chapitre 2).

Dans ce nouveau jeu d'équations, les paramètres permettent de déterminer trois autres grandeurs physiques :

- $L_{c,d} = L_v - L_c$ s'identifie au contenu en eau nuageuse potentiellement disponible, c'est-à-dire si la vapeur d'eau se condense (en gm^{-3});
- $N_a = N_0 - N_d$ est la concentration de CCN dans le système en supposant qu'une gouttelette formée correspond à un aérosol. Ainsi, N_a est le nombre d'aérosols capables de condenser la vapeur d'eau (en cm^{-3}).
- $L_l = L_r + L_c$ représente la quantité d'eau liquide dans le système (en gm^{-3})

Bien que nous utilisions le système d'équations 5.2 dans ce manuscrit, les équations peuvent être réécrites à partir des trois grandeurs $L_{c,d}, L_l$ et N_a de la manière suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{dL_{c,d}}{dt} = \frac{dL_v}{dt} - \alpha A_c L_{c,d} + K(N_0 - N_a)^{-2}(L_v - L_{c,d})^4 + k_r(L_v - L_{c,d})(L_l + L_{c,d} - L_v) \\ \frac{dL_l}{dt} = \alpha A_c L_{c,d} - A_r(L_l + L_{c,d} - L_v) \\ \frac{dN_a}{dt} = \frac{dN_0}{dt} - A'_c L_{c,d} N_a + k_c(L_v - L_{c,d})^2 - k_r(L_l + L_{c,d} - L_v)(N_a - N_0) \end{array} \right. \quad (5.3)$$

En parallèle, nous avons utilisé les formules de SEINFELD et PANDIS 1998 (Éqs. 5.4) afin d'évaluer l'albedo (R_c) et l'épaisseur optique des nuages (Cloud Optical Thickness – COT). Ce dernier dépend du contenu en eau du nuage (L_c), de son épaisseur (h) et de la concentration en aérosols (N_d). Selon la valeur du COT et l'altitude à laquelle on se place, il est possible de déterminer la nature d'un nuage (Fig. 5.2). Ces propriétés optiques sont présentées et analysées de façon plus détaillée dans l'article de la Section 5.4.

$$COT = h \left(\frac{9\pi N_d L_c^2}{2\rho_w^2} \right)^{1/3} \quad \text{et} \quad R_c = \frac{COT}{COT + 7,7} \quad (5.4)$$

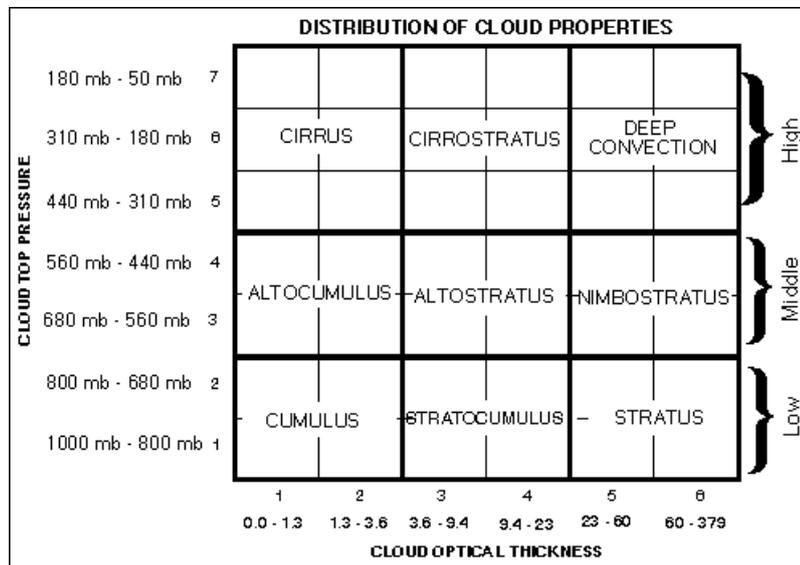


FIGURE 5.2 – Classification des types de nuages en fonction de leur altitude et de la valeur de leur COT. Source : NASA

5.1.3 Contexte et ajustement des constantes

Données d'entrées pour trois cas d'étude

Ce modèle, défini par les équations 5.2, est testé dans trois situations météorologiques différentes. Le modèle nécessite des données d'entrée, notamment la concentration de fond en aérosol (N_0 en cm^{-3}), le contenu en vapeur d'eau (L_v en g m^{-3}) et l'humidité relative (RH en %) pour déterminer α . Nous alimentons alors notre modèle avec des mesures *in-situ* pour les trois situations ci-dessous :

- ❶ À l'Observatoire du Maïdo, à une altitude de 2,2 km au-dessus du niveau de la mer (cf Chapitre 3);
- ❷ À Saint Denis de la Réunion, dont le contexte est décrit dans le Chapitre 3;
- ❸ Dans un contexte urbain/continental à Lille (France). Lille est située dans la Région Hauts-de-France, qui est un territoire au relief peu marqué, doté de zones fortement urbanisées, industrialisées mais aussi rurales. Elle est au carrefour de masses d'air atmosphérique enrichies en éléments gazeux et particulaires (naturels et anthropiques), provenant de régions parfois très éloignées (BOVCHALIUK et al. 2016; CHEN et al. 2022; LAJ et al. 2020; MORTIER et al. 2013). La station ATOLL (ATmospheric Observations in liLLe) permet de suivre et d'étudier la composition aérosols-nuages-gaz, et son évolution dans la troposphère de l'extrême Nord de la France.

Ces trois cas d'étude permettent d'évaluer les interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages-pluie dans des conditions pristines et dans une région urbaine continentale où la contribution anthropique aux concentrations d'aérosols est, au contraire, majoritaire.

Les données expérimentales associées à ces cas d'étude sont les mesures *in-situ* de la campagne AEROMARINE à Saint Denis (Chapitre 4), celles de l'Observatoire du Maïdo (Chapitre 3) et les mesures de la plateforme ATOLL à Lille. Les données d'humidité proviennent de radiomètres micro-ondes (RPG-HATPRO G5) et les concentrations en aérosols sont fournies par des compteurs de particules TSI ou SMPS (instruments présentés dans l'article Sec. 5.4).

❶ Dans le cas de l'Observatoire du Maïdo :

Au Maïdo, les concentrations d'aérosols et les humidités (relative et absolue) mesurées à 1 km au-dessus de l'instrument, ont été introduites dans notre

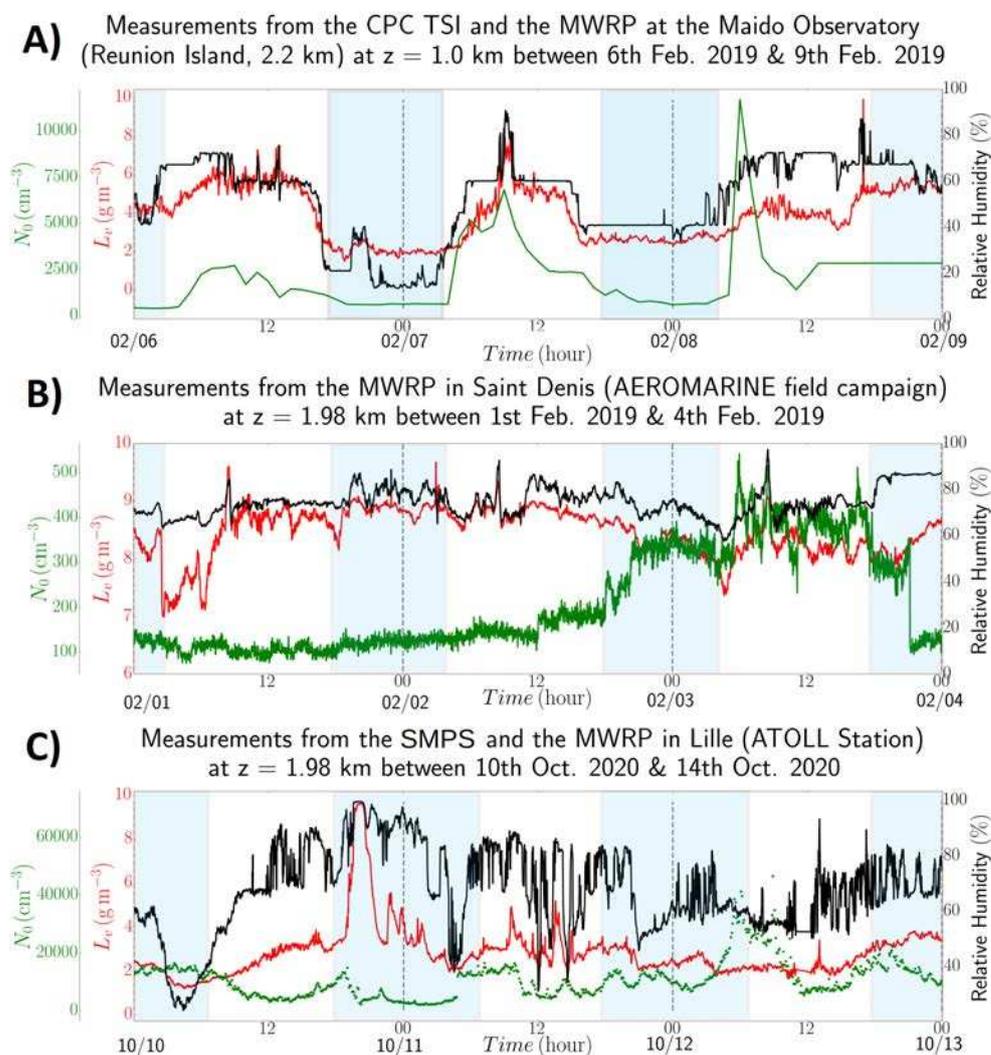


FIGURE 5.3 – Évolution de L_c (en g m^{-3}), RH (en %) et N_0 (en cm^{-3}) pour trois situations différentes : A) Observatoire du Maïdo, du 6 au 9 février 2019; B) Saint-Denis (île de la Réunion), lors de la campagne AEROMARINE, du 1er au 4 février 2019, et C) station ATOLL (Univ. Lille), du 10 au 14 octobre 2020. Les zones bleues dans les sous-figures correspondent aux mesures de nuit.

modèle avec un pas de temps de $\Delta t = 1$ min (Fig. 5.3A). On constate que les concentrations d'aérosols sont faibles pendant la nuit ($N_0 \approx 1000 \text{ cm}^{-3}$), lorsque l'Observatoire est situé dans la troposphère libre. Le jour, sous l'influence de la couche limite marine, le N_0 peut atteindre des valeurs jusqu'à 10000 cm^{-3} . Le même comportement peut être observé pour l'humidité : la nuit, $RH \approx 40\%$ et

$L_v \simeq 2 \text{ gm}^{-3}$; pendant la journée, l'humidité relative est nettement supérieure à 40% et peut culminer à près de 90%. Le Maïdo offre ainsi des situations avec des différences nocturnes/diurnes bien marquées caractérisées par des valeurs relativement faibles (élevées) de N_0 , L_v et RH pendant la nuit (journée). Ceci est lié à une importante interaction entre brises mer-terre, vents catabatiques et une topographie complexe. Les masses d'air à l'Observatoire du Maïdo ont alors des origines diverses (océaniques, issues de la végétation présente sur les pentes du Maïdo ou des activités humaines locales). Les aérosols mesurés ont donc des propriétés physico-chimiques variées et les paramètres thermodynamiques sont assez variables.

② Dans le cas de Saint Denis (campagne AEROMARINE) :

La Figure 5.3B montre les évolutions de N_0 , L_v et RH à Saint Denis. On peut voir que L_v varie entre 7 gm^{-3} et 10 gm^{-3} , et RH entre 75 % et 85%. Leur évolution est plutôt stable, sans variation significative en moyenne. De même, N_0 est compris entre 100 cm^{-3} et 500 cm^{-3} . Ces valeurs sont bien inférieures à celles mesurées à l'Observatoire du Maïdo. Ceci peut s'expliquer par le fait que les concentrations en vol sont mesurées dans la troposphère libre lors de la campagne AEROMARINE et sont majoritairement d'origine marine (cf Chapitre 4), alors qu'à l'Observatoire, les aérosols sont d'origines différentes.

③ Dans le cas de Lille (station ATOLL) :

La Figure 5.3C montre un exemple de mesures de la station ATOLL. On peut observer que N_0 vaut $2 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ (en moyenne), avec un pic à environ $4 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$, ce qui est beaucoup plus élevé que dans l'océan Indien (conditions pristes). De plus, la valeur de L_v à Lille (latitude moyenne) est globalement plus faible (autour de 3 gm^{-3}) que dans la zone Tropicale de La Réunion.

Ces trois milieux sont donc intéressants pour un modèle de formation des nuages, du fait des comportements différents qu'ils représentent en termes d'humidité et de concentration en aérosols : séparation diurne/nocturne bien marquée (cas du Maïdo), conditions relativement stables avec des valeurs de N_0 faibles et des valeurs de L_v élevées (cas de Saint-Denis), et évolutions rapides de N_0 et L_v (contexte urbain lillois).

Ajustement des constantes cinétiques pour chaque cas d'étude

Le modèle (Éqs. 5.2) utilise un ensemble de constantes cinétiques $\{K; k_r; k_c; A_c; A_r\}$ dont les valeurs, présentées dans le Tableau 5.1, permettent de former des nuages avec des caractéristiques macroscopiques réalistes, comme l'ordre de grandeur et l'évolution des contenus en eau des nuages et de pluie (L_c, L_r). Néanmoins, afin d'améliorer les performances du modèle, ces constantes cinétiques peuvent être adaptées à la région considérée. De cette façon, la meilleure combinaison de constantes cinétiques peut être obtenue pour reproduire l'évolution des mesures *in-situ*. La méthode d'ajustement consiste à utiliser une technique de minimisation par les moindres carrés. La procédure que nous avons développée est la suivante :

1. pour chaque constante cinétique, on définit un intervalle de valeurs physiquement possibles (2^{eme} et 3^{eme} colonne du Tableau 5.2). Chaque intervalle contient un nombre suffisant de valeurs (4^{eme} colonne), l'une d'elles étant la valeur « initiale » donnée dans le Tableau 5.1. À partir de là, nous définissons donc un grand nombre d'ensembles indépendants de constantes cinétiques.
2. Nous effectuons ensuite N tirages aléatoires dans chaque intervalle. Cela signifie que pour *un* tirage, nous avons un sextuplet (six valeurs) aléatoires. Après N tirages, nous avons un ensemble de N sextuplets indépendants de constantes cinétiques.
3. Chaque sextuplet est introduit dans le modèle qui fonctionne pendant un certain temps (72h pour les simulations de la section suivante). Nous exécutons le modèle N fois avec les mêmes conditions initiales, mais, chaque fois, avec un ensemble différent de valeurs des constantes cinétiques.
4. Pour une exécution donnée, à chaque instant, nous comparons le contenu en eau des nuages modélisé, $L_c^{(mod)}(t)$, avec le contenu en eau des nuages mesuré, $L_c^{(obs)}(t)$, et nous définissons le score suivant :

$$S(n) = \frac{1}{t_f} \sum_{t_i}^{t_f} \left[L_c^{(mod)}(t) - L_c^{(obs)}(t) \right]^2 \quad (5.5)$$

Avec t_i le temps initial de la simulation ($t_i = 0$) et t_f le temps final. L'Équation 5.5 ci-dessus définit une fonction de n qui est l'entier permettant d'identifier un tirage au sort ($1 \leq n \leq N$) : elle donne le score S pour le tirage au sort numéro n . Ainsi, avec N tirages, nous avons N valeurs de $S(n)$.

- Le numéro de tirage n pour lequel S est minimum est finalement repéré et le sextuplet correspondant est choisi. On suppose que les six valeurs qui le définissent constituent la meilleure combinaison des constantes cinétiques pour la formation des nuages dans l'environnement donné (maritime, continental, etc.) et la saison considérée.

Le Tableau 5.2 montre l'intervalle dans lequel chaque constante cinétique est tirée au sort ainsi que la meilleure combinaison obtenue par notre méthode pour chacun de nos cas d'étude (à l'Observatoire du Maïdo, à Saint Denis et à Lille).

TABLEAU 5.2 – Constantes cinétiques calculées par la méthode de minimisation des moindres carrés (voir texte pour les détails) en utilisant les observations dans trois cas d'étude.

| Constantes (unités SI) | Valeur mini- mum | Valeur maxi- mum | Nbre de va- leurs | Sites d'observation | | |
|--|------------------------|------------------------|----------------------------|--|---|-----------------------------|
| | | | | Observa- toire du Maïdo (La Réunion) | Campagne AEROMA- RINE (St Denis) | Lille (station ATOLL) |
| K ($\text{cm}^3 \text{g}^{-3} \text{min}^{-1}$) | $2,35 \times 10^{18}$ | $2,35 \times 10^{20}$ | 562 | $2,46 \times 10^{18}$ | $2,32 \times 10^{18}$ | $1,55 \times 10^{18}$ |
| k_r ($\text{cm}^3 \text{g}^{-2} \text{min}^{-1}$) | $1,47 \times 10^4$ | $1,47 \times 10^6$ | 147 | $1,3 \times 10^6$ | $1,2 \times 10^6$ | $1,3 \times 10^6$ |
| k_c ($\text{cm}^3 \text{g}^{-2} \text{min}^{-1}$) | $7,55 \times 10^{10}$ | $7,55 \times 10^{12}$ | 562 | $6,4 \times 10^{12}$ | $6,0 \times 10^{12}$ | $4,0 \times 10^{12}$ |
| A_c (min^{-1}) | 0,0167 | 0,167 | 10 | 0,024 | 0,0185 | 0,0185 |
| A_r (min^{-1}) | 0,0167 | 0,167 | 10 | 0,083 | 0,0167 | 0,0167 |
| A'_c (min^{-1}) | $6,4 \times 10^4$ | $6,4 \times 10^5$ | 10 | $9,2 \times 10^4$ | $7,1 \times 10^4$ | $7,1 \times 10^4$ |

L'intérêt d'ajuster les constantes cinétiques est celui-ci : ces constantes ont une origine théorique à laquelle s'ajoutent des considérations empiriques. En

général, les constantes cinétiques ne sont pas disponibles (du moins pas directement, ni même de manière relativement aisée) à partir des mesures. Le fait que différentes constantes ajustées aient été obtenues dans différentes situations météorologiques (voir Tableau 5.2) suggère que le système d'équations pourrait être utilisé, non seulement comme modèle de formation de nuages dans des situations données, mais aussi comme outil pour déterminer des valeurs optimisées pour les constantes cinétiques à partir d'observations dans un contexte déterminé. Ainsi, les constantes cinétiques, initialement théoriques, sont optimisées et deviennent accessibles à partir d'observations grâce à cette méthode.

Pour évaluer le réalisme de ce modèle, les résultats sont comparés aux mesures d'un radiomètre et d'un radar dans la section suivante. Puis, afin d'étudier l'organisation horizontale des champs de nuages, le modèle est transposé sur une grille bidimensionnelle au-dessus de l'océan Indien et au-dessus de la région Hauts-de-France (centrée autour de Lille). Les résultats sont ensuite comparés aux réanalyses ERA5 et à des observations par satellites.

5.2 Résultats

Pour commencer, nous prenons les conditions initiales suivantes pour tous les cas d'études considérés : $L_c(0) = L_r(0) = 10^{-4} \text{ g m}^{-3}$, et $N_d(0) = 100 \text{ cm}^{-3}$. Les petites valeurs de $L_c(0)$ et $L_r(0)$ sont choisies pour éviter d'éventuelles instabilités numériques si on impose $L_c(0) = L_r(0) = 0$. Les constantes cinétiques pour chacun de ces trois sites d'observations sont celles obtenues dans la section précédente (Tableau 5.2). Le temps de simulation a été choisi à 72 h pour les simulations suivantes (en 1D), qui fournissent L_c , L_r , N_d , $L_{c,d}$, L_l , N_a , COT et R_c pour un nuage unique. Dans ce manuscrit, nous nous concentrons sur l'analyse des variables L_c , L_r et N_d .

5.2.1 Pour un nuage individuel

À partir des mesures faites à l'Observatoire du Maïdo

Pour l'étude de cas à l'Observatoire du Maïdo, le L_v et N_0 présentés dans la section précédente ont été introduits dans le modèle pour une simulation entre le 6 février 2019 (00:00 UTC) et le 8 février 2019 (23:59 UTC). Un seuil d'humidité relative de 70% a été choisi pour la détermination de α . La Figure 5.4a représente l'évolution des L_v , L_c , L_r et N_d simulés. On constate que N_d évolue de manière similaire à la concentration de fond des aérosols N_0 avec des valeurs comprises, globalement, entre 500 et 4000 cm^{-3} , sauf un pic à 12000 cm^{-3} . De plus, il apparaît clairement tout au long de la simulation que la formation des nuages (pics L_c) est directement liée à l'évolution de la vapeur d'eau L_v , autrement dit, les nuages se forment lorsque l'humidité absolue est maximale ou en augmentation. On observe également que la formation d'un nuage est suivie, après environ 10 ou 20 min, par l'apparition de la pluie, qui est un comportement nuage-pluie réaliste (cf Chapitre 1).

Le contenu en eau des nuages simulé L_c peut être comparé à celui issu de mesures de réflectivité radar indépendantes, aux mêmes dates, par un radar Doppler METEK MIRA-36 qui fut déployé à l'Observatoire du Maïdo de janvier à mars 2019. L'accent a été mis sur les mesures effectuées verticalement, 1 km au-dessus de l'instrument, afin d'être cohérent avec les données radiométriques (au Maïdo) introduites dans le modèle. Pour rendre la comparaison possible, les réflectivités radar Z ont été converties en contenus en eau nuageuse au moyen de la formule de SAUVAGEOT 1992 (p. 121), $Z = 6,8 \times 10^{-2} L_c^{1.9}$. Les gouttelettes nuageuses correspondent à des réflectivités radar inférieures à -15 dBZ (SAUVAGEOT et OMAR 1987). La Figure 5.4b affiche le contenu en eau des nuages modélisé et celui dérivé du radar. On constate que, globalement, le modèle reproduit bien les ordres de grandeur de L_c . À noter, en particulier, les pics autour de 12:00 UTC (6 et 7 février) et ceux du 8 février. Cependant, il existe parfois des délais relativement courts (au plus une heure) entre les prédictions du modèle et les observations radar. Les différences peuvent s'expliquer par le fait que les conditions climatiques au Maïdo sont complexes, notamment en raison de la topographie. De plus, le seuil de réflectivité de -15 dBZ est une valeur moyenne

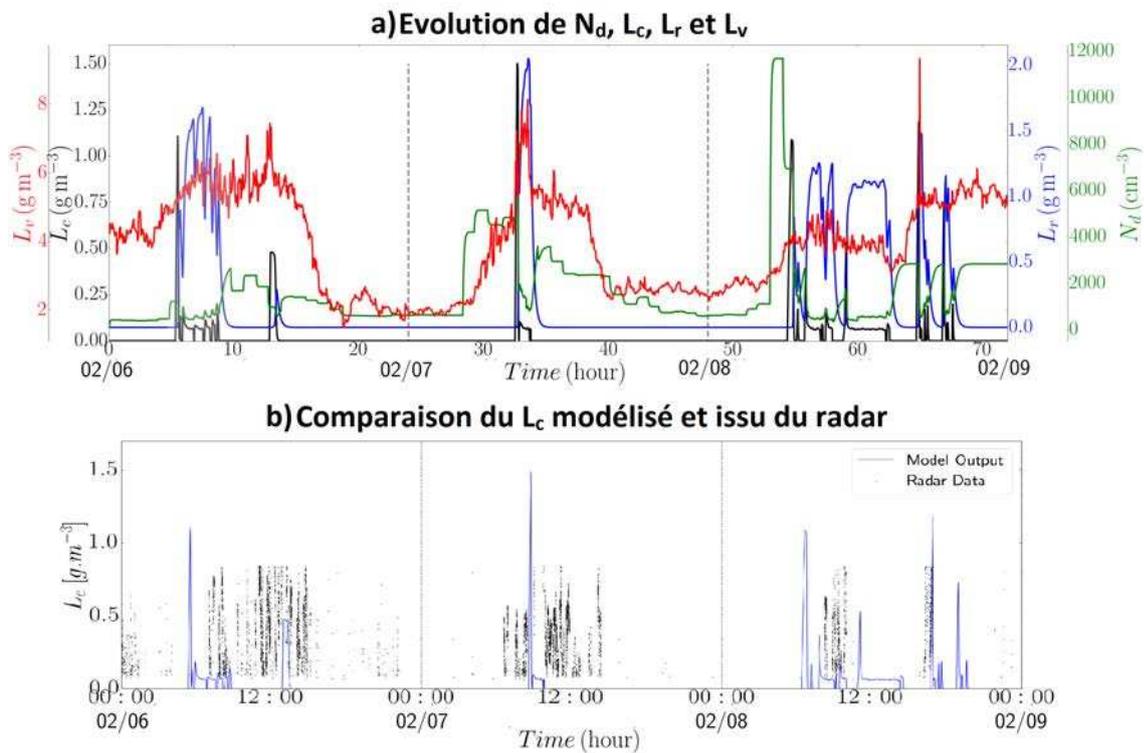


FIGURE 5.4 – a) Évolutions de L_c , L_r et N_d et b) comparaison du L_c modélisé et du L_c dérivé des mesures radar pour une simulation de 72h avec les données de l’Observatoire du Maïdo, entre le 6 et le 9 février 2019.

arbitraire. La transition entre ce qui est nuage et ce qui est bruine (ou pluie légère) est plutôt floue autour de cette réflectivité. Ce qui est sûr, c’est que la réflectivité des gouttelettes de nuages est très faible (et négative). Les résultats obtenus à partir des trois équations qui définissent le modèle fournissent donc une estimation relativement raisonnable et réaliste de la création/dissipation des nuages.

À partir des mesures de la campagne AEROMARINE (Saint Denis)

La Figure 5.5a présente les résultats d’une simulation entre le 1er février 2019 (00:00 UTC) et le 3 février 2019 (23:59 UTC) à Saint Denis de la Réunion. Pour ce cas d’étude représentatif d’un contexte océanique pristin, les mesures de L_v et N_0 présentées dans la section précédente (Fig.5.3B) ont été implémentées

dans le modèle et un seuil d'humidité relative de 80% a été choisi pour la valeur de α .

Sur cette figure, nous pouvons observer que l'augmentation de L_c est concomitante à une diminution de N_d , c'est-à-dire que les grosses gouttelettes sont nombreuses. Ce n'était pas aussi évident pour l'étude de cas ci-dessus (Maïdo). La raison peut être que, dans le cas de la campagne AEROMARINE, les valeurs de N_d , comme celles de N_0 , sont relativement petites (environnement pristin), de sorte que la moindre variation est plus aisément visible. De plus, chaque augmentation de L_c est suivie de l'activation de la pluie (augmentations de L_r) environ 10 min plus tard. Nous déduisons également des propriétés optiques des nuages simulés (COT et R_c) que, lors de cette simulation, nous sommes en présence de nuages marins de basse altitude de type stratus, ce qui est cohérent avec le type de nuages habituellement présents dans cette région (voir article).

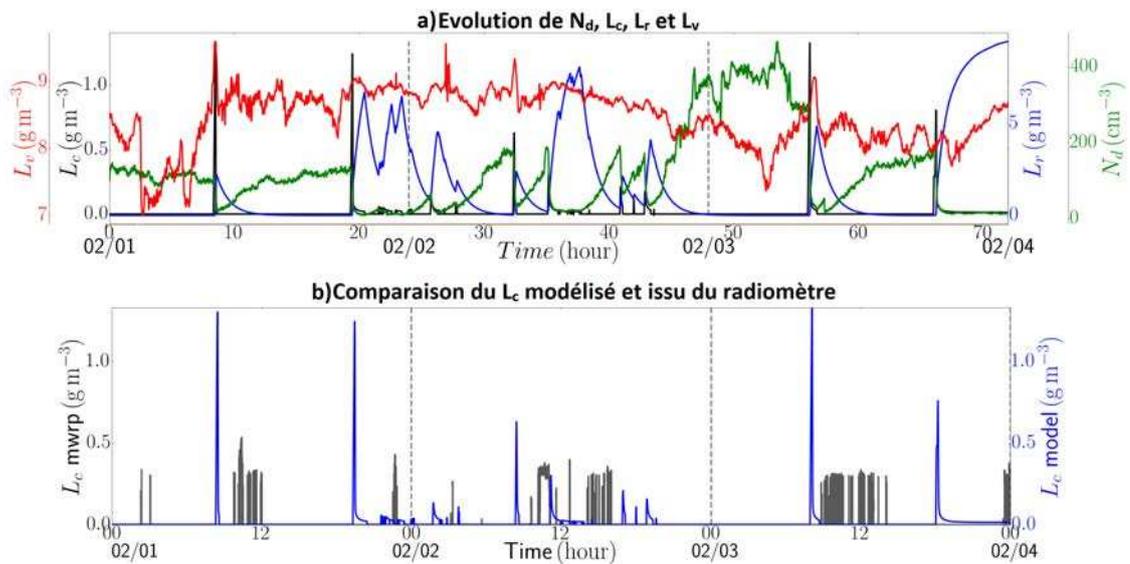


FIGURE 5.5 – a) Évolutions de L_c , L_r et N_d et b) comparaison du L_c modélisé et du L_c dérivé des mesures radiométriques avec les données de la campagne AEROMARINE, du 1^{er} au 4 février 2019.

La teneur en eau des nuages modélisée est maintenant comparée à la teneur en eau des nuages déterminée à partir des mesures radiométriques (Fig. 5.5b). On observe que le comportement général de formation des nuages est bien représenté par notre système de trois équations. En effet, en mettant de côté

quatre pics nuageux lors de cette simulation de 72h, le modèle reproduit correctement l'apparition et la dissipation des nuages, même si certains retards d'au plus une heure ne sont pas rares. En outre, les ordres de grandeur du contenu en eau nuageuse modélisé sont cohérents avec ceux fournis par le radiomètre. Il faut rappeler que le radiomètre micro-ondes ne mesure pas directement le contenu en eau des nuages, mais le dérive d'un algorithme interne utilisant l'hypothèse d'adiabaticité pour la formation des nuages. Une autre explication des différences observées peut être que les données d'entrée (L_v et N_0) ne sont pas colocalisées. Au cours de la campagne AEROMARINE, le radiomètre était déployé à Saint Denis (Nord de l'île) tandis que les concentrations d'aérosols ont été mesurées lors de vols ULM à l'Ouest de l'île. Cependant, l'accord global entre notre modèle et les sorties de radiomètre n'est pas si mauvais, ce qui suggère une certaine cohérence des résultats présentés ici.

À partir des mesures de la station ATOLL (Lille)

En ce qui concerne le contexte urbain, nous analysons les résultats d'une simulation entre le 10 octobre 2020 (00:00 UTC) et le 12 octobre 2020 (23:59 UTC) en utilisant les mesures (L_v , N_0) de la station ATOLL et un seuil d'humidité relative de 80% pour α .

La figure 5.6a affiche les sorties du modèle (c'est-à-dire les évolutions de L_c , L_v , L_r et N_d). Nous pouvons voir apparaître des nuages (premier pic L_c) environ 12h après le début de la simulation, lorsque la teneur en vapeur d'eau L_v est suffisamment élevée ($L_v \geq 2,5 \text{ g m}^{-3}$). Ici aussi, les équations étant fondées sur l'approche de la compétition des espèces, la formation des nuages conduit à la formation de pluie avec un retard de l'ordre de 15 min, qui est une valeur typique pour le déclenchement de la pluie (YAU et ROGERS 1996). La pluie est alors suivie d'une dissipation nuageuse. Nous pouvons également voir que la quantité de pluie dépend de la quantité d'humidité absolue, c'est-à-dire que plus L_v est grand, plus L_r est grand.

En comparant le L_c modélisé avec le L_c dérivé du radiomètre (Fig.5.6b), un bon accord entre le modèle et les mesures *in-situ* est observé en termes de présence/absence de nuages. De plus, lorsqu'il y a un nuage, le modèle donne

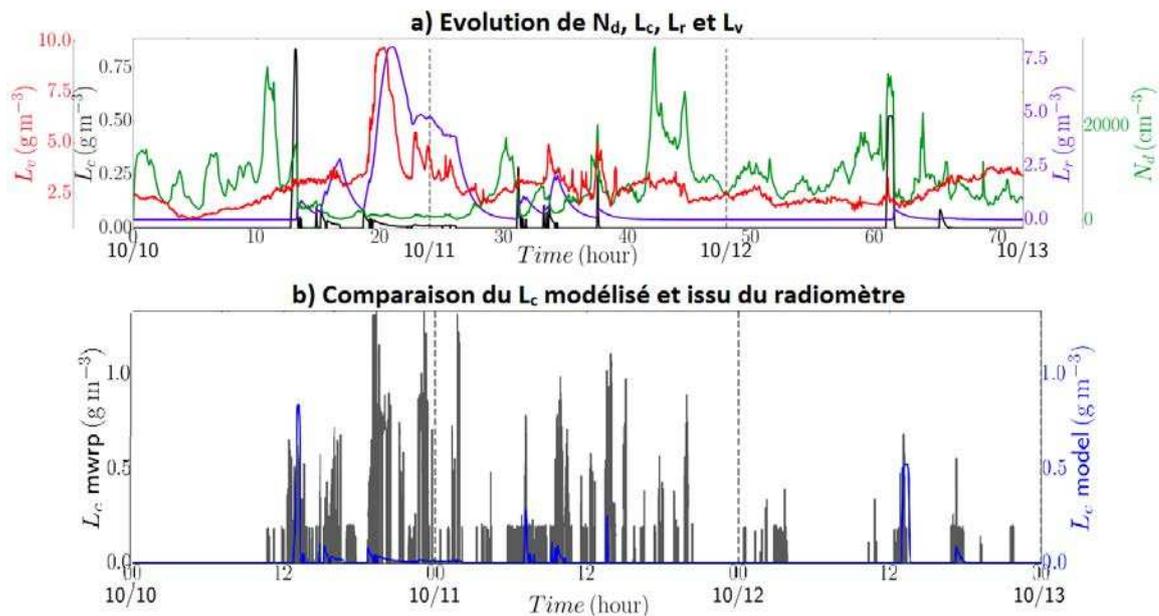


FIGURE 5.6 – a) Évolutions de L_c , L_r et N_d et b) comparaison du L_c modélisé et du L_c dérivé des mesures radiométriques avec les données de la station ATOLL, du 10 au 13 octobre 2020.

des ordres de grandeur similaires à ceux du radiomètre. Cependant, de manière générale, le modèle sous-estime les valeurs de contenu en eau des nuages. Un biais dans le modèle ne peut bien sûr pas être exclu, mais, comme déjà mentionné, une explication possible est également la façon dont le radiomètre calcule le contenu en eau des nuages (voir ci-dessus).

Pour chaque simulation présentée dans cette section, le modèle montre des résultats cohérents et réalistes, et ce, avec un temps de calcul très court ($t_{calcul} \leq 10\text{s}$ pour une simulation de 72h sur un ordinateur portable). En particulier, nous constatons que notre modèle est le plus proche possible des mesures *in-situ* en contexte continental à Lille, c'est-à-dire avec des concentrations d'aérosols plus élevées.

5.2.2 Pour un champ de nuages sur une grille 2D

Les résultats précédents étant prometteurs, nous adaptons notre système d'équations (Éqs. 5.2) sur une grille bidimensionnelle (2D) horizontale. Nous

études des simulations sur sept jours, dans deux cas d'étude concrets : (1) dans un contexte océanique pristine au-dessus de l'océan Indien (autour de La Réunion), dans une grille [20°S-21°S; 54°E-55°E], du 9 au 15 février 2019; (2) dans un contexte continental, au-dessus de la région Hauts-de-France, pour une grille [49,5°N-51,5°N; 2°E-4°E] centrée autour de Lille, du 1^{er} au 7 octobre 2020. Les constantes cinétiques ajustées à chacune de ces régions (voir section 2.3 de l'article) ont été utilisées pour ces simulations. Afin de s'assurer de la cohérence des résultats obtenus par notre modèle, des comparaisons ont été faites avec les réanalyses ERA5 (5ème génération du European Centre for Medium-Range Weather Forecasts - ECMWF - réanalyse pour le climat et la météorologie à l'échelle mondiale) ainsi que des observations par satellites.

Les réanalyses ERA5 combinent des sorties de modèles et des observations dans un ensemble de données globalement complet et cohérent (« IFS Documentation CY47R1 - Part IV : Physical Processes » 2020). En particulier, ERA5 fournit des estimations horaires, à l'échelle du globe, des humidités absolue et relative, ainsi que du contenu en eau nuageuse, à différents niveaux de pression. Nous avons choisi le niveau 900 hPa, c'est-à-dire une altitude d'environ 1 km, où les données ont été reportées sur une grille régulière latitude-longitude de 0,25°.

Dans les réanalyses ERA5, les processus nuageux et de précipitation à grande échelle sont décrits par des équations pronostiques¹ complexes pour l'eau liquide des nuages, la glace des nuages, la pluie, la neige et la fraction nuageuse. En particulier, le contenu en eau liquide des nuages est déterminé en prenant en compte des processus tels que la condensation, l'évaporation, l'auto-conversion et la collection (FORBES et TOMPKINS 2011 ; RM FORBES et al. 2012).

Comparer la prédiction de notre modèle avec les réanalyses ERA5 nécessite de supposer que chaque pixel de 0,25° de la grille est décrit par les Éqs. 5.2. En d'autres termes, pour chaque pixel, nous simulons une évolution de L_c par les Éqs. 5.2, en gardant à l'esprit que le système décrit le comportement d'un nuage

1. Équation qui prédit la valeur des variables pour un certain temps dans le futur à partir des valeurs aux moments actuels ou précédents. Par exemple, l'équation de Navier-Stokes est une équation pronostique qui prédit la distribution future des vitesses dans un fluide à partir du champs de pression

unique. Il n’y a donc pas de couplage entre les pixels. Le modèle présenté dans ce travail est donc adapté à un maillage 2D, de $0,25^\circ$ par $0,25^\circ$, dans ce sens. Comme pour les simulations en une dimension, le modèle fournit les évolutions de L_c , L_v , L_r , N_d , $L_{c,d}$, L_l , N_a , COT et R_c . Nous nous concentrons ici sur les contenus en eau des nuages (L_c) afin d’étudier l’organisation spatiale du champ nuageux.

En région océanique pristine (océan Indien)

Nous nous intéressons maintenant à la simulation de sept jours au-dessus de l’océan Indien, sur une grille [20°S - 21°S ; 54°E - 55°E] autour de l’île de La Réunion. Les évolutions des contenus en eau des nuages obtenus à chaque heure de la simulation par le biais de notre modèle et par le biais des réanalyses ERA5 sont présentées sur les figures A.1 à A.7 de l’Annexe A.

Ces figures montrent que les apparitions/disparitions des nuages sont similaires pour les sorties de notre modèle et celles des réanalyses ERA5. En d’autres termes, l’organisation spatiale et l’évolution des nuages simulés semblent similaires pour les deux modèles. Les contenus en eau des nuages obtenus par nos trois équations sont, de plus, du même ordre de grandeur que ceux d’ERA5 (entre 0 et $0,2\text{ g m}^{-3}$). Ainsi, au cours de ces sept jours, dans ce contexte pristine, notre modèle simplifié montre un comportement très proche des réanalyses d’ERA5.

Afin de quantifier cela, nous calculons les moyennes des contenus en eau nuageuse (L_c) sur les sept jours de simulation de notre modèle (Fig. 5.7b) et des réanalyses ERA5 (Fig. 5.7a). Ces moyennes fournissent des ordres de grandeur similaires du contenu en eau nuageuse. Nous analysons également la différence absolue de ces moyennes (Fig. 5.7c). Nous constatons que la différence entre les deux modèles ne dépasse pas $\pm 0,025\text{ g m}^{-3}$ et qu’elle est maximale à l’Ouest de l’île de La Réunion. En effet, une surestimation de L_c par notre modèle est visible là où la campagne de mesures AEROMARINE a eu lieu, et en particulier dans la zone où les concentrations d’aérosols ont été mesurées. Comme ces dernières ont eu lieu dans la troposphère libre, et non depuis la surface, elles peuvent être sous-estimées et donc peu représentatives des concentrations de fond des aérosols

marins autour de La Réunion. La densité de probabilité des valeurs de différence est présentée Figure 5.7d; elle culmine à 60% pour une différence entre 0,006 et 0,008 $g.m^{-3}$. Notons que les différences les plus importantes (valeurs comprises entre 0,01 et 0,02 $g.m^{-3}$) sont, dans ce cas, très peu représentées.

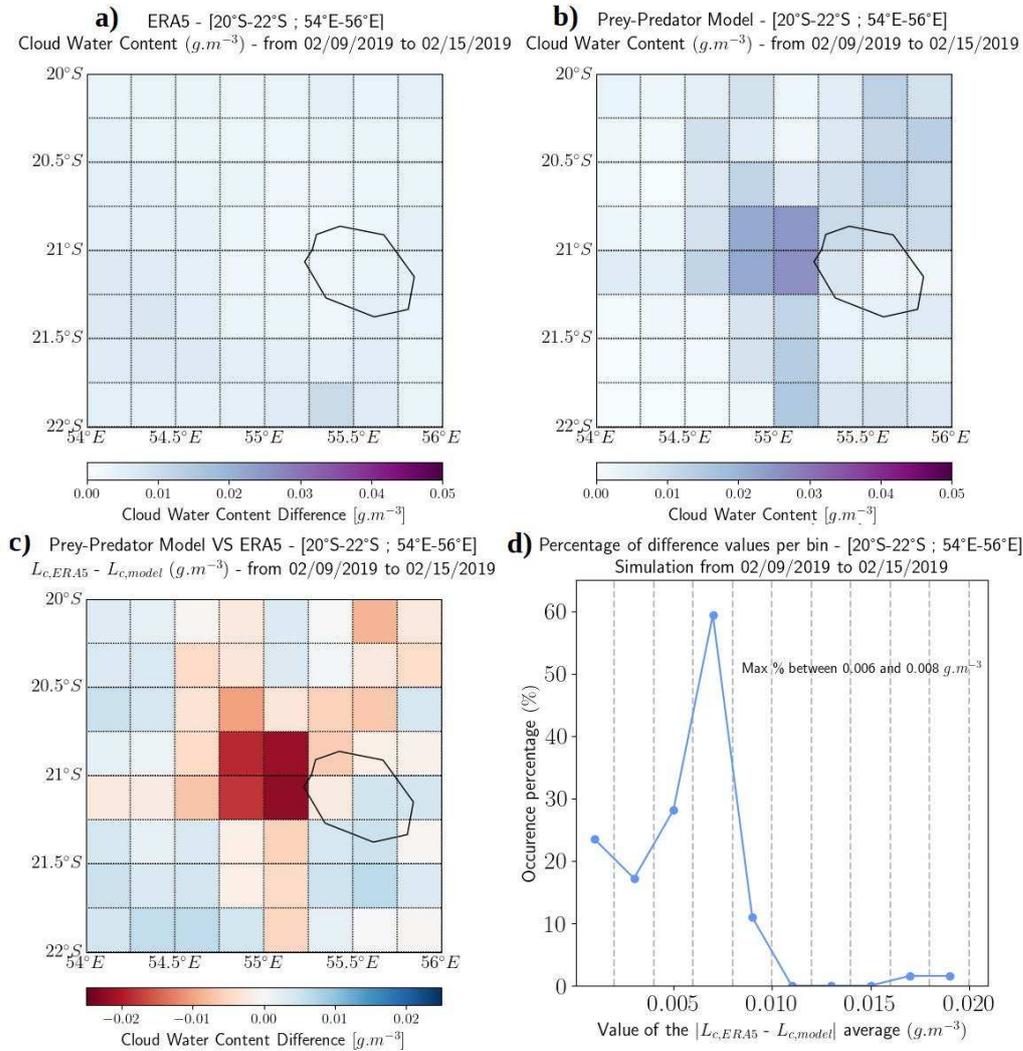


FIGURE 5.7 – Pour une simulation de sept jours du 9 au 15 février 2019 : a) contenu en eau des nuages moyen obtenu par les réanalyses ERA5; b) obtenu par notre modèle; c) différences des moyennes $L_{c,ERA5} - L_{c,model}$ et d) pourcentage des valeurs obtenues pour cette différence.

Nous comparons ensuite nos résultats avec des observations de MODIS sur le satellite Aqua. Nous avons alors analysé les mesures de contenus en eau intégrés

(LWP – Liquid Water Path) obtenus lors des passages de MODIS/Aqua au-dessus de la région d'étude. Afin de convertir les LWP en L_c , nous supposons une valeur minimale et maximale de la hauteur des nuages ($h_{min} = 500$ m et $h_{max} = 2500$ m ; valeurs obtenues à partir des mesures du radar situé à l'Observatoire du Maïdo). Nous comparons alors les contenus en eau des nuages (L_c) modélisés (par notre modèle et par ERA5) avec des estimations (minimale et maximale) du L_c observé par MODIS/Aqua. Les figures de l'Annexe B montrent les contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua (pour les deux valeurs de h considérées), issus de notre système d'équations et issus des réanalyses ERA5. Nous pouvons ainsi observer sur ces figures que notre système d'équations et les réanalyses ERA5 fournissent des contenus en eau du même ordre de grandeur pour chaque passage et que, parfois, notre modèle semble mieux reproduire la couverture nuageuse au dessus de l'île (Figs. B.1 et B.3). En effet, ERA5 étant fondé sur des données globales, la topographie de l'île de La Réunion, et donc les nuages associés, sont moins bien représentés que par notre système d'équations. Cette annexe présente également les contenus en eau des nuages moyennés sur les quatre quarts Nord-Ouest, Nord-Est, Sud-Ouest, et Sud-Est de la grille, pour chaque passage du satellite. Cette comparaison entre observations et modélisations nous montrent que les modèles (proie-prédateur et ERA5) fournissent les différences les plus faibles pour la plus grande valeur de hauteur des nuages ($h_{max} = 2500$ m). La différence la plus importante est d'environ $0,18 \text{ g m}^{-3}$. Nous pouvons également déduire de chacun des passages du satellite que les deux modèles montrent des différences similaires avec les contenus en eau nuageuse déterminés à partir des observations. Notre modèle semble donc, pour chaque passage, approcher (voire égaler) les réanalyses d'ERA5.

Dans ce cas, six passages du satellite au-dessus de la zone sont considérés. Le comportement moyen des contenus en eau des nuages (pour h_{min} et h_{max}) par quart est soustrait aux moyennes des contenus en eau des nuages simulés (par notre modèle et par ERA5). Ces différences absolues par quarts sont représentées sur la Figure 5.8. Comme pour les figures de l'Annexe B, qui présentent ces différences au cas par cas, nous pouvons observer que les modèles (Éqs. 5.2 et ERA5) s'approchent au mieux des observations satellites pour la plus grande valeur de hauteur des nuages. Nous pouvons également voir que, en moyenne,

notre modèle et les réanalyses ERA5 montrent des différences similaires avec les observations satellites (au plus $0,0885 \text{ g.m}^{-3}$). Les écarts de notre modèle avec les observations sont parfois même légèrement inférieures à ceux d'ERA5. Notons également que le quart Sud-Ouest montre les différences les plus importantes, pour chacune des valeurs de h et pour les deux modèles. Ainsi, dans l'océan Indien et pour ces six passages de MODIS/Aqua, notre modèle semble s'approcher (au moins aussi bien) des observations que les réanalyses ERA5.

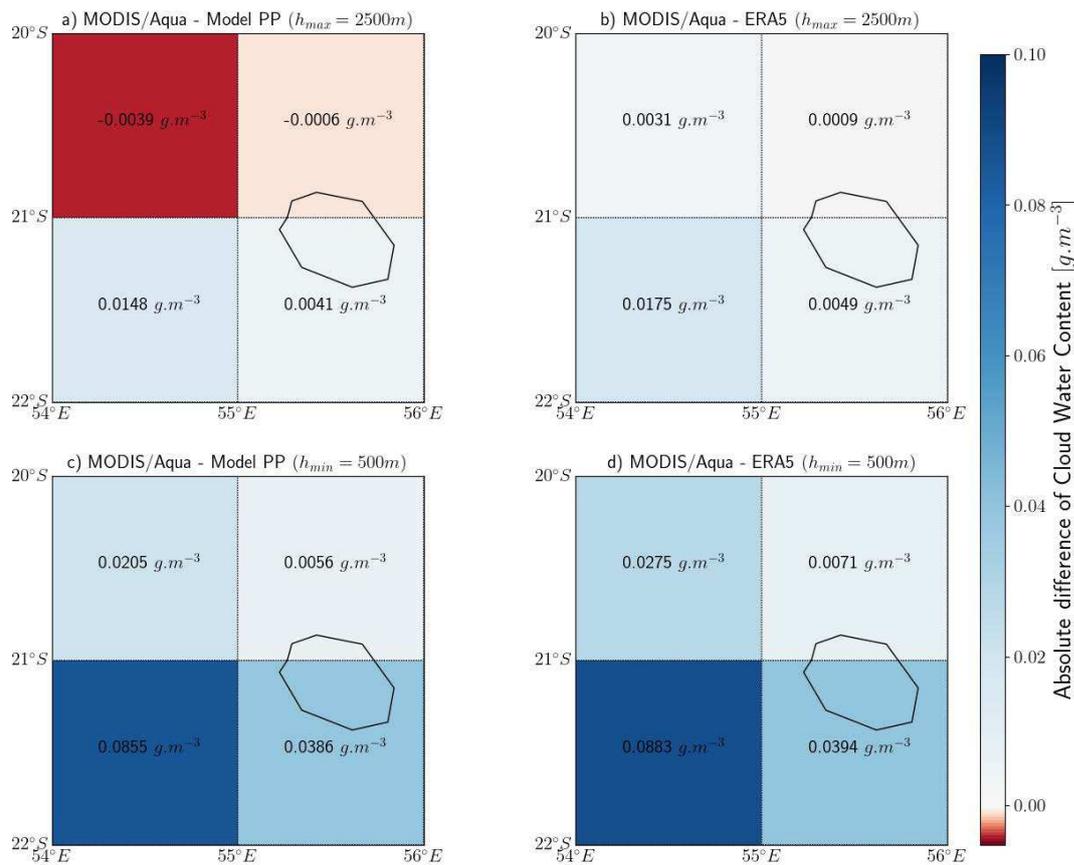


FIGURE 5.8 – Différence absolue de L_c : a) MODIS/Aqua ($h = 2500 \text{ m}$) - Modèle ; b) MODIS/Aqua ($h = 2500 \text{ m}$) - ERA5 ; c) MODIS/Aqua ($h = 500 \text{ m}$) - Modèle et d) MODIS/Aqua ($h = 500 \text{ m}$) - ERA5, au-dessus de l'océan Indien, du 9 au 15 février 2019.

Enfin, pour ces six passages du satellite au cours de ces sept jours de simulation, nous analysons le rapport $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5} / L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,Modèle}$ pour h_{min} et h_{max} (Fig. 5.9). Nous constatons alors que les réanalyses ERA5 et

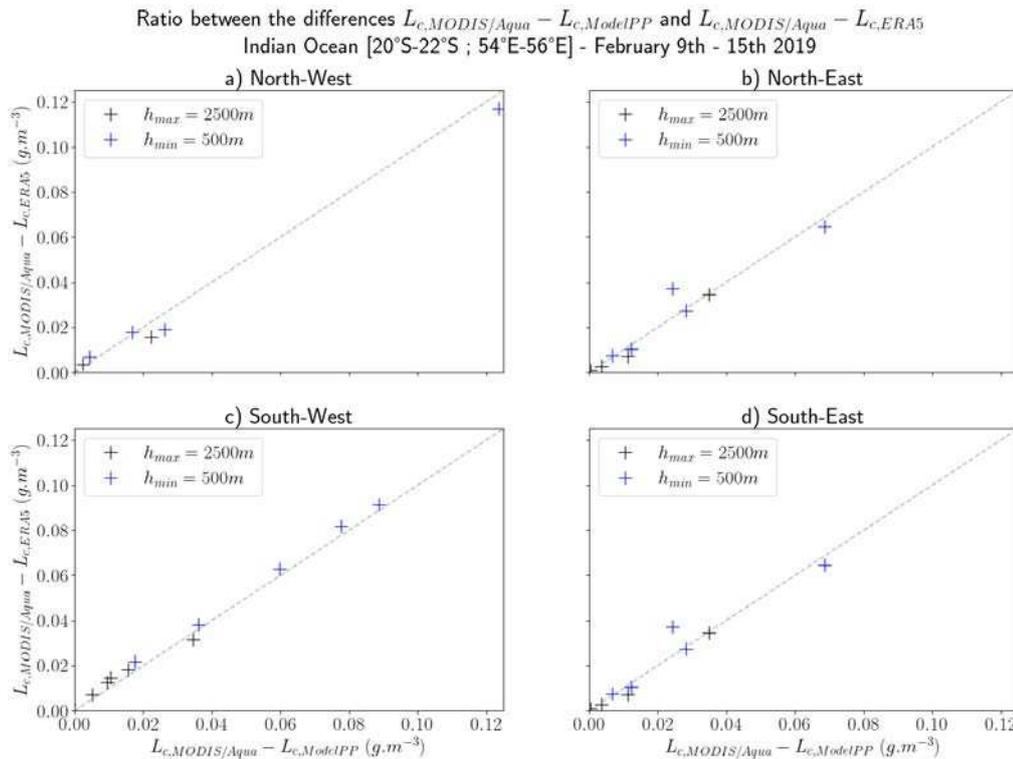


FIGURE 5.9 – Rapports des différences $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,Modele}$ et $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5}$ pour chaque quart de la grille pour la simulation dans l’océan Indien du 9 au 15 février 2019.

notre modèle montrent des différences très similaires avec les observations de MODIS/Aqua. En effet, les rapports calculés sont, pour la majorité, très proches de la droite 1 : 1. Nous pouvons en déduire que notre système à trois équations relativement simples montre des résultats similaires, ou du moins comparables, aux réanalyses ERA5.

Comme indiqué précédemment, la zone à l’Ouest de l’île de La Réunion est la région présentant les différences les plus importantes entre notre système d’équations et les réanalyses ERA5. Pour le cas de La Réunion, les observations satellitaires de SEVIRI/MSG étaient exploitables. La Figure 5.10 affiche quelques images satellites SEVIRI/MSG correspondant à la zone considérée. Des jours représentatifs ont été choisis, ce qui permet d’expliquer notamment les écarts de L_c à l’Ouest de La Réunion. Nous constatons en effet que notre modèle est plus proche des observations satellitaires que la réanalyse ERA5 qui ne « voit » pas les nuages

à l'Ouest de l'île. De plus, notre modèle semble prédire plus d'occurrences de nuages que ERA5, en accord avec ce qu'indiquent les observations satellites. Pour les autres jours qui couvrent cette simulation, notre modèle, ERA5 et les images satellites concordent.

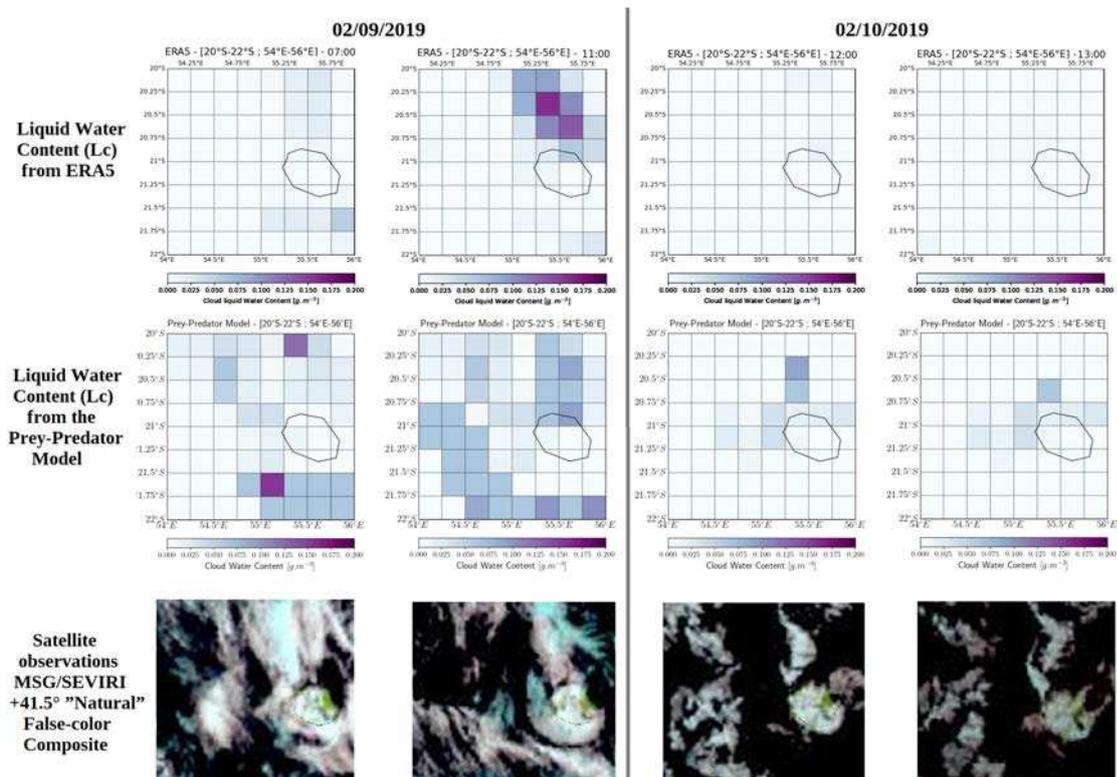


FIGURE 5.10 – Contenus en eau des nuages issus des réanalyses ERA5 (1^{ère} ligne), issus du modèle (2^{ème} ligne) et observations du satellite géostationnaire MSG/SEVIRI +41.5° "Natural" le 9 février 2019 à 7:00 et 11:00 UTC (premières colonnes) et le 10 février 2019 à 12:00 et 13:00 UTC (dernières colonnes).

Pour résumer, l'adaptation de notre modèle sur une grille horizontale 2D dans l'océan Indien montre des résultats comparables aux réanalyses fournies d'ERA5. Nous souhaitons maintenant évaluer les capacités de nos équations dans un environnement plus riche en aérosols, dans un contexte urbain et continental (région Hauts-de-France).

En région continentale urbaine (région Hauts-de-France)

Nous nous concentrons maintenant sur une simulation de sept jours, entre le 1^{er} et le 7 octobre 2020, au-dessus de la région Hauts-de-France, sur une grille [49,5°N-51,5°N; 2°E-4°E], centrée autour de la ville de Lille.

Nous obtenons alors l'évolution horaire du contenu en eau des nuages (L_c) simulé par notre modèle et par les réanalyses ERA5 présenté dans l'Annexe C. Nous pouvons observer sur ces figures que notre modèle et les réanalyses ERA5 montrent des résultats similaires en termes d'évolution, d'organisation spatiale et d'ordres de grandeur de L_c , de la même façon que précédemment. À noter que, dans ce contexte urbain, les valeurs de L_c obtenues sont plus importantes et varient entre 0 et 1 g m^{-3} au cours de la simulation.

La même méthodologie que précédemment est appliquée dans le cas présent. Ainsi, la Figure 5.11 affiche la moyenne de L_c sur l'ensemble de la simulation (sur les sept jours) fournies par les réanalyses ERA5 (a) et calculée par notre modèle (b); la différence moyenne est affichée sur le panneau (c). On voit que les champs de nuages modélisés (par les Éqs 5.2 et ERA5) se comportent de manière cohérente puisque les deux modèles donnent, en moyenne, un contenu en eau nuageuse inférieur à $0,06 \text{ g m}^{-3}$ et une répartition spatiale des nuages similaire autour de Lille. Il y a plus de nuages au Sud-Ouest et au Sud de Lille qu'au Nord et au Nord-Est. La différence entre les deux champs moyens de L_c est particulièrement intéressante : elle ne dépasse jamais $0,02 \text{ g m}^{-3}$ et, dans une grande partie de la zone considérée, cette différence est même proche de zéro. La densité de probabilité de la différence est affichée sur la Figure 5.11d; cela montre que les écarts entre ERA5 et notre modèle sont inférieurs à $0,01 \text{ g m}^{-3}$ avec un pic à 30% en dessous de $0,002 \text{ g m}^{-3}$ et un autre à environ $0,007 \text{ g m}^{-3}$.

La comparaison avec les produits du satellite MODIS/Aqua sur les sept jours considérés est également intéressante. Les figures de l'Annexe D présentent les contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua (pour les deux valeurs de h considérées), issus de notre système d'équations et issus des réanalyses ERA5. Nous pouvons observer sur ces figures que notre système d'équations et les réanalyses ERA5 fournissent des contenus en eau quasi identiques pour chaque passage du satellite. Cette annexe présente également les contenus en

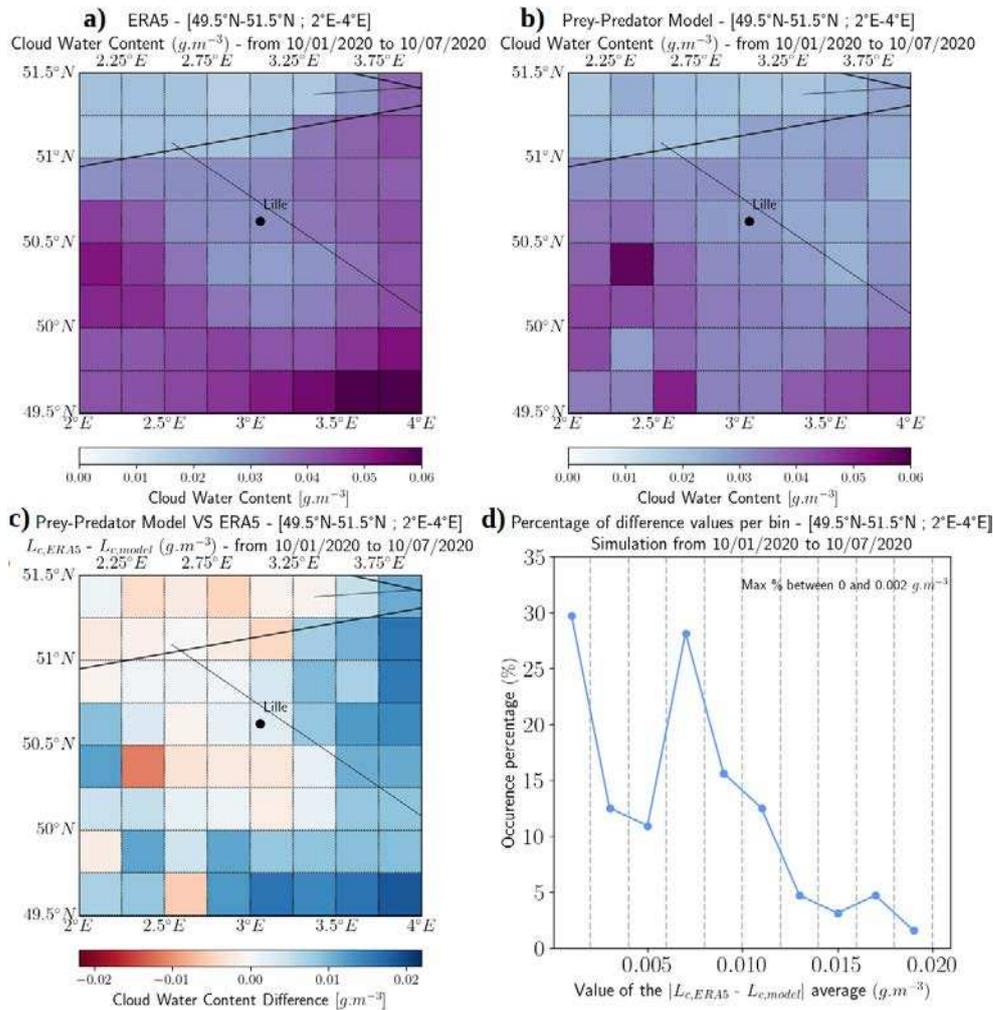


FIGURE 5.11 – Pour une simulation de sept jours du 1^{er} au 7 octobre 2020 : a) contenu en eau nuageuse moyen obtenu par les réanalyses ERA5; b) obtenu par notre modèle; c) différences des moyennes $L_{c,ERA5} - L_{c,model}$ et d) densité de probabilités des valeurs obtenues pour cette différence.

eau nuageuse moyennés sur les quatre quarts Nord-Ouest, Nord-Est, Sud-Ouest, et Sud-Est de la grille, pour chaque passage du satellite. Ces différences entre observations et modélisations montrent que les modèles (proie-prédateur et ERA5) fournissent les différences les plus faibles pour la plus grande valeur de hauteur des nuages ($h_{max} = 2500$ m), comme pour le cas d'étude précédent.

La figure 5.12 affiche la différence moyenne (sur les sept jours) du contenu en eau nuageuse, entre les observations MODIS/Aqua et le modèle d'une part et,

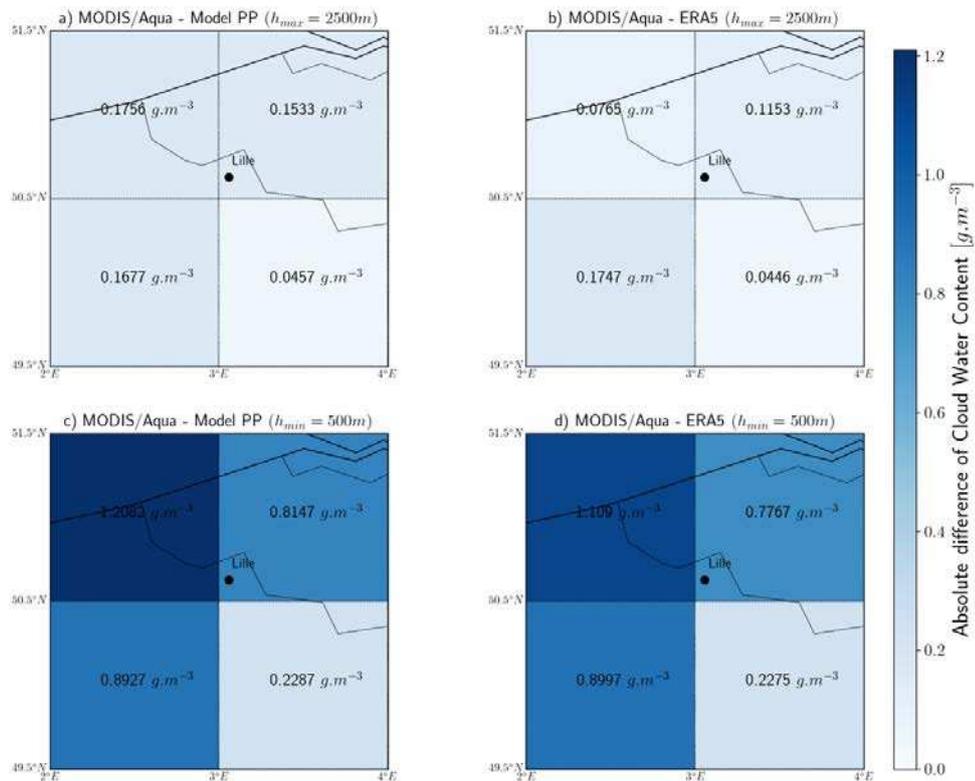


FIGURE 5.12 – Différence absolue de L_c : a) MODIS/Aqua ($h = 2500$ m) - Modèle ; b) MODIS/Aqua ($h = 2500$ m) - ERA5 ; c) MODIS/Aqua ($h = 500$ m) - Modèle et d) MODIS/Aqua ($h = 500$ m) - ERA5, au-dessus de la région Hauts-de-France, du 1^{er} au 7 octobre 2020.

entre MODIS/Aqua et ERA5 d'autre part, en supposant deux profondeurs de nuages, et en distinguant quatre quadrants (Nord-Est, Nord-Ouest, Sud-Ouest et Sud-Est). On peut voir, en particulier, que les différences entre Aqua et le modèle sont presque les mêmes que les différences entre Aqua et ERA5, ce qui signifie que le modèle (Éqs. 5.2) se comporte aussi bien que ERA5. Ceci est corroboré par les diagrammes de dispersion sur la Figure 5.13 obtenus en considérant les différences chaque jour.

Enfin, nous constatons que notre modèle est le plus proche possible des observations satellites en contexte continental à Lille, c'est-à-dire avec des concentrations d'aérosols plus élevées, puisque les différences de L_c avec MODIS/Aqua sont beaucoup plus petites à la fois pour le modèle et pour les réanalyses ERA5.

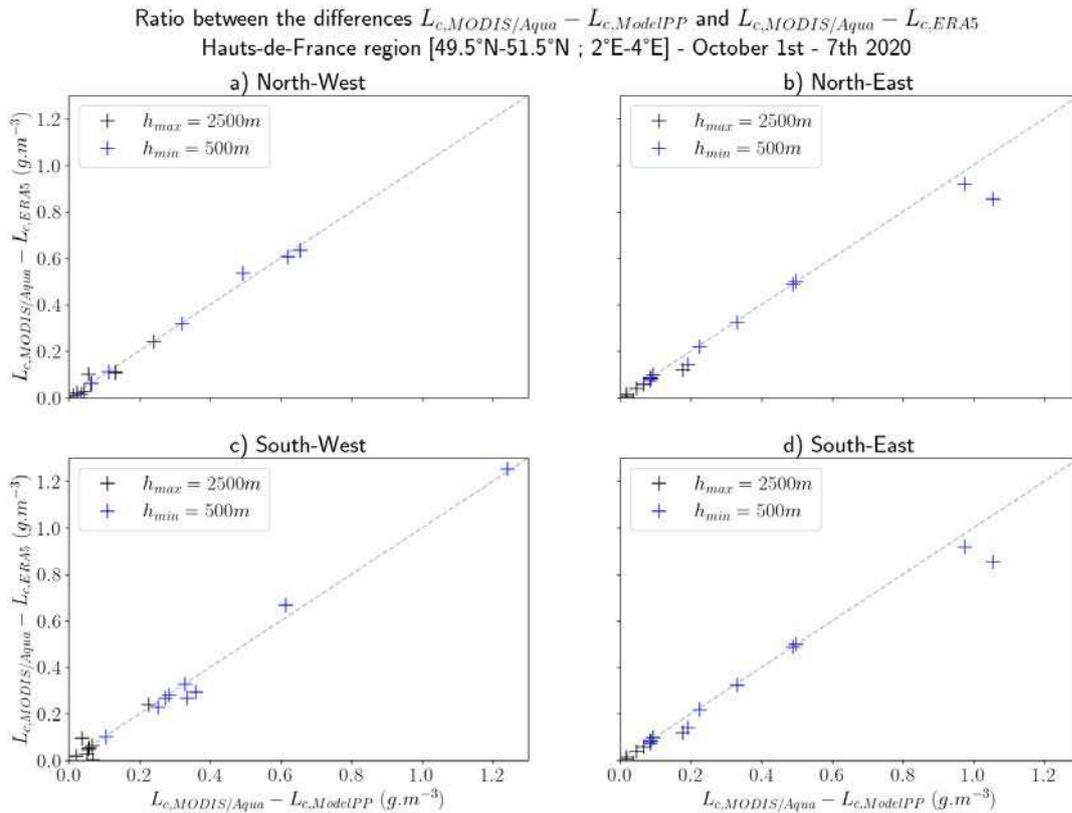


FIGURE 5.13 – Rapports des différences $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,Model}$ et $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5}$ pour chaque quart de la grille pour la simulation au-dessus de la région Hauts-de-France, du 1 au 7 octobre 2020.

Encore une fois, ces différences sont presque les mêmes, ce qui signifie que le modèle est, en ce sens, équivalent à ERA5.

5.3 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons proposé un modèle non linéaire capable de décrire la physique d'un système vapeur d'eau-aérosols-nuages-pluie. Le modèle s'inspire des modèles de dynamique de compétition entre espèces. Il consiste en un ensemble de trois équations différentielles couplées non linéaires qui généralise le modèle précédent de O. PUJOL et JENSEN 2019 en considérant explicitement la vapeur d'eau comme une variable indépendante du système. L'efficacité du système d'équations proposé pour saisir l'importante macrophysique du com-

portement des nuages a été testée pour trois cas concrets (1) à l'Observatoire du Maïdo (île de La Réunion), (2) à Saint-Denis (île de La Réunion) et (3) dans un contexte urbain à Lille (Hauts-de-France).

Les constantes cinétiques du jeu d'équations ont été optimisées, pour les trois situations qui viennent d'être évoquées, en combinant une approche de Monte Carlo et une minimisation par les moindres carrés. La méthode que nous avons choisie pour cela offre la possibilité d'utiliser le modèle pour déterminer des constantes cinétiques qui, autrement, ne sont disponibles qu'à partir de considérations théoriques ou d'ajustements empiriques *ad hoc*. Ainsi, notre système d'équations (Éqs. 5.2) utilise une approche originale pour optimiser des constantes cinétiques et les rendre accessibles à partir d'observations *in-situ* dans des situations météorologiques précises.

Par rapport aux observations réelles (mesures radar et radiométriques), les résultats obtenus (en 1D) montrent que le modèle reproduit bien le comportement à macro-échelle des nuages : occurrences nuageuses (formation/dissipation), ordres de grandeur du contenu en eau nuageuse, et les liens nuages/pluie sont bien captés par notre modèle. Une explication possible des écarts qui peuvent exister entre le modèle et les observations (par exemple, de courts délais dans l'apparition des nuages, de petites différences dans les valeurs L_c) est que les instruments qui fournissent les données d'entrée ne sont pas toujours colocalisés dans l'espace et le temps (par exemple : cas de la campagne AEROMARINE).

Notre modèle a l'avantage d'avoir un temps de calcul relativement court (inférieur à 10 s pour une simulation de 72 h). Ceci nous a permis de l'utiliser sur une échelle spatiale plus grande, précisément au sein d'une grille horizontale bidimensionnelle (2D) pour laquelle le comportement de chaque pixel est décrit par le système d'équations Eq. 5.2. Chaque pixel est indépendant des autres. Nous avons comparé les résultats avec les réanalyses ERA5 dans deux situations : un contexte continental au-dessus de la Région Hauts-de-France d'une part, et dans le Sud-Ouest de l'océan Indien (autour de La Réunion) d'autre part. Des simulations sur sept jours ont été réalisées pour ces deux cas. Une fois encore, notre modèle montre des résultats prometteurs pour l'organisation horizontale des champs de nuages, puisque le système de trois équations fournit des résultats proches de ceux obtenus par les réanalyses d'ERA5.

Les comparaisons avec les observations satellites, lorsqu'elles sont exploitables, notamment avec les produits MODIS/Aqua, montrent que le modèle se comporte aussi bien qu'ERA5 pour les nuages chauds puisque les deux présentent des différences similaires avec Aqua en termes de contenu en eau nuageuse. De plus, à partir des comparaisons qualitatives avec les observations géostationnaires de SEVIRI/MSG sur le Sud de l'océan Indien, autour de La Réunion, on s'aperçoit que, parfois, les prédictions du modèle sont meilleures que celles d'ERA5 dans le sens où ce dernier semble ne pas voir des pixels nuageux sur l'île. Notre modèle semble donc présenter des résultats raisonnables et physiquement réalistes en termes de comportement des nuages, comparables à d'autres modèles. La résolution spatio-temporelle de notre modèle est bien entendu adaptable en fonction des besoins de l'utilisateur ; il peut être utilisé dans n'importe quelle région et à l'altitude souhaitée à condition que les données d'humidité atmosphérique et de concentrations d'aérosols soient disponibles.

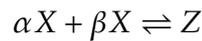
5.4 MASCAUT et al. (2023)

Ce modèle simplifié mais réaliste en ce qui concerne la description du comportement des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages-pluie a fait l'objet d'un article dans la revue *Atmospheric Research* en 2023 (accepté quelques jours après la soutenance). Comme indiqué précédemment, ce modèle a été adapté sur une grille 2D (horizontale) dans le sens où chaque pixel de la grille considérée est décrit par les équations du modèle. Autrement dit, pour p pixels, il y a p systèmes d'équations lancés de façon indépendante ; ce qui implique qu'il n'y a pas de couplage entre les pixels.

Différentes approches peuvent être envisagées pour pallier à ce problème, mais elles peuvent être classées en deux catégories : (1) celles d'essence déterministe, qui consisteraient, par exemple, à considérer N ensembles d'équations (un par pixel) et à ajouter un terme de couplage entre eux qui pourrait dépendre du vent ; (2) celles de nature stochastique (ou statistique), qui pourraient s'inspirer par exemple du modèle d'Ising 2D utilisé en magnétisme. Cette dernière piste est étudiée et présentée dans le prochain chapitre (Chapitre 6).

5.4.1 Commentaire critique sur le modèle proposé

Le modèle présenté dans cette thèse est, au risque de se répéter, un modèle de compétition d'espèces. Précisément, l'hypothèse est faite qu'un nuage (liquide) est un système défini par trois populations (ou espèces) en interaction : L_c , L_r et N_d (voir plus haut et dans MASCAUT, PUJOL, BRIOUDE et al. 2023 pour la signification de ces trois degrés de liberté). Les interactions ont un caractère compétitif, c'est-à-dire qu'une population évolue au détriment ou au profit d'une autre (ou des deux autres). Par exemple, on sait que les gouttes de pluie se forment essentiellement par collision et coalescence de deux gouttelettes nuageuses suffisamment grosses. Aussi est-il naturel de dire que la pluie est un *prédateur* pour des gouttelettes. Les interactions de ce type peuvent s'écrire de la forme $\pm KX^\alpha Y^\beta$ où X et Y sont des populations (L_c , L_r ou N_d), α et β des puissances réelles et K une constante cinétique qui quantifie la vitesse avec laquelle s'entretient la relation proie-prédateur (plus K est grand, plus une espèce, la proie, est consommée au profit de l'autre, le prédateur). Notons que la forme de ces interactions n'est, en elle-même, pas surprenante : on comprend aisément que, dans une relation de type proie-prédateur, l'évolution d'une population prédatrice soit d'autant plus importante que la population proie apparaisse en grande quantité. Cela permet de comprendre les produits polynomiaux de la forme $X^\alpha Y^\beta$. On peut voir ces interactions sous un autre angle. Supposons que la population Z évolue selon $dZ/dt = \pm KX^\alpha Y^\beta$; on peut dès lors considérer la réaction suivante



Les puissances α et β apparaissent comme des facteurs stœchiométriques, X et Y des réactifs et Z un produit. On a bien une diminution de X et Y (proies) au profit de Z (prédateur). La constante K est la constante nette de la collision, ou de la réaction, qui en quantifie la cinétique. Le lecteur trouvera dans ce chapitre et MASCAUT, PUJOL, BRIOUDE et al. 2023 les interactions considérées par le modèle.

Il est clair qu'une telle approche n'est pas commune ; elle a même de quoi surprendre au premier abord tant elle diffère des modèles « habituels » de formation des nuages comme WRF, RAMS, Méso-NH, pour ne citer que ces trois là. Ces derniers essaient de résoudre simultanément diverses équations (loi de Newton,

conservation de la masse, bilan énergétique) de façon plus ou moins approchée et à différentes résolutions spatiotemporelles. Il n'est nullement question dans ces modèles d'une approche de type population et encore moins de compétition d'espèces. On peut donc comprendre que le modèle présenté ici suscite certaines interrogations teintées de perplexité. Mais un tel sentiment devrait vite s'évanouir si l'on songe quelques instants à la banalité d'une telle approche. Bien qu'originale en physique des nuages, l'analyse d'un système physique en termes de populations est fréquente en physique. Citons deux exemples bien établis.

Le premier est celui des systèmes chimiques complexes caractérisés par un ensemble de réactions chimiques couplées. C'est le cas des oscillateurs chimiques comme les réactions autocatalytiques ou d'un être vivant, par exemple, pour lequel certaines fonctions s'effectuent par des mécanismes réactionnels complexes. Dans ses ouvrages, Prigogine utilise une approche de type compétition d'espèces (ici chimiques), complètement analogue à celle qui vient d'être présentée pour un nuage liquide, afin de comprendre avec fructuosité le comportement de systèmes chimiques et biologiques – pour les détails, on se reportera à PRIGOGINE 1996, Chap.8 et GLANSDORFF et PRIGOGINE 1971, Chap.15.

Le second exemple est celui de l'analyse des processus d'interaction lumière-atome par Einstein (EINSTEIN 1917). Considérant une population de N atomes, certains dans l'état fondamental et d'autres dans un état excité, Einstein introduit des constantes cinétiques, appelées depuis coefficients d'Einstein, pour caractériser les trois processus d'interaction (absorption et émission induites, émission spontanée). Les équations qu'il écrit sont typiques d'une compétition d'espèces, ici entre la population des atomes excités et celle des atomes dans leur niveau fondamental. Le traitement de la radioactivité, précisément des populations nucléaires, suit la même approche fructueuse sans qu'il soit nécessaire d'utiliser la physique quantique. Il n'y a donc pas lieu d'être surpris outre mesure face à la perspective d'une compétition de populations dans le système (relativement) complexe qu'est un nuage d'eau liquide. Fréquente et naturelle (à l'analyse), une telle approche est destinée à comprendre certains traits macroscopiques de la physique de tels nuages, sans qu'il soit nécessaire d'analyser en détail tous les mécanismes « microscopiques » sous-jacents ; répétons une fois de plus qu'elle

n'a pas vocation à remplacer les modèles exhaustifs habituellement utilisés.

5.4.2 Réponses à quelques questions

On se propose de répondre ici à quelques questions que pourraient susciter notre modèle proie-prédateur.

❶ À propos de la dynamique

On pourrait penser que nous avons omis, dans ce modèle, un facteur important pour la formation des nuages, à savoir la dynamique atmosphérique (le vent), c'est-à-dire que le modèle proposé ne couvrirait que la thermodynamique du cycle de vie des nuages. Dans certaines régions, malgré une humidité parfois supérieure à 90% et des concentrations en aérosols importantes, les nuages ne se forment pas en raison de l'absence de courant ascendant.

Il n'est pas tout à fait vrai de dire que la dynamique est absente du modèle. Les deux principales raisons sont les suivantes :

Tout d'abord, ce qui déclenche la formation de gouttelettes nuageuses est implicitement inclus à travers α . La valeur binaire de ce paramètre dépend d'une valeur critique RH_c de l'humidité relative au-dessus de laquelle la condensation se produit, même pour de conditions d'humidité peu favorables. Pour les trois situations considérées dans notre étude, une valeur appropriée pour RH_c a été déterminée au moyen d'observations indépendantes. Par exemple, pour l'Observatoire du Maïdo, où l'orographie rend l'action dynamique plus importante qu'au-dessus de la mer, la valeur prise pour RH_c est la plus faible (70%). Cette technique du RH_c est généralement utilisée dans la modélisation atmosphérique ; elle permet de tenir compte des fluctuations thermodynamiques et dynamiques qui sont responsables de la condensation de la vapeur d'eau (formation de gouttelettes nuageuses). En outre, les données qui alimentent le modèle, *i.e.* L_v et N_0 , proviennent de mesures. Elles contiennent donc implicitement un aspect dynamique, car la vapeur d'eau et les aérosols disponibles sont nécessairement dépendants du vent.

L'autre raison est étroitement liée à la méthode d'optimisation des constantes cinétiques que nous avons développée (Section 5.1.3). Rappelons que ces constantes jouent un rôle similaire à celles qui caractérisent des réactions chimiques ; elles appartiennent à la classe plus large des théories cinétiques entre deux états

(HÄNGGI et al. 1990). Comme expliqué dans la section 5.1.3, nous avons pris, pour chacune des trois situations, de nombreuses observations indépendantes afin de minimiser statistiquement la différence entre les sorties du modèle et ces observations. Mais un grand nombre d'observations indépendantes signifie considérer les caractéristiques essentielles de la région d'intérêt. En effet, de cette façon, nous explorons, autant que possible, l'espace des états physiques (thermodynamique, dynamique, chimie, orographie, etc.) de la région. Par conséquent, favorables ou moins favorables, les conditions, quelles qu'elles soient, de formation des nuages sont considérées et « fusionnées » statistiquement dans un ensemble de constantes optimisées. Ainsi, les valeurs de ces dernières contiennent les spécificités de la région, en termes de propriétés des aérosols, en termes de dynamique « locale », en termes de thermodynamique, en termes aussi de géographie (ou de topographie). L'optimisation que nous avons développée ici est un moyen efficace pour tenir compte d'un grand nombre de conditions différentes qui caractérisent intrinsèquement une région en termes de formation de nuages. Elle est également parfaitement adaptée aux techniques de calcul récentes et prometteuses, en particulier l'intelligence artificielle et l'apprentissage machine.

Le modèle, tel qu'il est actuellement, ne contient pas d'équation de mouvement explicite (comme Navier Stokes) pour résoudre les mouvements de l'air. Cependant, on peut intégrer la notion de vent (vertical, w) en utilisant un facteur α_w dans le terme de condensation (celui proportionnel à A_c). Cela signifie changer la valeur de A_c . Considérons, par exemple, un ensemble de valeurs pour w allant de -5 à 5 m s^{-1} (YAU et ROGERS 1996). À chaque pas de temps de la simulation, on tire au sort l'une de ces valeurs et on impose les conditions suivantes : si $w \leq 0$ (ascendance), $\alpha_w = 0$ (aucune chance de former un nuage); si $0 \leq w \leq 1 \text{ m s}^{-1}$, $\alpha_w = 0,25$; si $1 \leq w \leq 3 \text{ m s}^{-1}$, $\alpha_w = 0,5$; si $3 \leq w \leq 5 \text{ m s}^{-1}$, $\alpha_w = 1$. Les chances de former un nuage augmentent avec w . La figure 5.14 montre le résultat obtenu. Notons qu'il n'y a pas de changement substantiel dans le comportement du modèle, probablement parce que la procédure d'optimisation prend déjà en compte les aspects dynamiques. Nous pouvons voir une diminution relative de L_c et L_r , tandis que N_d augmente légèrement. On note également que certaines occurrences de nuages disparaissent car, parfois, nous tirons au sort des valeurs négatives de w . Remarquons également que la

comparaison avec le L_c issu du radiomètre est encore assez bon.

Prey-Predator Model 72h-simulation with background concentration (N_0) from SMPS measurements & Water Vapour content (L_v) from MWRP measurements at the ATOLL Station (Lille) - from Oct. 10th to Oct. 13th 2020

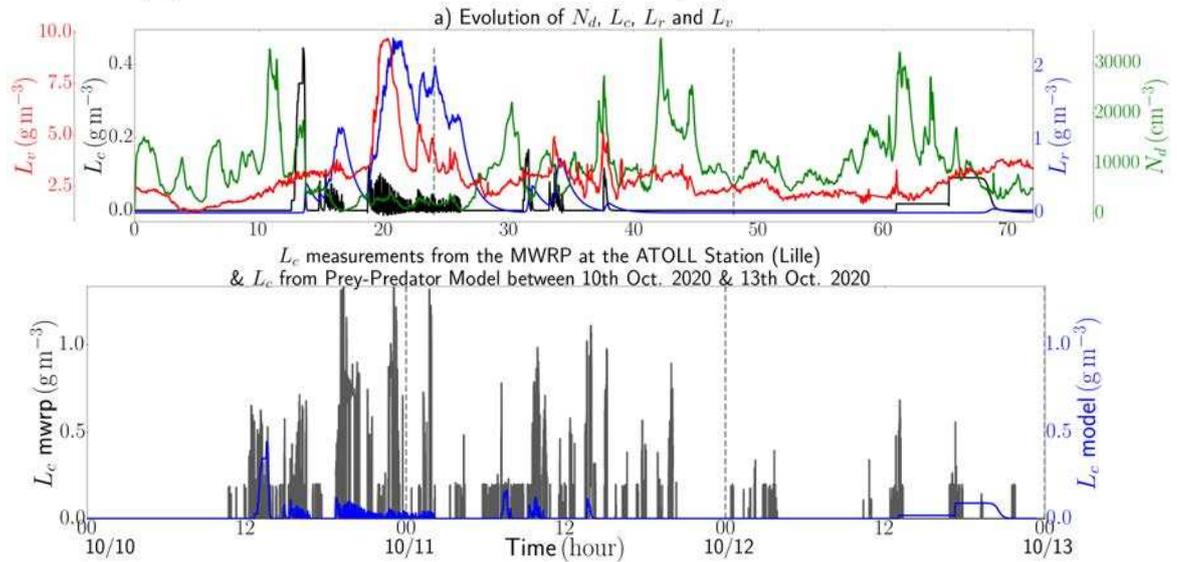


FIGURE 5.14 – Evolution de L_c , L_r , N_d et L_v pour une simulation de 72 h, avec les concentrations en aérosols et le contenu en vapeur d'eau de la station ATOLL (Lille).

② À propos de la nature des aérosols CCN ou non

Dans notre étude, nous avons utilisé les données d'un compteur de particules (CPC ou SMPS selon la région) qui fournit la concentration (en nombre) d'aérosols et non de noyaux de condensation (CCN). Il y a une différence entre ces deux quantités car seule une fraction des aérosols peut nucléer et former des gouttelettes nuageuses ; cette proportion peut varier d'un contexte à l'autre.

Dans leur comptage, les CPC prennent en compte tous les aérosols, donc N_0 est considéré comme le nombre total. Assimiler N_0 au nombre de CCN n'est pas une hypothèse sévère pour la campagne AEROMARINE car, dans ce contexte marin (île de la Réunion), les aérosols ont une taille moyenne de 132 nm (MASCOUT, PUJOL, VERREYKEN et al. 2022), ce qui est un ordre de grandeur typique de CCN. D. S. HAMILTON et al. 2014 définit les CCN comme des particules (solubles) de taille supérieure à 50 nm. MALLET et al. 2018 ont également montré que la

grande majorité de ces aérosols sont des sels marins, donc des structures ioniques propices à la formation de gouttelettes nuageuses. En outre, signalons que l'étude récente de Xu et al. 2022 suggère fortement, pour comprendre la formation de nuages en situation marine, de prendre en compte les aérosols de tailles inférieures. À Lille, identifier N_0 au nombre de CCN peut surprendre car la région n'est pas aussi riche en ce genre d'aérosols. Cependant, comme nous l'avons expliqué plus haut, la spécificité de la région et les propriétés microphysiques des aérosols sont implicitement prises en compte dans l'optimisation des constantes.

Indiquons toutefois que, dans le modèle, N_0 peut être modifié par βN_0 , avec $0 \leq \beta \leq 1$ un facteur représentant le rapport du nombre de CCN par rapport au nombre total d'aérosols. Nous n'avons pas remarqué d'importants changements par rapport aux résultats présentés précédemment si $\beta \geq 0,3$ (voir Fig. 5.15 à titre d'exemple avec $\beta = 0,6$), sauf que bien sûr, les valeurs de L_c et N_d sont diminuées. Cela pourrait signifier deux choses (non exclusives) : (1) N_0 est si grand que le nombre de CCN (βN_0) est toujours suffisant pour former des gouttelettes nuageuses ou (2) le processus d'optimisation est efficace. Cependant, pour $\beta < 0,05$, aucun nuage ne se forme : la teneur en CCN est donc trop faible. Tous ces résultats sont raisonnables.

Prey-Predator Model 72h-simulation with background concentration (N_0) from SMPS measurements & Water Vapour content (L_v) from MWRP measurements at the ATOLL Station (Lille) - from Oct. 10th to Oct. 13th 2020

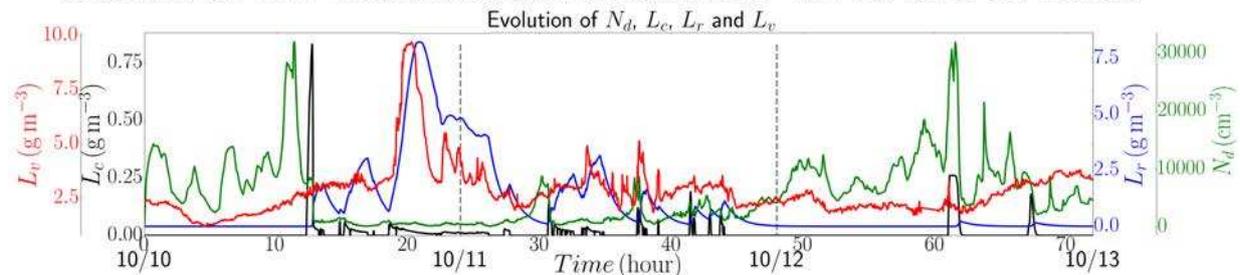


FIGURE 5.15 – Evolution des populations L_c , L_r , N_d et L_v pour une simulation de 72h, avec les concentrations en aérosols et le contenu en vapeur d'eau issus de la station ATOLL (Lille) et $\beta = 0,6$.

③ À propos de la distribution en taille

Malgré les apparences, le spectre de taille des gouttelettes nuageuses est pris en compte de façon indirecte dans notre modèle. En effet, ce dernier est un schéma à double moment : le nombre de gouttelettes (N_d) et la masse nuageuse des gouttelettes (L_c) sont deux degrés de liberté. Ainsi, dans les simulations, une augmentation (diminution) de N_d concomitante à une diminution (augmentation) de L_c , s'interprète comme une création de grosses (petites) gouttelettes. De surcroît, les termes d'interaction et les constantes cinétiques proviennent de considérations théoriques, précisément la théorie des collisions qui utilise des spectres de taille. Ceci (double-moment, noyaux de collision, distribution de taille) sont expliqués notamment dans SEIFERT et BEHENG 2001. Une lecture attentive de cette dernière référence montre que le spectre de taille utilisé pour la valeur de K (autoconversion) est une distribution gamma.



A competition–species model for water vapour-aerosol-cloud-rain interactions

Faustine Mascout^{a,*}, Olivier Pujol^{a,*}, Jérôme Brioude^b, Andrew Jensen^c, Marc Lefranc^d,
Stéphanie Evan^b, Suzanne Crumeyrolle^a

^a Université de Lille, CNRS, UMR 8518 - LOA - Laboratoire d'Optique Atmosphérique, F-59000 Lille, France

^b Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy), UMR 8105, Météo France/CNRS/Université de La Réunion, St Denis de La Réunion, France

^c Mathematical Sciences, Northland College, Ashland 54806, WI, USA

^d Université de Lille, CNRS, UMR 8523 - PhLAM - Physique des Lasers, Atomes et Molécules, 59655 Villeneuve d'Ascq, France

ARTICLE INFO

Keywords:

Water vapour
Aerosol-cloud-rain interactions
Species competition dynamics
Cloud physics
Cloud field organisation
Tropospheric measurements

ABSTRACT

In this paper, a non-linear bulk model inspired from species competition dynamics is proposed in order to describe the physics of water vapour-aerosol-cloud-rain interactions. Despite the complexity of such interactions, certain non-trivial aspects of the macro behavior of a cloud are predictable without concerning the full complexity of the dynamical system. The model is for warm clouds (no ice) and it consists in a set of three non-linear differential equations. This species-competition model is confronted with *in situ* measurements in different situations: for pristine environments (1) at the high-altitude Maïdo Observatory (Indian Ocean, Reunion Island) and (2) in a pure oceanic context around the Reunion Island (AEROMARINE field campaign) and for a continental urban context (3) in Lille (North of France). Compared with observations (radar, radiometric measurements), it is shown that, whatever the situation considered, the model reproduces efficiently the macro features of clouds, like cloud occurrences, cloud water content magnitudes, and cloud-rain links. The model is adapted to a two-dimensional (horizontal) grid and its predictions are compared with the ERA5 reanalyses above the Hauts-de-France region and in the pristine Southwest Indian Ocean (around Reunion Island). Furthermore, satellite data enable to corroborate that the model clearly shows promising results for the horizontal cloud field organization. The spatiotemporal resolution of this model is adaptable according to the needs and it can be used in any region and at the desired altitude provided that data be available for implementation. In this paper, it is also suggested that the model may be fruitful to derive from measurements, by means of an optimization scheme, different theoretical parameters not easy to determine. The model runs on a laptop with a relatively short time (of the order of the minute); it is not intended to supplant comprehensive models, but it may be fruitful to understand the essential mechanisms in warm cloud formation.

1. Introduction

Despite recent advances, atmospheric models incompletely capture the effects of aerosols on climate through their interactions with clouds (Rosenfeld et al., 2014). Indeed, these interactions are complex and require parameterizations for wide ranges of time (from the near-instantaneous Twomey effect to the longer timescales required for cloud adjustments - Gryspeerd et al., 2021) and space scales (from microphysical processes to the organization of cloud fields - Stevens et al., 2020). However, the treatment of aerosols in these models is hampered by the lack of measurements and the still incomplete

understanding of the mechanisms involving clouds. The modification of the Earth's radiative budget caused by aerosol-cloud interactions is still highly uncertain and these uncertainties (they are between -0.71 and -0.14 W m^{-2} with a 5–95% confidence range according to Bellouin et al., 2020) have been accentuated by anthropogenic aerosol emissions since the beginning of the industrial era (Bellouin et al., 2020).

The effect of aerosol-cloud interactions is not limited to radiative forcing. At the end of the “food chain” of aerosol-cloud processes, precipitation can be affected by aerosols. Thus, the interactions between aerosols, clouds and precipitation are intrinsically linked and must be treated as a unique problem when attempting to better understand such

* Corresponding authors.

E-mail addresses: faustine.mascout@univ-lille.fr (F. Mascout), olivier.pujol@univ-lille.fr (O. Pujol).

<https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2022.106588>

Received 17 August 2022; Received in revised form 26 November 2022; Accepted 19 December 2022

Available online 23 December 2022

0169-8095/© 2022 Elsevier B.V. All rights reserved.

a complex system (Koren and Wang, 2008).

Aerosol-cloud interactions still need to be investigated with various approaches for better understanding and in order their representation in current climate models to be improved. The relation that aerosols and clouds have throughout the life cycle of a cloud (formation/dissipation, lifetime, spatiotemporal evolution, etc.) is still an active field of cloud physics research (Seinfeld et al., 2016); cloud field organization at the mesoscale is not well parameterized in numerous climate simulations (Bony et al., 2000). There are currently two main modeling approaches to climate theory: (1) to use general circulation models which try to represent, as exhaustively as possible, all of the complex dynamics (at different scales) of the atmosphere and/or ocean, and (2) to focus on idealized (i.e. simplified but physically realistic) models with the aim to understand the behavior of a specific phenomenon in the climate system. The models of the first kind require powerful computers and are time consuming whereas those of the second kind, by capturing the essential physics, can run quickly on a laptop. Held (2005) has underlined the gap in these two approaches and has highlighted the need to understand idealized nonlinear systems with only a few degrees of freedom before being able to understand the full complexity of the climate system. For this, it is interesting to use an interdisciplinary approach by reconciling physics, climate sciences and mathematics (Wettlaufer, 2016).

Following this point of view, and in order to understand the behavior and evolution of aerosol-cloud-rain interactions, Pujol and Jensen (2019) introduced a bulk model which follows the idea of modeling cloud-precipitation interaction through species competition that exhibits prey-predator behavior with rain as predator and cloud droplets as prey. In this model, a cloud is considered as a physical system defined by three populations (degrees of freedom): the cloud water content L_c (in g m^{-3}), the rain water content L_r (in g m^{-3}) and the concentration (in number) of cloud droplets N_d (in cm^{-3}). The values of the three macroscopic populations are unique, i.e. they concern the whole cloud (there is no spatial variation). The model is based on the following system of bulk coupled-first order differential equations:

$$\begin{cases} \frac{dL_c}{dt} = A_c L_c - KN_d^{-2} L_c^4 - k_r L_c L_r \\ \frac{dL_r}{dt} = -A_r L_r + KN_d^{-2} L_c^4 + k_r L_c L_r \\ \frac{dN_d}{dt} = A_c (N_0 - N_d) - k_c L_c^2 - k_r L_r N_d \end{cases} \quad (1)$$

Some macro-scale properties of cloud-precipitation interactions are highlighted using these three relatively simple equations of three degrees of freedom, rather than a fine-scale description with complete microphysical details. The meaning of the different terms of this system of equations and of the different constants involved, namely the set $\{A_c, A_r, K, k_r, k_c\}$ are summarized in Table 1. Pujol and Jensen (2019) have shown that the aerosol-cloud-rain system, as modeled by Eq. (1), exhibits realistic oscillating behaviors, especially a delay between cloud formation and rain appearance of a few tens minutes ($\approx 20\text{--}30$ min). We recall that in this last reference, as here in this paper, the kinetic constants have *net* values representing an equilibrium. In particular, the net value of A_c represents a balance between evaporation and condensation.¹

A precision is in order at this stage. As detailed in Pujol and Jensen (2019), the terms in Eq. (1) are a straightforward consequence of the

¹ The evaporation process would consist in a term of the form $-A_1 L_c$ with $A_1 > 0$, while condensation is $A_2 L_c$ with $A_2 > 0$. The net process is $(A_2 - A_1) L_c$, i.e. $A_c L_c$. Choosing $A_c > 0$ is obvious: if A_c were negative, the model would never form clouds. This is completely analogous to a chemical reaction: $A + B \leftrightarrow C$ is an equilibrium characterized by a kinetic constant being the balance between the competing direct and inverse reactions.

Table 1

Details (physical processes represented, values and units) of the different parameters in Eq. (1) (Pujol and Jensen, 2019).

| Variables | Physical meaning | SI units |
|--------------------------|--|--|
| L_c | Cloud water content | g m^{-3} |
| L_r | Rain water content | g m^{-3} |
| N_d | Cloud droplet number concentration | cm^{-3} |
| N_0 | Background aerosol concentration | cm^{-3} |
| Kinetic constants | | |
| Physical meaning | | Value/SI units |
| A_c | Positive constant which gives the timescale ($\tau_c = 1/A_c \approx 50$ min) of cloud water content evolution | 0.02 min^{-1} |
| A_r | Positive constant which gives the timescale ($\tau_r = 1/A_r \approx 10$ min) of rain water content evolution (rain out process) | 0.1 min^{-1} |
| k_c | Constant from the cloud water kernel (Seifert and Beheng, 2001) | $7.55 \times 10^{11} \text{ cm}^3 \text{ g}^{-2} \text{ min}^{-1}$ |
| k_r | Constant from the rain water kernel (Seifert and Beheng, 2001) | $3.47 \times 10^5 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-2} \text{ min}^{-1}$ |
| K | $K = [k_c / (20x^*)](\nu+2)(\nu+4)(\nu+1)^{-2}$ where x^* is a cloud drop mass separating droplets from raindrops (precisely, $x^* = L_r/N_r$, where N_r is the raindrop number concentration), and $\nu = 2$ is the shape parameter of the gamma distribution (Long, 1974) | $3.41 \times 10^{17} \text{ cm}^3 \text{ g}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |
| Terms of Eq. (1) | | |
| Physical meaning | | SI units |
| $A_c L_c$ | Sources of cloud water content | $\text{g m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |
| $-A_r L_r$ | Sinks of rain water content | $\text{g m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |
| $KN_d^{-2} L_c^4$ | Autoconversion: a key microphysical process whereby raindrops are formed by collision-coalescence processes of cloud droplets. | $\text{g cm}^{-3} \text{ m}^{-7} \text{ min}^{-1}$ |
| $k_r L_r L_c$ | Accretion of cloud water by rain water | $\text{cm}^3 \text{ m}^{-6} \text{ min}^{-1}$ |
| $A_c (N_0 - N_d)$ | Supply of cloud droplets from the surroundings | $\text{cm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |
| $-k_c L_c^2$ | Cloud droplet self-collection | $\text{cm}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |
| $-k_r L_r N_d$ | Accretion of cloud water by rain water | $\text{g m}^{-3} \text{ min}^{-1}$ |

stochastic collection equation (SCE) with polynomial kernel, as explained in Seifert and Beheng (2001). The SCE results from collision theory and involves realistic size spectra (many often, gamma distributions). Details on the SCE can also be found in Pruppacher and Klett (2010). Note also that N_d and L_c are two independent degrees of freedom (double-scheme), which means that, in the simulations, an increase (decrease) of N_d concomitant to a decrease (increase) of L_c , can be reasonably interpreted as a creation of big (small) droplets.

In the life cycle of clouds and precipitation, not only cloud condensation nuclei (CCN) are important but water vapour is also a key element. This is because cloud droplets form in the presence of CCN on which water vapour can condense. According to the latest assessments (Douville et al., 2021, Fig. 8.1), the water vapour flux from the surface towards the troposphere is about $540 \text{ km}^3/\text{yr}$ with an oceanic contribution of about 86%, corresponding to approximately six times that of land (accuracy of 10%). All of this water vapour is transformed into precipitation. A metaphor helps to understand the role of water vapour and aerosol in cloud formation. Let us imagine a cloud as motor engine where water vapour is the fuel and the aerosol the spark plug. No matter how many spark plugs (aerosols) there are, the engine (a cloud) will not ignite or go faster if it runs out of fuel (water vapour); it will eventually stop. That is to say that, in an air mass, the liquid water content cannot increase with no water vapour available; it can only decrease. Cloud life (birth, growth, death) is a subtle interplay between water vapour and aerosols. Water vapour has also an impact on aerosol optical properties: e.g. Zhu et al. (2019) reported, from AERONET measurements in China, that

an increase of the column of water vapour by 0.1 cm could enhance the aerosol direct radiative forcing at the bottom of the atmosphere by about 1.1–2.8 W m⁻². Furthermore, Stathopoulos et al. (2021) has shown causal relationships between water vapour and AODs, cloud cover, and cloud optical thickness. It is generally recognized that the understanding of the effects of aerosols on cloud formation and life cycle needs improvement. We hypothesize that a way to achieve a better understanding is to consider water vapour explicitly in the model as an independent variable, as supported by the latest IPCC report (Douville et al., 2021). Indeed, high-resolution models show that aerosol concentrations can have a significant impact on ambient humidity and therefore on cloud formation. In addition, our study takes place in an oceanic context, dominated by marine aerosols. These aerosols are mostly hygroscopic particles whose optical properties vary according to atmospheric humidity. Thus, adding this parameter would make it possible to study the sensitivity of marine aerosols to humidity.

This is why, in this paper, the previous model of Pujol and Jensen (2019) is generalized by introducing explicitly the water vapour content (L_v) as a new variable in the system of equations. Doing so, a model of water vapour-aerosol-cloud-rain dynamics is presented in this paper. To our knowledge there is not such an explicit effect in the current cloud models. Furthermore, an estimate of the Cloud Optical Thickness (COT) and of the cloud albedo (R_c) is proposed. The system of three equations which describes the new model is presented in the next section. This system is used in three real situations, *i.e.* with experimental data, which are characterized by different aerosol and water vapour contents. These situations are:

- In Saint Denis (Reunion Island) in the Indian Ocean which is a pristine region (where land and human activities have few impacts, Mallet et al., 2018), in a background aerosol environment which can be considered close to pre-industrial conditions. This case study allows us to evaluate the behavior of aerosol-cloud-rain interactions under clean marine conditions, with little or no anthropogenic contributions. It is worth recalling that oceans cover about 70% of the Earth surface and are thus of prime importance in the climate system. Especially, they represent the most important exchanges with the low troposphere of energy and humidity and they are a reserve of CCN.
- At the Maïdo Observatory (Reunion Island, 21.1°S, 55.4°E), at an altitude of 2.2 km above sea level, in the same pristine conditions as before (Baray et al., 2013). The specificity of this site (presented in detail later) is its own context and altitude.
- In an urban/continental context in Lille (North of France). This case study makes it possible to evaluate the impact of human contributions on aerosol-cloud-rain interactions.

These three case studies are detailed in Section 2.2. They assess aerosol-water vapour-cloud-rain interactions under pristine conditions (*i.e.* with little or no anthropogenic contributions) and in a continental urban region where anthropogenic contributions to aerosol concentrations are in the majority. The associated experimental data are *in situ* measurements from the AEROMARINE field campaign in Saint Denis (Reunion Island; Mascout et al., 2022), those from the Maïdo Observatory (Reunion Island) as well as measurements made on the ATMOSPHERIC Observations in lILLe (ATOLL²) platform in Lille (all presented in Section 2.2).

To assess the realism of this model, the results are compared with radiometric and radar measurements in Section 3. Finally, in order to evaluate the horizontal organization of cloud fields, the model is transposed to a two-dimensional (2D) horizontal grid above the Indian Ocean and the Hauts-de-France region (centred around Lille) and compared with ERA5 reanalyses and satellite observations (Section 3.4).

A conclusion and some perspectives are given in Section 4.

2. Description of the species-competition model with water vapour

2.1. Model operation

As already indicated above, water vapour is of fundamental importance for the understanding of aerosol-cloud-rain interactions. Consequently, the initial equations (Eq. (1), from Pujol and Jensen, 2019), are modified by introducing water vapour as an *explicit* variable.

The new model is defined by the following set of equations:

$$\begin{cases} \frac{dL_c}{dt} = \alpha A_c(L_v - L_c) - KN_d^{-2}L_c^4 - k_rL_cL_r \\ \frac{dL_r}{dt} = -A_rL_r + KN_d^{-2}L_c^4 + k_rL_cL_r \\ \frac{dN_d}{dt} = A'_c(L_v - L_c)(N_0 - N_d) - k_cL_c^2 - k_rL_rN_d \end{cases} \quad (2)$$

where L_c , N_d and L_r have the meaning already indicated above, and where L_v is the water vapour content (in g m⁻³). This quantity is not constant; rather its temporal variation cannot be neglected as measurements reveal (air mass absolute humidity evolve quickly, see Section 2.2 and further in the text). Compared to Eq. (1), the change is the term which represents the supply of cloud droplets by condensation. Clearly, from this process alone, the mass of cloud water cannot exceed the mass of water vapour, so L_c must be lower than L_v . If, at time t , L_c reaches L_v (saturation), then $L_v(t) - L_c(t) = 0$ g m⁻³ (condensation does not occur any more). Condensation can occur, at a later time, if $L_v - L_c$ becomes positive. It is worth mentioning that the term $A_c(L_v - L_c)$ is analogous to that which represents the behaviour of a capacitor connected to a generator: the electrical charge (here L_c) cannot be greater than the electrical charge (here L_v) that the generator can furnish. The term $A'_c(L_v - L_c)(N_0 - N_d)$ can be envisioned as $A_{c,v}(N_0 - N_d)$ where $A_{c,v}$ is a kinetic constant which depends upon the water vapour content. Indeed, the higher the L_v , the higher $A_{c,v}$ and the shorter the timescale to form a droplet.

The factor α is a binary parameter which can be equal to 0 or 1, depending on a relative humidity threshold (typical of the studied area). Such a threshold is a computational boolean to avoid models generating clouds when humidity conditions are not favorable. The threshold is taken below 100% in order to take into account that thermodynamical fluctuations can (super) saturate an air mass and also possible dynamical features, like air mass lifting, propitious to cloud formation. In other words, this threshold indicates to the computer that it must stop to condense water vapour if RH is not high enough. Here, we will use a threshold of 70% or 80% depending on the concrete situation investigated. The value 70% is for the Maïdo site because of the presence of orographic winds which lift moist air and favour cloud formation. These values are typically those encountered in models (*e.g.* RAMS, WRF, MESO-NH). Hence, if $RH(t) > 70\%$ (or $RH(t) > 80\%$), then $\alpha = 1$, otherwise $\alpha = 0$. The value of the RH threshold is based on (independent) measurements, according to the situation considered, precisely the correspondence between RH values and the presence of clouds. This makes the chosen values representative of the situations. Fortunately, some tests have indicated that our model is not a lot sensitive to the RH threshold at more or less than 5%. However, if the threshold were too low, the model would generate clouds which rarely (to not say never) dissipate (for the model, there is always enough humidity to give a cloud). Conversely, if the threshold were too high, clouds never form, (the model “understands” that there is humidity is never sufficient).

This new set of equations (Eq. (2)) can be formulated differently by defining the following quantities, at time t :

² <https://www-loa.univ-lille1.fr/observations/plateformes.html?p=lille#>.

- $L_{c,d} = L_v - L_c$ is the cloud water content *potentially available*, i.e. if water vapour condenses.
- $N_a = N_0 - N_d$ is the concentration (in number) of CCN in the system under the assumption that one droplet formed corresponds to one dissolved, or wet, aerosol. Otherwise stated, N_a is the number of dry aerosol able to condense water vapour.
- $L_l = L_r + L_c$ is the quantity of liquid water in the system.

The SI units of $L_{c,d}$ and L_l are obviously those of L_c (or L_r), and that of N_a is that of N_d (or N_0). These three quantities constitute an alternative to the four above variables which gives another insight.

Using these three variables, the system of Eq. (2) can be written as follows:

$$\begin{cases} \frac{dL_{c,d}}{dt} = \frac{dL_v}{dt} - \alpha A_c L_{c,d} + K(N_0 - N_a)^{-2} (L_v - L_{c,d})^4 + k_r (L_v - L_{c,d})(L_l + L_{c,d} - L_v) \\ \frac{dL_l}{dt} = \alpha A_c L_{c,d} - A_r (L_l + L_{c,d} - L_v) \\ \frac{dN_a}{dt} = \frac{dN_0}{dt} - A'_c L_{c,d} N_a + k_c (L_v - L_{c,d})^2 - k_r (L_l + L_{c,d} - L_v)(N_a - N_0) \end{cases} \quad (3)$$

From $L_c(t)$ and $N_d(t)$ given by Eq. (2), one can calculate the quantity $\beta = [9\pi N_d L_c^2 / (2\rho_w^2)]^{1/3}$ which enters into the definition of the cloud optical thickness: $COT \propto h\beta$ (Seinfeld and Pandis, 1998) where h is the cloud thickness and $\rho_w = 1000 \text{ kg m}^{-3}$ the liquid water density. Because our model (Eq. 2) does not provide any information about h , a solution may be to focus only on β and to consider a COT for a cloud of thickness unity. Another possibility is to estimate h , either using a realistic statistical value or using experimental data. It is this last option which has been chosen in this work. To estimate h at each time step, we have used the liquid water profiles measured by a microwave radiometer (presented hereafter). An evaluation of the cloud albedo R_c of the simulated cloud can be evaluated using $R_c = COT / (COT + 7.7)$ (Seinfeld and Pandis, 1998). Clouds with more droplets are brighter (at constant liquid water path), and therefore they reflect more short-wave radiation back into space, exerting negative radiative forcing. This is the radiative forcing of aerosol-cloud interactions (RFaci), also called the first indirect effect or cloud albedo effect, e.g. Douville et al. (2021).

2.2. Input data to feed model

To run the model, the evolution of three input parameters is needed: $N_0(t)$, $L_v(t)$, and $RH(t)$ for the determination of α . Another input is the cloud thickness h , which is needed for the calculation of the COT of the simulated clouds.

As indicated in the introduction, three different sets of observations have been used: (1) maritime/mountainous (Maïdo Observatory, Reunion Island), (2) oceanic (Saint-Denis, Reunion Island); and (3) urban (Lille, ATOLL station). Below is a short description of these three sites. For all of them, L_v , N_0 , RH and h are provided by the following instruments.³

- A MicroWave Radiometric Profiler (MWRP, RPG-HATPRO G5), which continuously (time resolution 1 min) measures thermodynamic vertical profiles (0–10 km)⁴ of the tropospheric absolute and relative

humidities. Such an instrument has already been proved to be of considerable interest to investigate processes triggered by water vapour (e.g. Louf et al., 2015). The MWRP is also able to provide vertical profiles of the liquid water content (LWC), which is then used to estimate h : in the presence of a cloud ($LWC \neq 0 \text{ g m}^{-3}$), the difference between the maximum and minimum altitudes for which $LWC \neq 0 \text{ g m}^{-3}$ are assumed to coincide with h . It has to be noted that the LWC given by the MWRP is an approximate value derived from its upper limit (i.e. the adiabatic LWC) using the empirical relation of Karstens et al. (1994). We precise that multi-layer clouds have been excluded, so that the h derived is for one cloud. There are two reasons for this: (1) radiometric observations have shown very few cases of multi-layer clouds for the examples considered here; (2) focus is put on liquid low-level clouds. In the very few probable presence of a, e.g., two-layer clouds, there would be two altitude intervals for which $LWC \neq 0$, but one can just consider the cloud of lowest altitude, assuming inter-layers independence. In terms of the bulk model presented in this manuscript, dealing precisely with multi-layer clouds would require at least two values of h and as many systems of equations (not necessarily uncoupled, since contiguous layer may interact) as cloud layers.

- A Condensable Particle Counter (CPC) TSI (model 3007 during AEROMARINE and model 3776 at the Maïdo Observatory), which provides the concentrations (in number) of aerosols with sizes larger than 10 nm, viz. in the Aitken, accumulation and coarse modes. The relative accuracy is $\pm 20\%$. In order to avoid underestimating N_0 , and therefore its impact on cloud formation, it is important to consider the full range of sizes available, even the smallest aerosol size. Indeed, Xu et al. (2022) have shown that the contribution of Sea Salt Aerosols (SSA) to the global CCN number, in particular the SSA in the Aitken mode (size larger than 10 nm), has been neglected in the literature. Their study has highlighted that SSA are present in all size ranges and that, therefore, the number of CCN is particularly underestimated in regions of strong winds. It is thus reasonable to identify N_0 with the CCN number. This is not a severe assumption, since Mascout et al. (2022) have showed that, in this marine context (Reunion Island), aerosol sizes is 132 nm on average, which is a typical order of magnitude for CCN, and Mallet et al. (2018) showed that more than 80% these aerosols are SSA. The ionic properties of such aerosols is propitious to cloud droplet formation.

In the case of the ATOLL station, the CPC is the TSI model 3775 (relative accuracy of $\pm 10\%$). It was, in particular, associated, inside a SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), with a differential mobility analyzer (Villani et al., 2007) which previously (i.e. before counting) selected particles according to their size from 15.7 nm up to 800 nm. In Lille, assuming that N_0 is the number of CCN may appear not obvious. But, in the equation of the model N_0 can be changed the CCN number (if measurable) or, formally, by βN_0 , with $0 \leq \beta \leq 1$ (i.e. N_0 is decreased). We will come back to this timely. Also, we will see later (Section 2.3) that a way to deal with such “uncertainties”, which finally reflect the specificity of a region, can be addressed by modifying the set of kinetic constants, viz. optimizing it to the region.

Moreover, we have to assume that ground-based measurements represent, or at least are close to, the aerosol concentrations at the altitude of cloud formation, because we do not have the possibility to access the latter, to the exception of AEROMARINE where airborne measurements were realized (see Mascout et al., 2022). The assumption is not problematic: N_0 can be weighted by β (this time not necessarily lower than 1), if the information is known, and as just mentioned above optimizing of the constants is helpful to circumvent the problem of no exact colocalization between the system and the measures.

Note that L_v and N_0 , as being measured, are not only resulting from local (algebraic) production but also from external transport.

³ Data used in this paper are assumed to be reliable for two reasons: (1) some come from Mascout et al. (2022) and the co-authors of this reference who are PI of the instruments involved have checked, controlled and validated measurements; (2) Maïdo and ATOLL are long-life platforms with engineers and technical staff controlling regularly data quality. Data are available on <https://ebas-data.nilu.no/Default.aspx> (Maïdo Observatory) and on <https://loa.univ-lille.fr/observations/plateformes.html?p=lille> (ATOLL); they can be furnished by e-mailing the corresponding author of the present paper.

⁴ The origin of the altitude for these profiles is the position of the instrument.

2.2.1. Maïdo Observatory (Reunion Island)

The Observatory is in a background of aerosols typical of a pristine environment under prevailing southeasterly trade winds in the marine boundary layer. The meteorological field in this region is characterized by wet (from November to April) and dry seasons (from May to October; Simu et al., 2021). The instruments based at the Maïdo Observatory enable long-term observations of the marine boundary layer (daytime) and of the free troposphere (night-time) (Guilpart et al., 2017; Foucart et al., 2018). In this study, we have analyzed the wet season using measurements made in February 2019.

The measured aerosol concentrations and humidity 1 km above the instrument, which have been introduced in our model with a time step of $\Delta t = 1$ min, are displayed on Fig. 1A. It can be seen that aerosol concentrations are low during night-time ($N_0 \leq 1000 \text{ cm}^{-3}$) when the Observatory is located in the free troposphere. During daytime, under the influence of the marine boundary layer, N_0 can reach several thousands (e.g. two peaks at 5000 and 10000 cm^{-3}). The same behaviour can be observed for humidity: during night-time, $RH < 40\%$ and $L_v \leq 2 \text{ g m}^{-3}$ (approximately); during daytime RH is clearly greater than 40% and can peak at almost 90%. The water vapour content L_v is always greater than 2 g m^{-3} : it is rather close to 4 or 5 g m^{-3} with a peak at 8 g m^{-3} when $RH \approx 90\%$. The Maïdo offers thus situations with well marked nocturnal/diurnal differences characterized by relatively low (high) values of N_0 , L_v and RH during night-time (daytime). This is related to a complex interplay between sea-land breezes, katabatic winds and a complex topography: air masses at the Maïdo Observatory have various origins (i.e. oceanic, from the vegetation present on the slopes of the Maïdo or from local human activities). Aerosols measured have thus

various physico-chemical properties and thermodynamic parameters are quite variable.

2.2.2. Saint Denis (Reunion Island)

In this case, we have used *in situ* measurements from the AEROMARINE field campaign. This campaign, which took place in 2019 off the coast of Reunion Island, in a pristine environment considered to be close to pre-industrial conditions, allows the determination of the distribution of (marine) aerosols, to quantify a background concentration of natural aerosols and to characterize the aerosols in this context (Mascout et al., 2022). It also gave the thermodynamical profiles of the troposphere (up to 10 km), especially humidity.

Fig. 1B displays $N_0(t)$, $L_v(t)$ and $RH(t)$ in this context. It can be seen that L_v varies between 7 g m^{-3} and 10 g m^{-3} , and RH between 75% and 85%. Their evolution is rather stable with no significant variation on average. Similarly, N_0 is between 100 cm^{-3} and 500 cm^{-3} . These values are much lower than those measured at the Maïdo Observatory. This may be explained by in-flight concentrations measured in the free troposphere during the campaign, which are mainly of marine origin, whereas at the Observatory, aerosols of different origins are measured.

2.2.3. Urban context: Lille

The model is also fed with *in situ* measurements made in an urban environment. The data from the ATOLL platform in Lille (Hauts-de-France, France) provide a good example of such an environment. Lille is situated in the Hauts-de-France Region, which is a territory with little pronounced relief endowed with highly urbanized, industrialized but also rural areas. It is at the crossroads of atmospheric air masses enriched

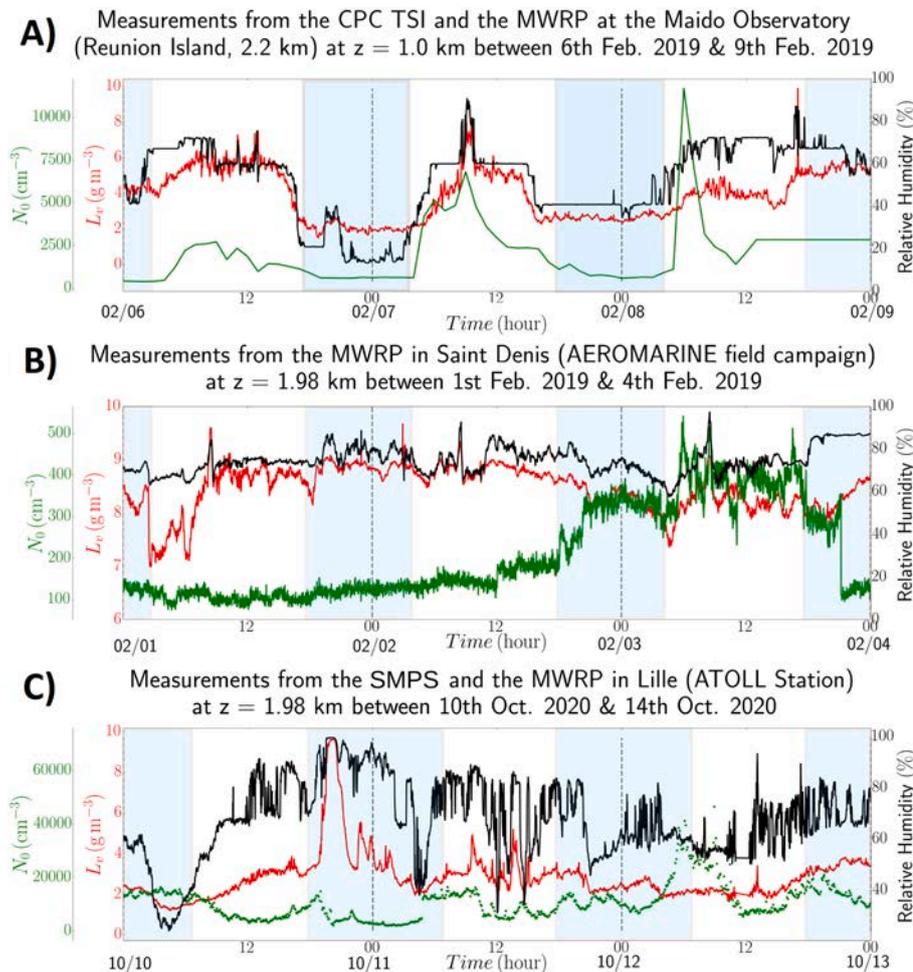


Fig. 1. Evolution of L_v (in g m^{-3}), RH (in %) and N_0 (in cm^{-3}) for three different situations: A) Maïdo Observatory, between 6th and 9th February 2019; B) Saint-Denis (Reunion Island), during the AEROMARINE field campaign, between 1st and 4th February 2019, and C) ATOLL station (Univ. Lille), from 10th to 14th October 2020. The data of humidity come from the MWRP, RPG-HATPRO G5 and the aerosol concentration are given by CPC TSI. The blue zones in the subfigures correspond to night-time measurements.

with gaseous and particulate elements (natural and anthropogenic), from sometimes very distant regions (Bovchaliuk et al., 2016; Chen et al., 2000; Laj et al., 2020; Mortier et al., 2013). The ATOLL station allows to monitor and investigate the aerosol-cloud-gas composition, and its evolution in the troposphere of the extreme north of France from the ground up to 10 km of height.

Fig. 1C shows an example of measures from ATOLL. It can be observed that $N_0 \approx 2 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$ (on average), with a peak at about $4 \times 10^4 \text{ cm}^{-3}$, which is much higher than in the Indian Ocean (pristine conditions). In addition, L_v in Lille (mid-latitude) is, on the whole, lower around 3 g m^{-3} than under the Tropical area of Reunion Island. One can note, however, that L_v can exceed 5 g m^{-3} and peak up to 10 g m^{-3} for some special events.

These three environments are thus interesting for a model of cloud formation, due to the different behaviours they represent in terms of humidity and aerosol concentration: well-marked diurnal/nocturnal separation (Maïdo case), relatively stable conditions with low values of N_0 and high values of L_v (Saint-Denis case), and rapidly changing N_0 and L_v evolutions (urban context in Lille).

2.3. Optimization of the kinetic constants

The model (Eq. (2)) uses a set of kinetic constants whose values presented in Table 1 permit to form clouds with realistic macroscopic features, like the order of magnitude and evolution of the cloud water and rain contents (L_c, L_r) (not shown). See Pujol and Jensen (2019) for some examples and details about these kinetic constants which come from collision theory and empirical considerations. These constants play a similar role as those used to characterize the kinetic and the efficiency of a chemical reaction. They belong to the larger class of reaction-rate theories (Hänggi et al., 1990).

Nonetheless, in order to improve the performance of the model the kinetic constants $\{K, k_r, k_c, A_c, A'_c, A_r\}$ can be adapted to the region under consideration. In this way the best combination of kinetic constants can be obtained to reproduce the evolution of *in situ* measurements. The adjustment method consists in using a least square minimization technique. The procedure we have developed is as follows: (1) first, for each kinetic constant, we define an interval of physically possible values. Each interval contains a sufficient number of values, one of them being the “initial” value given in Table 1. From this, one thus defines a large number of independent sets of the kinetic constants. (2) We then perform N random draws in each interval. It means that for one draw, we have a set of six random values. After N draws, we have an ensemble of N independent sets of six values of the kinetic constants. (3) Each set is introduced in the model which runs for some time. We run the model N times with the same initial conditions, but with different set of values of the kinetic constants. (4) For a given run, at each time, we compare the modeled cloud water content, $L_c^{(mod)}(t)$, with the available measured cloud water content, $L_c^{(obs)}(t)$, and we define the score:

$$S(n) = \frac{1}{t_f} \sum_{t_i}^{t_f} [L_c^{(mod)}(t) - L_c^{(obs)}(t)]^2 \quad (4)$$

where t_i is the initial time of the simulation ($t_i = 0$) and t_f is the final time. The above equation defines a function of n which is the number of a random draw ($1 \leq n \leq N$): it gives the score S for the random draw numbered n . (5) The draw number n for which S is minimum is finally identified and the corresponding set of values of the kinetic constants is chosen. It is assumed that these values represent the best combination for cloud formation in the given environment (maritime, continental, etc) and the season under consideration. In the present work, $N = 5000$ and $t_f = 72 \text{ h}$. Table 2 summarizes the results for the three situations presented in Section 2.2. The first column lists the constants with their SI units, the two next columns indicate the interval chosen and the fourth column is the number of values in this interval for the corresponding

constant. The three columns on the right-hand side of the table give the optimized values of the constants.

Some comments are required. Here, $t_f = 72 \text{ h}$, but of course the model can be run for shorter or longer times. That depends on the availability of measurements, on the macroscopic timescales wished for the life of the modeled clouds (hour, day, week, etc.) and whether S changes significantly, for a given value of N , as the simulation is running. In the three situations considered here, a final time of 72 h, was sufficient. Also, the number N should be high enough in order to have a large statistical ensemble of N random sets of the kinetic constants. Here, we have noticed that such sets did not change significantly after $N \approx 2000$. However, we have taken $N = 5000$ for better convergence. A similar comment can be made about the number of values for each kinetic constant in the range of values initially defined (about 10 millions). It is important to cover a large spectrum of values with a sufficient density of values. Our choice has been that given in Table 2. We assumed that L_c was the most suitable variable to use for calculating S to determine the best choice of kinetic constants. This assumption has been guided by three considerations: (1) L_c is the most important variable to characterize cloud formation, (2) L_c was the most reliable measurement available at any time (from monitoring of the MWRF) and, (3) L_c belongs to system of coupled equations, so that it reflects the behaviour of all the system, *viz.* the adjustment of the kinetic constants, explicitly conducted with L_c , is also (implicitly) influenced by the two other degrees of freedom L_r and N_d . In principle, parameter identification could have been carried out with more sophisticated optimization techniques, such as those provided by genetic algorithms. However, the fact that running more than 5000 random draws improved adjustment very little, as we observed with up to 20 000 draws, convinced us that the simple approach followed here was sufficient for our purposes.

The interest of adjusting kinetic constants is threefold.

- These constants have a theoretical origin to which empirical considerations are added. In general, the kinetic constants are not available (at least not directly, nor even in a relatively easy way) from measurements. The fact that different adjusted constants have been obtained in different meteorological situations suggests that the system of Eq. (2) could be used, not only as a model for cloud formation under given situations, but also as a tool to determine optimized values for the kinetic constants from observations in determined context. The potentiality of such an approach will be deepened in future work.
- In relation to this, the second advantage of optimization, by means of many independent observations, is that it allows to embrace efficiently the essential and inherent characteristics of the region of interest in terms of cloud formation. Indeed, this way, the mathematical space of the physical states (thermodynamics, dynamics, chemistry, orography, etc.) of the region is explored as much as possible. Consequently, favourable, and less favourable, conditions (whatever they are) for cloud formation are considered and “merged” statistically in a set of optimized constants. Hence, the latter contain the region specificities, in terms of aerosols properties, “local” (thermo) dynamics, geography (or topography). In the present paper, we put focus on the pristine Indian Ocean and Lille for the easy availability of a lot of data and for pristine oceans are our current scientific concern. But other regions could be tackled: provided that a lot of observations be available, constant can be readily optimized and the model used accordingly. As an interesting case would be the Arabian Peninsula, which is dry, rich in rather hydrophobic aerosols (dust and polluted aerosols with a marine component), sometimes under southeasterly and northwesterly wind influences, and where clouds can form (Weston et al., 2021; Yousef et al., 2020; Francis et al., 2021).
- The constant adjustment can be likened to technology using machine learning and Artificial Intelligence (AI). This new field of technology refers to the possibility for a machine to learn, to perceive its

Table 2

Kinetic constants calculated by a least square minimization method (see text for details) using observations in the three case studies.

| Constant (SI unit) | Minimum value | Maximum value | Number of values | Observation sites | | |
|---|-----------------------|-----------------------|------------------|------------------------------------|-----------------------------------|-----------------------|
| | | | | Maïdo observatory (Reunion Island) | AEROMARINE campaign (Saint Denis) | Lille (ATOLL station) |
| K ($\text{cm}^3\text{g}^{-3}\text{min}^{-1}$) | 2.35×10^{18} | 2.35×10^{20} | 562 | 2.46×10^{18} | 2.32×10^{18} | 1.55×10^{18} |
| k_r ($\text{cm}^3\text{g}^{-2}\text{min}^{-1}$) | 1.47×10^4 | 1.47×10^6 | 147 | 1.3×10^6 | 1.2×10^6 | 1.3×10^6 |
| k_c ($\text{cm}^3\text{g}^{-2}\text{min}^{-1}$) | 7.55×10^{10} | 7.55×10^{12} | 562 | 6.4×10^{12} | 6.0×10^{12} | 4.0×10^{12} |
| A_c (min^{-1}) | 0.0167 | 0.167 | 10 | 0.024 | 0.0185 | 0.0185 |
| A_r (min^{-1}) | 0.0167 | 0.167 | 10 | 0.083 | 0.0167 | 0.0167 |
| A_c' (min^{-1}) | 6.4×10^4 | 6.4×10^5 | 10 | 9.2×10^4 | 7.1×10^4 | 7.1×10^4 |

environment, manage these perceptions, solve problems, and take actions to achieve a specific goal. The computer machine receives data (already prepared or collected *via* sensors), analyzes them and reacts. By analogy, in our case, the data received by the system are the true state of the atmosphere (measurements from the MWRP and particle counters). The kinetic constants drawn randomly are the parameters which allow the model to adapt its behavior in order to get as close as possible to observations. This analogy is not the topic of this paper, but it seems to us interesting to mention that such features could be deepened and developed with the aim to adapt our model to such promising technology.⁵

3. Results

To get started, we take the following initial conditions for all of the case studies considered: $L_c(0) = 10^{-4} \text{ g m}^{-3}$, $L_r(0) = 10^{-4} \text{ g m}^{-3}$ and $N_d(0) = 100 \text{ cm}^{-3}$. The small values of $L_c(0)$ and $L_r(0)$ are chosen to eliminate potential numerical instabilities when choosing $L_c(0) = L_r(0) = 0 \text{ g m}^{-3}$. The simulation time has been chosen to 72 h. The kinetic constants for each of these three observation sites are those obtained in the above section (Table 2).

3.1. Comparison with radar measurements

For the case study at the Maïdo Observatory, the measured L_v and N_0 presented in the previous section have been introduced in the model as input data for a simulation over 72 h between the 6th February 2019 (00:00 UTC) and the 8th February 2019 (23:59 UTC). Based on independent observations, a relative humidity threshold of 70% has been chosen for the determination of α .

Fig. 2 represents the evolution of the simulated L_v , L_c , L_r and N_d (top graph), with a zoom between 5 and 10 h after the initial time (middle graph), and the evolution of $L_{c,d}$, L_l and N_a (bottom graph).

It can be seen that N_d evolves similarly to the background concentration of aerosols N_0 with values ranging, overall, between around 500 and 4000 cm^{-3} , except a peak at 12000 cm^{-3} . In addition, it appears clearly throughout the simulation that cloud formation (L_c peaks) is directly related to the evolution of the water vapour content (L_v), *viz.* clouds form when the absolute humidity is maximum or increasing. L_c is relatively small ($\lesssim 0.3 \text{ g m}^{-3}$) with three peaks exceeding 1 g m^{-3} . It is also observed that the formation of a cloud is followed, after about 10 or 20 min, by the appearance of rain, which is a realistic cloud-rain behavior (rain forms generally after some tens minutes in a warm cloud; e.g. Rogers and Yau, 1996). Rain water content L_r can reach a maximum of 2 g m^{-3} . The variables L_l and N_a follow analogous behaviors to those of L_r and N_d , respectively. It is interesting to note, in particular, that N_a decreases when L_c increases, *i.e.* clouds consume aerosol in the system, and vice versa.

⁵ These technologies are already common in remote sensing. For instance, the MWRP uses a neural network (suitable to the region where it is deployed) with around 26000 thermodynamical and dynamical profiles to further provide realistic and reliable measurements.

The simulated cloud water content L_c , can be compared with that derived from independent radar reflectivity measurements, at the same date, by the METEK MIRA-36 scanning Doppler cloud radar which was deployed at the Maïdo Observatory during the CONCIERTO ANR project. Focus has been put on measurements made vertically at an altitude of 1 km above the instrument. To make the comparison possible, the radar reflectivities (Z) have been converted into cloud water content by means of the Sauvageot formula (Sauvageot, 1992, p. 121-122), $Z = 6.8 \times 10^{-2} L_c^{1.9}$. This relation has empirical basis since it results from the interpolation of aircraft measurements (see also Sauvageot and Omar, 1987). Radar measurements are known to be suitable for cloud measurements and, in addition, no L_c data were available from the MWRP (at the Maïdo Observatory). For this site, the MWRP provides just humidity (L_v and RH) vertical profiles.

Cloud droplets correspond to radar reflectivities lower than -15 dBZ (Sauvageot and Omar, 1987). Fig. 3 displays the modeled and the radar-derived cloud water contents. It can be seen that, on the overall, the model reproduces well the orders of magnitude of L_c ($L_c \leq 1 \text{ g m}^{-3}$) and some cloud occurrences. Note, in particular, the peaks around 12:00 UTC (6th and 7th February) and those on 8th February. However, there are sometimes some relatively short delays (at most one hour) between the predictions of the model and the radar observations. Differences may be explained by the fact that the weather conditions at the Maïdo are complex, especially due to the topography. Also, the reflectivity threshold of -15 dBZ is a mean value with a certain degree of arbitrariness. The transition between what is cloud and what is drizzle (or light rain) is rather fuzzy and occurs around this reflectivity. What is sure is that cloud droplet reflectivity is very low (and negative). If we had chosen a lower reflectivity threshold to identify cloud droplets and then calculate L_c as per the above equation, the number of black dots in Fig. 3 would have been smaller. However, the results obtained from the three equations that define the model provide a relatively reasonable estimate of cloud creation/dissipation.

3.2. Comparison with microwave radiometric measurements

3.2.1. Pristine oceanic context: Saint Denis

Fig. 4 shows a simulation of 72 h between the 1st February 2019 (00:00 UTC) and the 3th February 2019 (23:59 UTC). For this case study representative of a pristine oceanic context, the measurements of L_v and N_0 presented in the previous section (Fig. 1B) have been implemented in the model as input data. Based on independent observations, a relative humidity threshold of 80% has been chosen for the binary value of α .

The top graph represents the evolution of L_c , L_r , N_d and L_v , the middle graph shows the variation of $L_{c,d}$, L_l and N_a , and the bottom graph is an estimation of the cloud albedo (R_c) and the Cloud Optical Thickness (COT). The increasing of L_c is concomitant to a decreasing of N_d , *i.e.* bigger droplets are numerous. This was not so apparent for the above case study (Maïdo). The reason may be that, now, the values of N_0 , like those of N_0 , are relatively small (pristine environment), so that any change is quite easy to see. In addition, each increase of L_c is followed by the activation of rain (L_r increases) about 10 min later. The typical evolution of L_c is characterized by some peaks at around 1 g m^{-3} in a

Prey-Predator Model 72h-simulation with background concentration (N_0) from TSI measurements & Water Vapour content (L_v) from MWRP measurements at the Maïdo Observatory - from Feb. 06th to Feb. 09th 2019

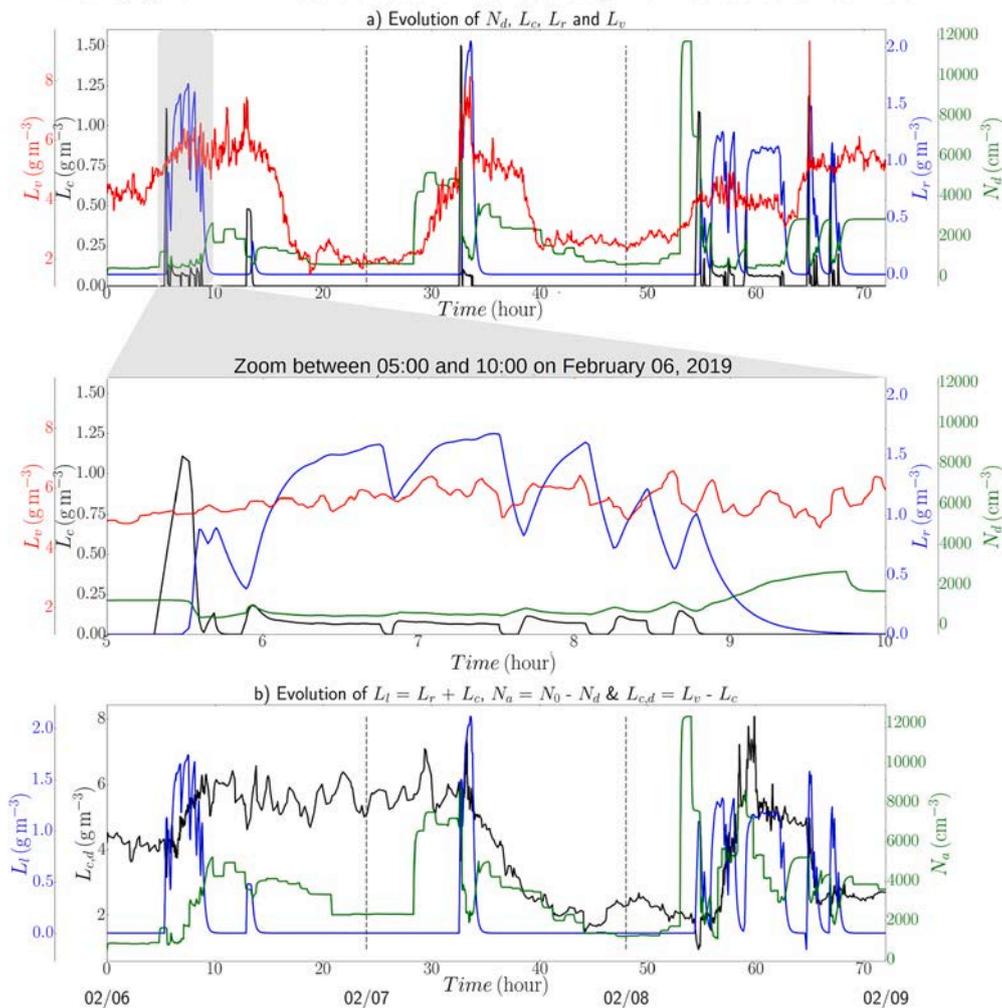


Fig. 2. Maïdo Observatory ($z = 1$ km above ground level), from the 6th to the 8th February 2019: evolution of (a) L_c, L_r, N_d, L_v and of (b) $L_{c,d}, L_i$ and N_a for a simulation of 72 h with background concentration from TSI measurements and water vapour from the MWRP measurements.

Radar measurements VS Prey-Predator Model 72h-simulation with background concentration (N_0) from TSI measurements & Water Vapour content (L_v) from MWRP measurements at the Maïdo Observatory - from Feb. 6th to Feb. 9th 2019

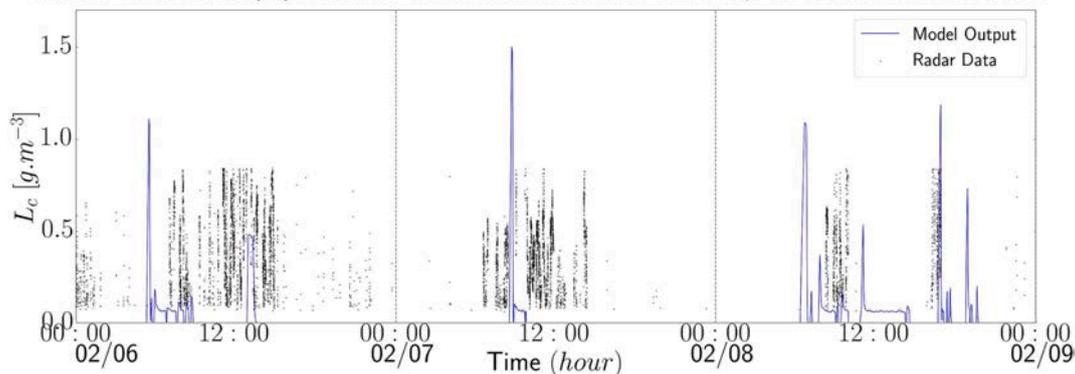


Fig. 3. Evolution of L_c from radar measurements (in black) and model (Eq. (2)) predictions (in blue) for a simulation of 72 h with a background concentration and a water vapour content measured, resp., by the CPC TSI and the MWRP at the Maïdo Observatory, between the 6th and 8th February 2019 (as for Fig. 2).

“background” of $L_c < 0.25 \text{ g m}^{-3}$. The maximum of the rain water content is approximately 5 g m^{-3} . The second graph indicates that the amount of water available in the system $L_{c,d}$ follows the behaviour (in time and in order of magnitude) of the absolute humidity L_v . This can be

explained by the fact that water vapour content is, in this Tropical marine area, almost constant and much greater ($\approx 8 \text{ g m}^{-3}$) than the cloud water content, so that changes in L_c (and even sporadic peaks) do not substantially impact L_v (and so $L_{c,d}$). The same occurs for N_a which

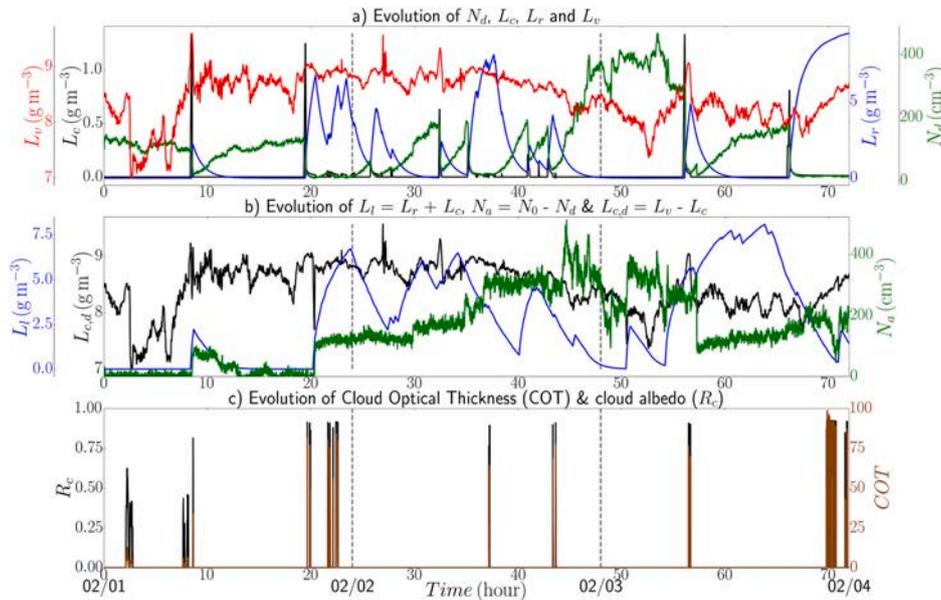


Fig. 4. Saint Denis (Reunion Island), between 1st and 4th February 2019: evolution of (a) L_c , L_r , N_d and L_v , (b) $L_{c,d}$, L_l and N_a , and, (c) Cloud Optical Thickness (COT) and albedo (R_c), with background aerosol concentration (N_0) from τ_{SI} measurements and water vapour content (L_v) from MWRP measurements.

presents an evolution and orders of magnitude similar to N_0 , except at the end of the simulation, despite of the changes in N_d . This means that, as for water vapour, the system is fed with a substantial flux of aerosol that permits to compensate possible modifications due to the evolution of N_d . This is quite interesting knowing the pristine marine conditions. Finally, concerning the cloud optical properties, the estimated COT is mainly greater than 75 and the $R_c > 0.75$. This corresponds to low altitude marine clouds of the stratus type, which is consistent with the kind of clouds usually present in this region.

The modeled cloud water content is now compared with the cloud water content determined from radiometric measurements (Fig. 5). It is observed that the general behavior of cloud formation is well represented by our system of three equations. Indeed, putting aside four point clouds during this simulation of 72 h, the model correctly reproduces the appearance and dissipation of clouds, although some delays of at most one hour are not rare. Moreover, the orders of magnitude of the modeled cloud water content are consistent with those furnished by the MWRP. It has to be recalled that the MWRP does not measure directly cloud water content but derives it from an internal algorithm based on adiabaticity of cloud formation. Another explanation of the observed differences may be that the input data (L_v and N_0) are not colocated. During AEROMARINE, the MWRP was deployed in Saint Denis (north of Reunion Island) while aerosol concentrations were measured during light flights to the west off the Island. However, the global agreement between our model and the MWRP outputs is not so bad, which suggests that the results presented herein are consistent.

3.2.2. Urban context: Lille

We now turn to an urban context and run the model for a 72 h-simulation between the 10th October 2020 (00:00 UTC) and the 12th October 2020 (23:59 UTC) using, as input data, measurements (L_v , N_0) from the ATOLL station. Here too, based on independent observations, a relative humidity threshold of 80% has been chosen for the determination of α .

Fig. 6 displays the outputs out the model. The response of the Prey-Predator model (Eq. (2)) is presented in Fig. 6 as previously. It can be seen clouds appear (L_c first peak) about 12:00 after the beginning to the simulation, when the water vapour content L_v is high enough ($L_v \geq 2.5 \text{ g m}^{-3}$). Here too, the equations being based on the species competition approach, cloud formation leads to rain formation with a time delay of about 15 min, a typical value for the triggering of rain (Rogers and Yau, 1996). Rain is then followed by cloud dissipation. It can also be seen that the amount of rain depends on the amount of absolute humidity, i.e. the larger L_v , the greater L_r .

Fig. 6b indicates that $L_{c,d}$ evolves as L_v with the same orders of magnitude (between 2 and at most 10 g m^{-3}). The amount of aerosols (N_a) remaining in the system is of the same order of magnitude as N_d . Finally, the amount of liquid water (L_l) is maximum when there is formation of clouds and rain over a sufficiently long time (see, e.g., during the second day of the simulation).

With respect to the estimated COT and R_c (Fig. 6c), it can be noted that the simulated COT varies between 0 and 100. Given the altitude considered ($z = 2 \text{ km}$), it can be deduced that we are in presence of

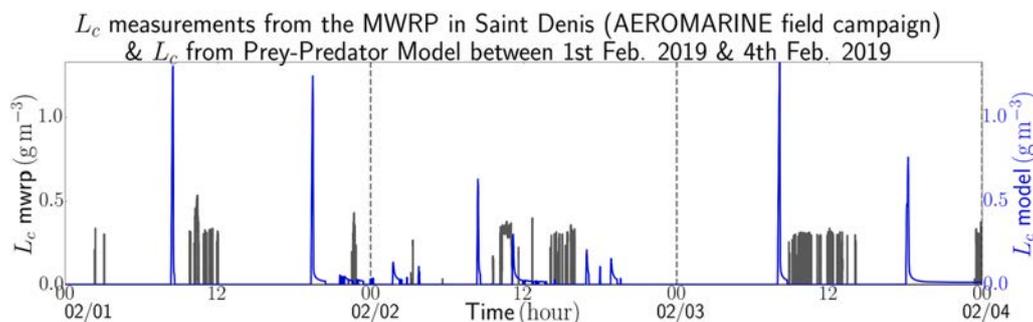


Fig. 5. Same as Fig. 4 but comparing $L_c(t)$ between radiometric measurements and the model.

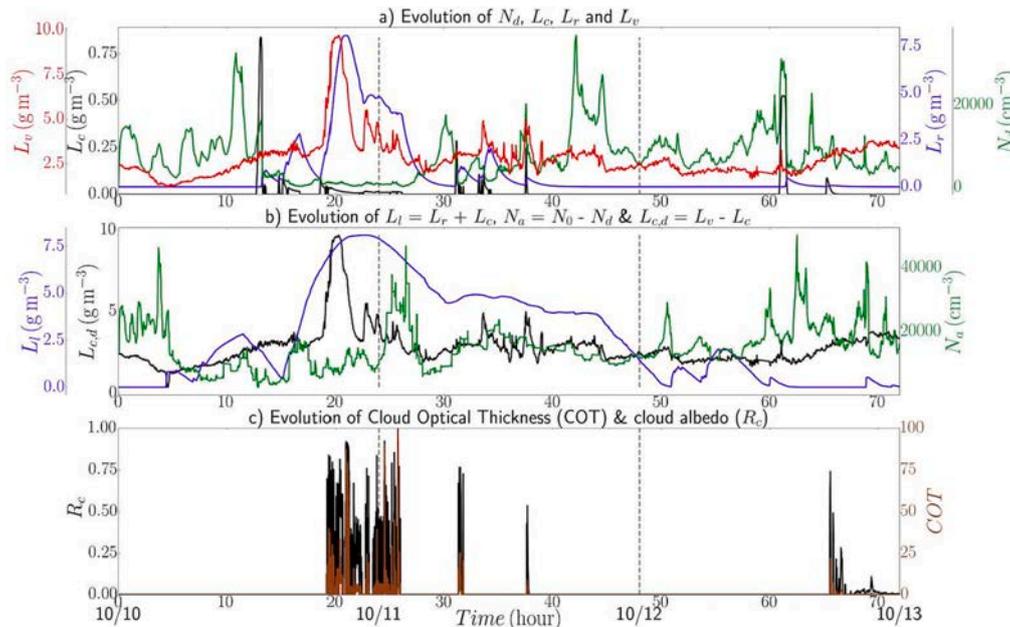


Fig. 6. Lille, between the 10th and 12th October 2020: evolution of (a) L_c , L_r , N_d and L_v , (b) $L_{c,d}$, N_a and L_l , and, (c) Cloud Optical Thickness (COT) and albedo (R_c) for a simulation of 72 h, with aerosol concentration and water vapour content from the ATOLL station.

cumulus ($COT \leq 5$), stratocumulus ($5 < COT < 25$) and stratus ($COT \geq 25$) (Rossow and Schiffer, 1991; Hahn et al., 2001). In this simulation of 72 h, the stratus is dominant. Similarly, the calculated R_c is essentially between 0.25 and 0.75, which supports the hypothesis that the simulated clouds are of the stratus type (Stephens and Webster, 1981).

Comparing the modeled L_c with the L_c measured by the MWRP (Fig. 7), a good agreement between the model and the *in situ* measurements is observed in terms of the presence/absence of clouds. In addition, when there is a cloud, the model gives orders of magnitude similar to those of the MWRP. However, generally speaking, the model underestimates the values of the cloud water content. A bias in the model cannot be excluded, of course, but, as already mentioned, a possible explanation is also the way the MWRP calculates the cloud water content (see above).

In addition, we find that our model is as close as possible to *in situ* measurements in the continental context in Lille, *i.e.* with higher aerosol concentrations.

3.3. Other simulations

Similar simulations have been performed with other independent dates for the same situations considered above. Results (not shown) exhibit similar behaviour as those obtained: the model gives realistic orders of magnitude of the different macroscopic variables, cloud and rain formations are delayed by about 20 min, model and observation agree about the cloud occurrences and magnitudes of the cloud water content. We can thus conclude that the model proposes a good evaluation of the macroscopic and essential behaviour of a cloud system, especially regarding the water vapour, aerosol, cloud and rain interaction.

3.4. Adaptation to a two-dimensional grid

The model being fast (simulation time around 10 s for a simulation over 72 h and showing quite good behaviors for aerosol-water vapour-cloud-rain interactions, it seems interesting to compare its outputs with those of more complete two-dimensional (2D) models. Herein, comparisons have been performed with the ERA5 reanalysis (5th generation of European Centre for Medium-Range Weather Forecasts - ECMWF - reanalysis for the global climate and weather). They combine model outputs

with observations into a globally complete and consistent dataset (ECMWF, 2016). In particular, ERA5 provides hourly estimates for absolute and relative humidities, as well as cloud water content, at different levels of pressure. We have chosen the level 900 hPa, *i.e.* $z \approx 1$ km asl (available online),⁶ and the data have been regridded on a regular 0.25° latitude-longitude grid. This data of humidity allows to feed the model in terms of L_v . To compare the prediction of our model with the ERA5 reanalysis requires to assume that each pixel (0.25°) of the whole grid is described by Eq. (2). In other words, keeping in mind that Eq. (2) describe the behaviour of a cloud as a bulk, it is assumed that, for an area of p pixels, there are p independent Eq. (2), each of them predicting an evolution of L_c in a given pixel. There is no coupling between the pixels. The model presented in this work is thus adapted to a 2D grid in this sense.

Here, the comparison with ERA5 is presented for simulations over seven days for the two following concrete case studies:

1. in a continental context, over the Hauts-de-France region centered around Lille, in the box [49.5°N - 51.5°N ; 2°E - 4°E], from the 1st to the 7th October 2020.
2. in an oceanic context around Reunion Island, in the box [20°S - 21°S ; 54°E - 55°E], from the 9th to the 15th February 2019.

It is worth precisng that, in the absence of other data, we use ERA5 to get humidity data which serve as an input parameter to feed hourly the model. The model does not calculate humidity, because L_v is not, here, a degree of freedom (there is no differential equation for L_v). Hence, humidity is not calculated and, *a fortiori*, not compared nor updated (or corrected) under the basis of some model-ERA5 comparisons. As we will see hereafter, the only comparison concerns liquid water content L_c . In this sense, the model is not constrained since there is no need to revise the simulation as the model is running.

⁶ This altitude is typical of marine low-level clouds (see *e.g.* Bony et al., 2000; Sèze and Pawlowska, 2001). In addition, the first levels of ERA5 are 1000, 900, 800 hPa ($z \approx 0, 1, 2$ km). An altitude of 1 km seems thus reasonable to test the abilities of the model.

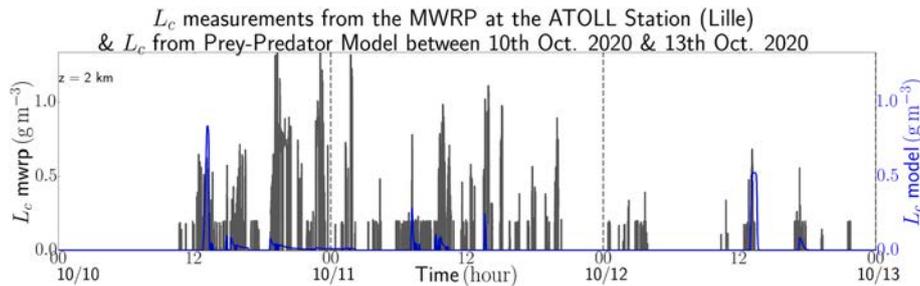


Fig. 7. Same as Fig. 6 but comparing $L_c(t)$ between radiometric measurements and the model.

Case 1: urban context (Hauts-de-France)

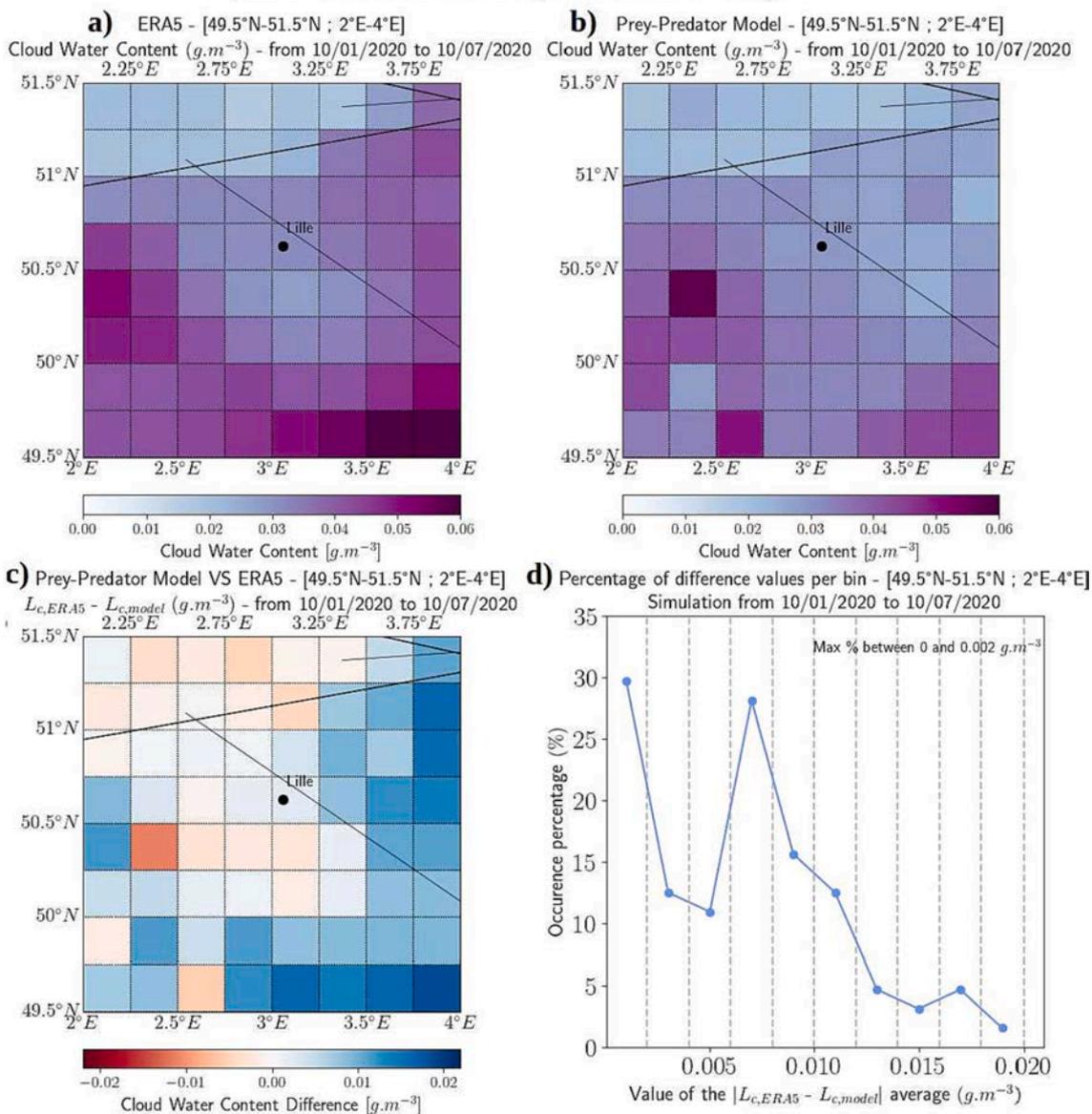


Fig. 8. Average of the cloud water content (L_c in $g\ m^{-3}$) from ERA5 (a), from our model (b), average of $L_{c,ERA5} - L_{c,Model}$ difference (c) obtained from a 7-days simulation of the model over the Hauts-de-France region, between the 1st and 7th of October 2020. Panel (d) is the probability density function of $L_{c,ERA5} - L_{c,Model}$.

3.4.1. Case 1: urban context (Hauts-de-France)

Fig. 8 displays the cloud water content averaged over the whole simulations (7 days) given by the ERA5 reanalysis (a) and computed by our model (b); the difference is displayed on the panel (c). Clearly, the

ERA5 and the modeled cloud fields behave consistently since both give, on average, a cloud water content below $0.06\ g\ m^{-3}$ and similar spatial distribution of clouds around Lille. There are more clouds on the South-West and on the South of Lille than on the North and North-East. The

Absolute difference of L_c : a) MODIS/Aqua (with $h = 2500m$) - PP Model, b) MODIS/Aqua (with $h = 2500m$) - ERA5
 c) MODIS/Aqua (with $h = 500m$) - PP Model and d) MODIS/Aqua (with $h = 500m$) - ERA5.
 Hauts-de-France region [49.5°N-51.5°N ; 2°E-4°E] - October 1st - 7th 2020

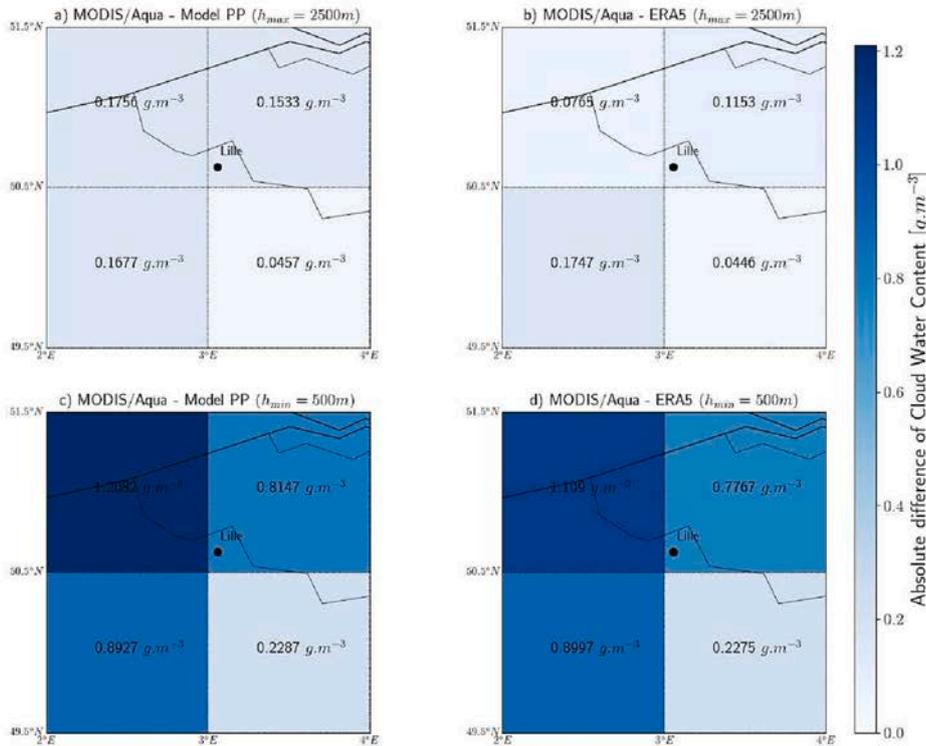
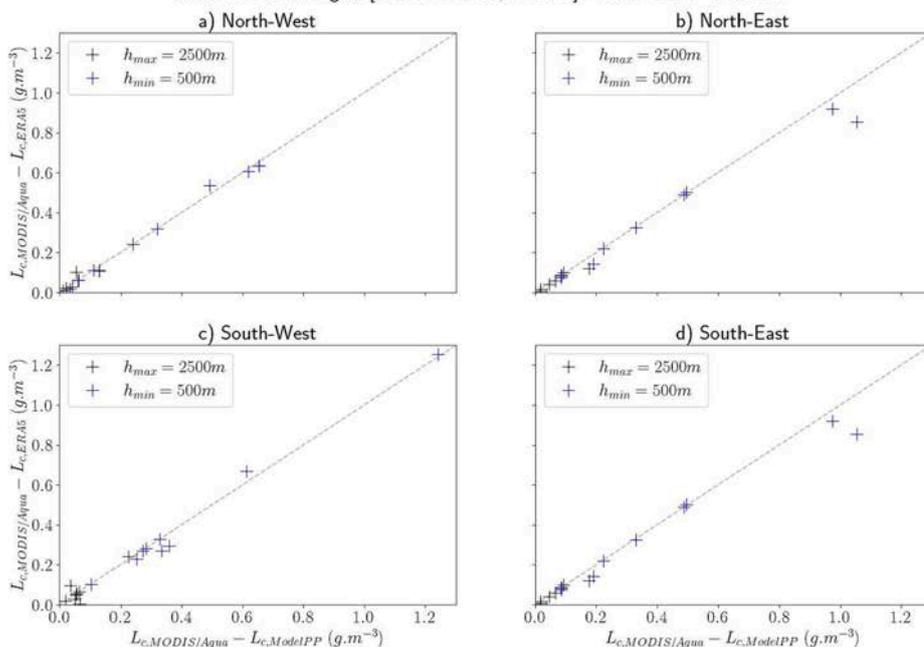


Fig. 9. Top: Comparison of the L_c -differences (averaged over seven days, 1st-7th October 2020) between AQUA, the model, and ERA5. On the left: difference between AQUA and the model. On the right: difference between AQUA and ERA5. A minimum and a maximum cloud depths of 500 m (panels on the bottom) and 2500 m (panels on the top) have been assumed. Calculations have been performed by distinguishing four quadrants (North-East, North-West, South-West, South-East). Bottom: Scatterplots of the absolute differences per quadrant. The tilted dashed line is the 1 : 1 line.

Ratio between the differences $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ModelPP}$ and $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5}$
 Hauts-de-France region [49.5°N-51.5°N ; 2°E-4°E] - October 1st - 7th 2020



difference between the two mean fields of L_c is particularly interesting: it never exceeds 0.02 g m^{-3} and, in a great part of the area considered, this difference is even close to zero. The probability density function of the difference is displayed on Fig. 8; it shows that the discrepancies between ERA5 and our model is smaller than 0.01 g m^{-3} with a peak of 30%

below 0.002 g m^{-3} and another one at about 0.007 g m^{-3} .

The comparison with the liquid products of the satellite MODIS/AQUA over the seven days considered is also interesting. In particular AQUA provides the liquid water path which can be compared with the cloud water content (L_c) given by ERA5 and by the model if one assumes a cloud

Case 2: pristine oceanic context (Indian Ocean)

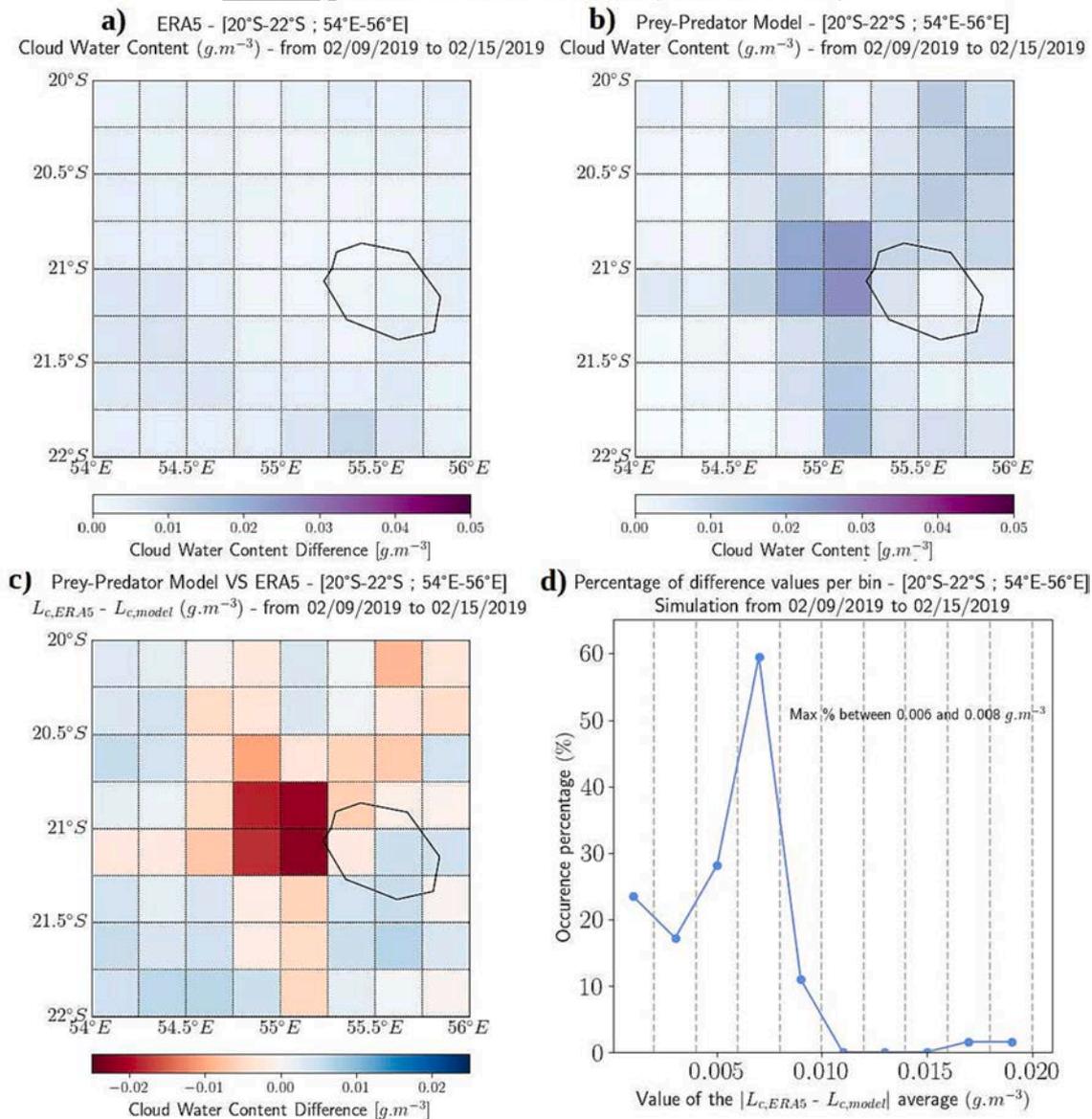


Fig. 10. Same as Fig. 8 but in the oceanic context around Reunion Island and between 9th and 15th February of 2019.

depth. Fig. 9 displays the average (over the seven days) difference in cloud water content, between AQUA and the model on one hand and, between AQUA and ERA5 on the other hand, assuming two cloud depths, $h_{min} = 500$ m and $h_{max} = 2500$ m. We have distinguished four quadrants (North-East, North-West, South-West and South-East). It can be seen, in particular, that the differences between AQUA and the model are almost the same than the differences between AQUA and ERA5, which means that the model (Eq. (2)) behaves as well as ERA5. This is corroborated by the scatterplots on the bottom of the Figure obtained by considering the differences each day (not an average).

3.4.2. Case 2: pristine oceanic context (Indian Ocean)

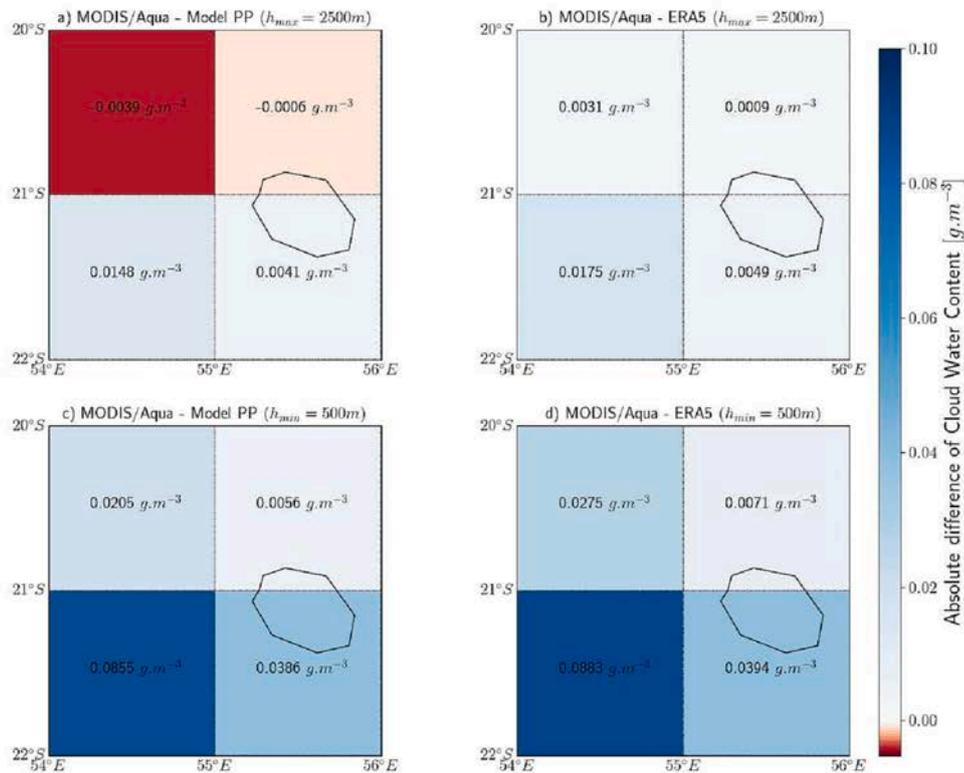
Fig. 10 is the same as Fig. 8 but for the second case considered (oceanic context, around Reunion Island). The same comments as just above can be done: on average over the seven days of simulations, (1) the ERA5 cloud water content (Fig. 10a) and and the cloud water content given by our model (Fig. 10b) agree quite well; (2) the difference between these cloud water contents is lower than $0.02 g m^{-3}$ with a probability density function of the difference values analogous to that of

Fig. 10d which peaks at 60% for a difference between 0.006 and 0.008 $g m^{-3}$. Note that the values between 0.01 and 0.02 $g m^{-3}$ are, for this case, much less represented. It can be noted that the most important differences are on the West of Reunion Island, with an underestimation of L_c by our model, i.e. where the AEROMARINE field campaign and so where the airborne aerosol measurements took place (Mascout et al., 2022). Since the aerosol concentrations were measured in the free troposphere, and not from the surface, they may be underestimated and so not exactly representative of the background concentrations of the marine aerosols around Reunion Island.

As above, a comparison with the liquid products of the satellite MODIS/AQUA have been performed (Fig. 11). The results are better than for the Lille-case since the differences in L_c with AQUA are much smaller for both the model and ERA5. Again, these differences are almost the same, meaning that the model is, in this sense, equivalent to ERA5. The scatterplots on the bottom of the Figure confirm this conclusion.

For the case of Reunion Island, satellite images from SEVIRI/MSG were exploitable. Fig. 12 displays some SEVIRI/MSG satellite images corresponding to the considered area. Some specific days have been chosen,

Absolute difference of L_c : a) MODIS/Aqua (with $h = 2500m$) - PP Model, b) MODIS/Aqua (with $h = 2500m$) - ERA
 c) MODIS/Aqua (with $h = 500m$) - PP Model and d) MODIS/Aqua (with $h = 500m$) - ERA5.
 Indian Ocean [20°S-22°S ; 54°E-56°E] - February 9th - 15th 2019



Ratio between the differences $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ModelPP}$ and $L_{c,MODIS/Aqua} - L_{c,ERA5}$
 Indian Ocean [20°S-22°S ; 54°E-56°E] - February 9th - 15th 2019

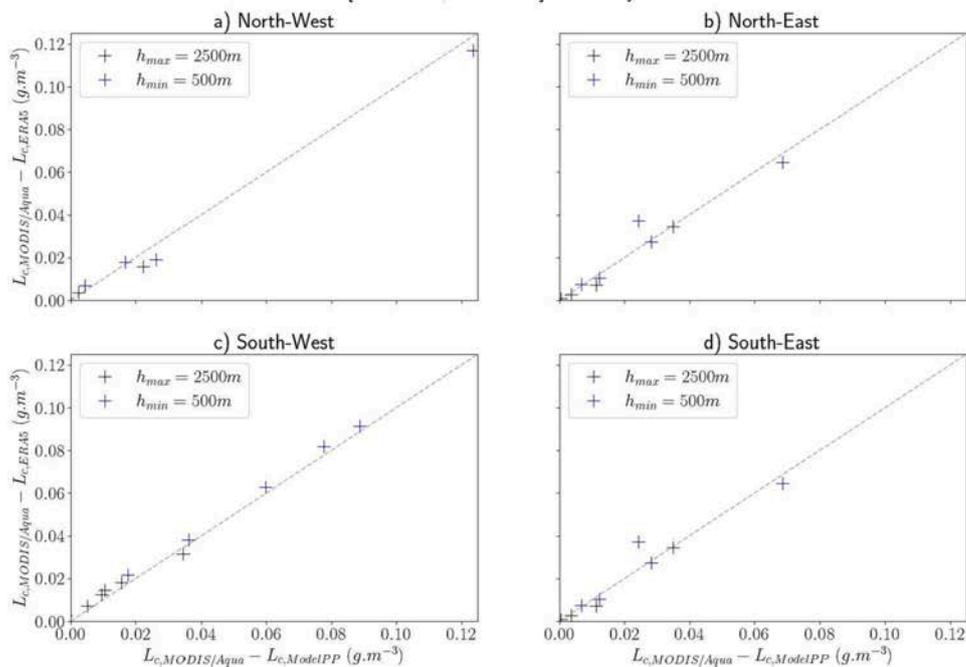


Fig. 11. Same as Fig. 9 but around Reunion Island.

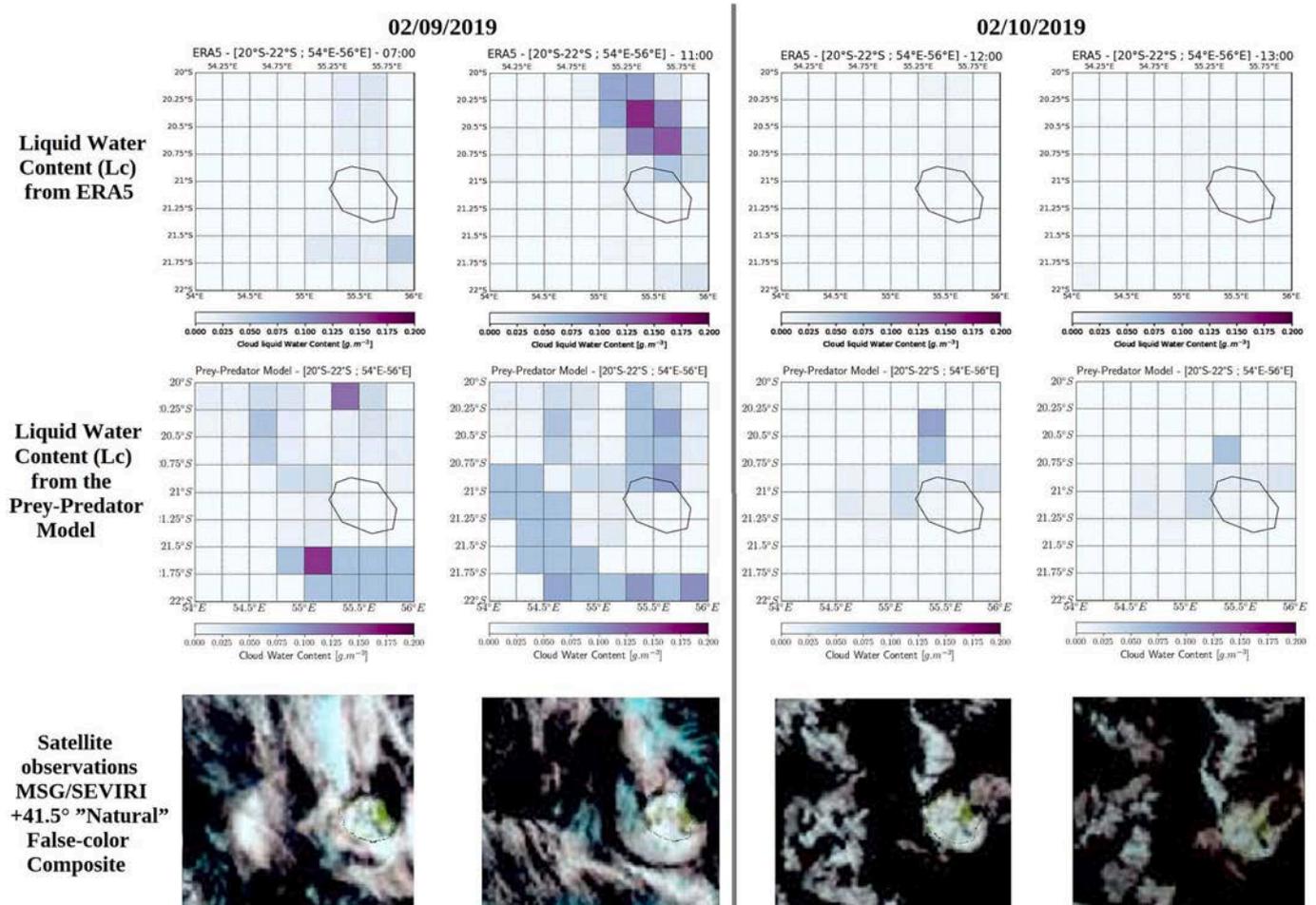


Fig. 12. Qualitative comparison with SEVIRI/MSG satellite images for some specific days over Reunion Island.

which permit to explain particularly the L_c differences on the West of Reunion Island. It can indeed be observed that our model is closer to satellite observations than the ERA5 reanalysis which do not “see” the clouds West of the island. In addition, our model seem to predict more cloud occurrences than ERA5, in agreement with what the satellite images indicate. For the other days that cover this simulation of seven days, our model, ERA5 and the satellite images agree together (not shown).

4. Conclusion

In this study, we have proposed a nonlinear bulk model which is able to describe the physics of a water vapour-aerosol-cloud-rain system. The model is inspired by models of species competition dynamics. It consists in a set of three nonlinear coupled differential equations which generalizes the previous model of Pujol and Jensen (2019) by considering explicitly the water vapour content as an independent variable of the system. The presentation of such a model has been motivated by the need to associate idealized models with few degrees of freedom, which captures the essential physics, with exhaustive models which represent, as completely as possible, all the complex cloud dynamics.

The effectiveness of the system of equations proposed in capturing the important macro physics of cloud behaviour has been tested for three concrete cases:

- in a pristine oceanic region (Saint-Denis, Reunion Island), in an aerosol background close to the pre-industrial conditions with relatively stable thermodynamic conditions,

- at the high-altitude Maïdo Observatory (2.2 km of altitude asl, Reunion Island), with a well marked diurnal/nocturnal cycle of the thermodynamics and aerosol content of the troposphere.
- in the urban context of Lille (Région Hauts-de-France), which is characterized by relatively varying humidity and aerosol contents, as revealed in the measurements from the ATOLL platform.

For each of these regions, the kinetic constants of the set of equations have been optimized, for the three situations just mentioned, by combining a Monte Carlo approach and least-squares minimization. The method we have chosen for this affords the possibility to use the model for determining kinetic constants that otherwise are only available from non-simple theoretical considerations or otherwise *ad hoc* empirical fitting.

Compared with real observations (radar and radiometric measurements), the results obtained show that the model reproduces efficiently the macro behavior of clouds: cloud occurrences (formation/dissipation), orders of magnitude of the cloud water content, cloud and rain content links are well captured by our model. A possible explanation of the discrepancies that can exist between the model and the observations (e.g. short delays in cloud occurrence, small differences in L_c values) is that instruments which furnish the input data are not always collocated in spacetime (e.g. in the case of the AEROMARINE field campaign).

The time step of the numerical solver is around 0.1 s minimum. In addition, it has a relatively short calculation time (lower than 10 s for a 72 h simulation). Because of this, we have then used the model within a two-dimensional (2D) horizontal grid and compared the results with the ERA5 reanalyses in two situations: a continental context above the Région

Hauts-de-France on one hand, and in the South-West Indian Ocean (around Reunion Island) on the other hand.

Simulations for seven days have been performed for these two cases. Once again, our model shows promising results for the horizontal organization of cloud fields, since the system of three equations provides results close to those obtained by complete reanalysis. For the whole 2D grids considered, the difference between the reanalysed cloud water content (ERA5) and the computed cloud water content (our set of equations) never exceeds 0.02 g m^{-3} ; the most probable difference is rather close to 0.007 g m^{-3} . The spatiotemporal resolution of our model is, of course, adaptable depending on the user needs; it can be used in any region and at the desired altitude provided that the environmental humidity and aerosol concentrations be available. Comparisons with satellite observations, when exploitable, namely with MODIS/AQUA liquid products, show that the model behaves as well as ERA5 since both exhibit similar differences with AQUA in terms of liquid water content. In addition, from the qualitative comparisons with the geostationary images of SEVIRI/MSG over the Southern Indian Ocean, around Reunion Island, one sees that, sometimes, the model predictions are better than those of ERA5 in the sense that this last one seems to not see cloudy pixels. The model presented here appears thus to present reasonable and physically realistic results in terms of cloud behaviour, comparable to other models. We mention that detailed 2D fields of humidity and aerosols over a large area in the Indian Ocean would be welcome for the present model.

The promising results of this model of water Vapour-Aerosol-Cloud Interactions (VACI) suggest some perspectives. We indicate some of them. First, machine learning and/or artificial intelligence could be useful in the optimization of the kinetic constants according to the situation considered (continental, maritime, etc.). A further step would be to determine the terms which describe the relevant physical processes involved in VACI by an artificial intelligence. This perspective should pave the way to new ways of analyzing and modeling cloud physics. Another way to improve our system of equations would be to consider other characteristics, such as radiation for example, and to examine how it is impacted by some properties of the clouds like precipitation. With respect to this, we should likely have to introduce explicitly the number of raindrop (N_r) as a degree of freedom. In the present version of the model, it has not been considered in order to retain some measure of simplicity and because focus has been put first on the cloud component (in general $N_d \gg N_r$). A third point is the introduction of a coupling between systems as modeled by Eq. (2). For instance, in the comparison with ERA5 reanalyses, each pixel of the grid was assumed to be an independent system of Eq. (2). Pixel interactions are lacking in order to investigate more deeply cloud field organization. Different approaches can be envisioned, but they can be classified into two categories: (1) those of deterministic essence, which would consist, for instance, to consider N sets of Eq. (2) (one per pixel) and to add a coupling term between them that could depend on wind; (2) those of stochastic (or statistical) nature, which could be inspired for example from the 2D Ising model in magnetism. This last avenue is currently under investigation and will be presented in a future paper.

CRedit authorship contribution statement

Faustine Mascout: Conceptualization, Methodology, Investigation, Writing – original draft, Writing – review & editing, Software. **Olivier Pujol:** Conceptualization, Methodology, Investigation, Software, Supervision, Writing - original draft, Writing - review & editing. **Jérôme Brioude:** Investigation, Resources, Supervision, Writing - original draft, Writing - review & editing. **Andrew Jensen:** Conceptualization, Writing - review & editing. **Marc Lefranc:** Formal analysis, Methodology. **Stéphanie Evan:** Resources. **Suzanne Crumeyrolle:** Resources.

Data availability

Data will be made available on request.

Acknowledgements

We are grateful to the Labex CAPP (ANR-11-LABX-0005-01) which has funded this work in the context of the Cloud-aerosol interactions work package. We acknowledge the ECMWF for providing freely reanalysis. The authors thank the French national LEFE/INSU program which financed the AEROMARINE field campaign as well as the CON-CIRTO project (ANR-17-CE01-0005-01). The authors thanks the Principal Investigator, Karine Sellegri, (k.sellegri@opgc.univ-bpclermont.fr) of the particle counter (CPC TSI) located at the Maïdo Observatory, for providing freely datasets.

References

- Baray, J.L., Courcoux, Y., Keckhut, P., Portafaix, T., Tulet, P., Cammas, J.P., Hauchecorne, A., Godin-Beekmann, S., De Mazière, M., Hermans, C., Desmet, F., Sellegri, K., Colomb, A., Ramonet, M., Sciare, J., Vuillemin, C., Hoareau, C., Dionisi, D., Duflot, V., Vêrèmes, H., Porteneuve, J., Gabarrot, F., Gaudo, T., Metzger, J.M., Payen, G., Leclair De Bellevue, J., Barthe, C., Posny, F., Abchiche, A., Delmas, R., Ricaud, P., 2013. Maïdo observatory: a new high-altitude station facility at Reunion Island (21 S, 55 E) for long-term atmospheric remote sensing and in situ measurements. *Atmos. Meas. Tech.* 6, 2865–2877. <https://doi.org/10.5194/amt-6-2865-2013>.
- Bellouin, N., Quaas, J., Gryspeerdt, E., Kinne, S., Stier, P., Watson-Parris, D., Boucher, O., Carslaw, K.S., Christensen, M., Daniou, A.L., Dufresne, J.L., Feingold, G., Fiedler, S., Forster, P., Gettelman, A., Haywood, J.M., Lohmann, U., Malavelle, F., Mauritsen, T., McCoy, D.T., Myhre, G., Mühlentadt, J., Neubauer, D., Possner, A., Rugenstein, M., Sato, Y., Schulz, M., Schwartz, S.E., Sourdeval, O., Storelvmo, T., Toll, V., Winker, D., Stevens, B., 2020. Bounding global aerosol radiative forcing of climate change. *Rev. Geophys.* 58, e2019RG000660 <https://doi.org/10.1029/2019RG000660>. URL:<https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2019RG000660>.
- Bony, S., Collins, W.D., Fillmore, D.W., 2000. Indian ocean low clouds during the winter monsoon. *J. Clim.* 13, 2028–2043. [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(2000\)013<2028:IOLCDT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(2000)013<2028:IOLCDT>2.0.CO;2). URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/13/12/1520-0442_2000_013_2028_iolcldt_2.0.co_2.xml.
- Bovchaliuk, V., Goloub, P., Podvin, T., Veselovskii, I., Tanre, D., Chaikovsky, A., Dubovik, O., Mortier, A., Lopatin, A., Korenskiy, M., Victor, S., 2016. Comparison of aerosol properties retrieved using garrlic, lirc, and raman algorithms applied to multi-wavelength lidar and sun/sky-photometer data. *Atmos. Meas. Tech.* 9, 3391–3405. <https://doi.org/10.5194/amt-9-3391-2016>. URL:<https://amt.copernicus.org/articles/9/3391/2016/>.
- Chen, G., Canonaco, F., Tobler, A., Aas, W., Alastuey, A., Allan, J., Atabakhsh, S., Aurelia, M., Baltensperger, U., Bougiatioti, A., De Brito, J.F., Ceburnis, D., Chazeau, B., Chebaicheb, H., Daellenbach, K.R., Ehn, M., El Haddad, I., Eleftheriadis, K., Favez, O., Flentje, H., Font, A., Fossom, K., Freney, E., Gini, M., Green, D.C., Heikkinen, L., Herrmann, H., Kalogridis, A.C., Keernik, H., Lhotka, R., Lin, C., Lunder, C., Maasikmets, M., Manousakas, M.I., Marchand, N., Marin, C., Marmureanu, L., Mihalopoulos, N., Močnik, G., Nečki, J., O'Dowd, C., Ovadnevaite, J., Peter, T., Petit, J.E., Pikridas, M., Matthew Platt, S., Pokorná, P., Poulain, L., Priestman, M., Riffault, V., Rinaldi, M., Rózański, K., Schwarz, J., Sciare, J., Simon, L., Skiba, A., Slowik, J.G., Sosedova, Y., Stavroulas, I., Styszko, K., Teinmaa, E., Timonen, H., Tremper, A., Vasilescu, J., Via, M., Vodicka, P., Wiedensohler, A., Zografou, O., Cruz Mingüillón, M., Prévôt, A.S., 2000. European aerosol phenomenology 8: Harmonised source apportionment of organic aerosol using 22 year-long acsm/ams datasets. *Environ. Int.* 166, 107325 <https://doi.org/10.1016/j.envint.2022.107325>. URL:<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0160412022002525>.
- Douville, H., K.Raghavan, Renwick, J., Allan, R., Arias, P., Barlow, M., Cerezo-Mota, R., Cherchi, A., Gan, T., Gergis, J., Jiang, D., Khan, A., Mba, W.P., Rosenfeld, D., Tierney, J., Zolina, O., 2021. Water cycle changes in climate change 2021: The physical science basis. In: Masson-Delmotte, V., Zhai, P., Pirani, A., Connors, S.L., Péan, C., Berger, S., Caud, N., Chen, Y., Goldfarb, L., Gomis, M.I., Huang, M., Leitzell, K., Lonnoy, E., Matthews, J.B.R., Maycock, T.K., Waterfield, T., Yelekçi, O., Yu, R., Zhou, B. (Eds.). Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. doi:10.1017/9781009157896.010.
- ECMWF, 2016. IFS Documentation CY43R1 - Part IV: Physical Processes. Number 4 in IFS Documentation, ECMWF. URL:<https://www.ecmwf.int/node/17117>, doi: 10.21957/sqvo5yxja.
- Foucart, B., Sellegri, K., Tulet, P., Rose, C., Metzger, J.M., Picard, D., 2018. High occurrence of new particle formation events at the maïdo high-altitude observatory (2150 m), réunion (Indian Ocean). *Atmos. Chem. Phys.* 18, 9243–9261. <https://doi.org/10.5194/acp-18-9243-2018>. URL:<https://acp.copernicus.org/articles/18/9243/2018/>.
- Francis, D., Chaboureau, J.P., Nelli, N., Cuesta, J., Alshamsi, N., Temimi, M., Pauluis, O., Xue, L., 2021. Summertime dust storms over the arabian peninsula and impacts on radiation, circulation, cloud development and rain. *Atmos. Res.* 250, 105364.

- <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2020.105364>. URL:<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809520313016>.
- Gryspeerd, E., Goren, T., Smith, T.W.P., 2021. Observing the timescales of aerosol–cloud interactions in snapshot satellite images. *Atmos. Chem. Phys.* 21, 6093–6109. <https://doi.org/10.5194/acp-21-6093-2021>. URL:<https://acp.copernicus.org/articles/21/6093/2021/>.
- Guilpart, E., Vimeux, F., Evan, S., Brioude, J., Metzger, J.M., Barthe, C., Risi, C., Cattani, O., 2017. The isotopic composition of near-surface water vapor at the maïdo observatory (reunion island, southwestern indian ocean) documents the controls of the humidity of the subtropical troposphere. *J. Geophys. Res.: Atmos.* 122, 9628–9650. <https://doi.org/10.1002/2017JD026791>.
- Hahn, C.J., Rossow, W.B., Warren, S.G., 2001. Isccp cloud properties associated with standard cloud types identified in individual surface observations. *J. Clim.* 14, 11–28. [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(2001\)014<0011:ICPAWS>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(2001)014<0011:ICPAWS>2.0.CO;2). URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/14/1/1520-0442_2001_014_0011_icpaws_2.0.co_2.xml.
- Hänggi, P., Talkner, P., Borkovec, M., 1990. Reaction-rate theory: fifty years after kramers. *Rev. Mod. Phys.* 62, 251–341. <https://doi.org/10.1103/RevModPhys.62.251>. URL:<https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.62.251>.
- Held, I.M., 2005. The gap between simulation and understanding in climate modeling. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 86, 1609–1614. URL:<http://www.jstor.org/stable/26221382>.
- Karstens, U., Simmer, C., Ruprecht, E., 1994. Remote sensing of cloud liquid water. *Meteorol. Atmos. Phys.* 54, 157–171. <https://doi.org/10.1007/BF01030057>.
- Koren, I., Wang, C., 2008. Cloud–rain interactions: as complex as it gets. *Environ. Res.* 3, 045018. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/3/4/045018>.
- Laj, P., Bigi, A., Rose, C., Andrews, E., Lund Myhre, C., Collaud Coen, M., Lin, Y., Wiedensohler, A., Schulz, M., Ogren, J.A., Fiebig, M., Gliß, J., Mortier, A., Pandolfi, M., Petäjä, T., Kim, S.W., Aas, W., Putaud, J.P., Mayol-Bracero, O., Keywood, M., Labrador, L., Aalto, P., Ahlberg, E., Alados Arboledas, L., Alastuey, A., Andrade, M., Artíñano, B., Ausmeel, S., Arsov, T., Asmi, E., Backman, J., Baltensperger, U., Bastian, S., Bath, O., Beukes, J.P., Brem, B.T., Bukowiecki, N., Conil, S., Couret, C., Day, D., Dayantolis, W., Degorska, A., Eleftheriadis, K., Fetzatiz, P., Favez, O., Flentje, H., Gini, M.I., Gregorić, A., Gysel-Beer, M., Hallar, A. G., Hand, J., Hoffer, A., Hueglin, C., Hooda, R.K., Hyvärinen, A., Kalapov, I., Kalivitis, N., Kasper-Giebl, A., Kim, J.E., Kouvarakis, G., Kranjc, I., Krejci, R., Kulmala, M., Labuschagne, C., Lee, H.J., 2020. A global analysis of climate-relevant aerosol properties retrieved from the network of global atmosphere watch (gaw) near-surface observatories. *Atmos. Meas. Tech.* 13, 4353–4392. <https://doi.org/10.5194/amt-13-4353-2020>. URL:<https://amt.copernicus.org/articles/13/4353/2020/>.
- Long, A.B., 1974. Solutions to the droplet collection equation for polynomial kernels. *J. Atmos. Sci.* 31, 1040–1052. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1974\)031<1040:STTDCE>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1974)031<1040:STTDCE>2.0.CO;2). URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/atms/31/4/1520-0469_1974_031_1040_sttdce_2.0.co_2.xml.
- Louf, V., Pujol, O., Sauvageot, H., Riédi, J., 2015. Seasonal and diurnal water vapour distribution in the sahelian area from microwave radiometric profiling observations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 141, 2643–2653. <https://doi.org/10.1002/qj.2550>.
- Mallet, P.E., Pujol, O., Brioude, J., Evan, S., Jensen, A., 2018. Marine aerosol distribution and variability over the pristine southern indian ocean. *Atmos. Environ.* 182, 17–30. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.03.016>.
- Mascout, F., Pujol, O., Verreyken, B., Peroni, R., Metzger, J.M., Blarel, L., Podvin, T., Goloub, P., Sellegri, K., Thornberry, T., Duflo, V., Tulet, P., Brioude, J., 2022. Aerosol characterization in an oceanic context around reunion island (aeromarine field campaign). *Atmos. Environ.* 118770. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118770>.
- Mortier, A., Goloub, P., Podvin, T., Deroo, C., Chaikovskiy, A., Ajtai, N., Blarel, L., Tanre, D., Derimian, Y., 2013. Detection and characterization of volcanic ash plumes over lille during the eyjafjallajökull eruption. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 3705–3720. <https://doi.org/10.5194/acp-13-3705-2013>. URL:<https://acp.copernicus.org/articles/13/3705/2013/>.
- Pruppacher, H., Klett, J., 2010. Microstructure of atmospheric clouds and precipitation. In: *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Springer, Netherlands, pp. 10–73. https://doi.org/10.1007/978-0-306-48100-0_2.
- Pujol, O., Jensen, A., 2019. Cloud–rain predator–prey interactions: Analyzing some properties of the koren–feingold model and introduction of a new species-competition bulk system with a hopf bifurcation. *Phys. D* 399, 86–94. <https://doi.org/10.1016/j.physd.2019.04.007>. URL:<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0167278918301520>.
- Rogers, R.R., Yau, M.K., 1996. *A short course in cloud physics*. Elsevier.
- Rosenfeld, D., Sherwood, S., Wood, R., Donner, L., 2014. Climate effects of aerosol–cloud interactions. *Science (Am. Assoc. Adv. Sci.)* 343, 379–380.
- Rossow, W.B., Schiffer, R.A., 1991. Isccp cloud data products. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 72, 2–20. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1991\)072<0002>URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/72/1/1520-0477_1991_072_002_2_icdp_2_0_co_2.xml](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1991)072<0002>URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/72/1/1520-0477_1991_072_002_2_icdp_2_0_co_2.xml).
- Sauvageot, H., 1992. Radar Meteorology.
- Sauvageot, H., Omar, J., 1987. Radar reflectivity of cumulus clouds. *J. Atmos. Ocean. Technol.* 4, 264–272. [https://doi.org/10.1175/1520-0426\(1987\)004<0264:RROCC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0426(1987)004<0264:RROCC>2.0.CO;2). URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/4/2/1520-0426_1987_004_0264_rrocc_2_0_co_2.xml.
- Seifert, A., Beheng, K.D., 2001. A double-moment parameterization for simulating autoconversion, accretion and selfcollection. *Atmos. Res.* 265–281. [https://doi.org/10.1016/S0169-8095\(01\)00126-0](https://doi.org/10.1016/S0169-8095(01)00126-0). URL:<http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809501001260>. 13th International Conference on Clouds and Precipitation.
- Seinfeld, J., Pandis, S., 1998. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. URL:<https://www.bibsonomy.org/bibtex/2c037a32c127cdab937076d8eff1109/gsmith>.
- Seinfeld, J.H., Bretherton, C., Carslaw, K.S., Coe, H., DeMott, P.J., Dunlea, E.J., Feingold, G., Ghan, S., Guenther, A.B., Kahn, R., Kraucunas, I., Kreidenweis, S.M., Molina, M.J., Nenes, A., Penner, J.E., Prather, K.A., Ramanathan, V., Ramaswamy, V., Rasch, P.J., Ravishankara, A.R., Rosenfeld, D., Stephens, G., Wood, R., 2016. Improving our fundamental understanding of the role of aerosol–cloud interactions in the climate system. *Proc. Nat. Acad. Sci.* 113, 5781–5790. <https://doi.org/10.1073/pnas.1514043113>. URL:<https://www.pnas.org/doi/abs/10.1073/pnas.1514043113>, arXiv:<https://www.pnas.org/doi/pdf/10.1073/pnas.1514043113>.
- Simu, S.A., Miyazaki, Y., Tachibana, E., Finkenzeller, H., Brioude, J., Colomb, A., Magand, O., Verreyken, B., Evan, S., Volkamer, R., Stavrakou, T., 2021. Origin of water-soluble organic aerosols at the maïdo high-altitude observatory, réunion island, in the tropical Indian Ocean. *Atmos. Chem. Phys.* 21, 17017–17029. <https://doi.org/10.5194/acp-21-17017-2021>. URL:<https://acp.copernicus.org/articles/21/17017/2021/>.
- Stathopoulos, S., Tsonis, A.A., Kourtidis, K., 2021. On the cause-and-effect relations between aerosols, water vapor, and clouds over East Asia. *Theoret. Appl. Climatol.* 144, 711–722. <https://doi.org/10.1007/s00704-021-03563-7>.
- Stephens, G.L., Webster, P.J., 1981. Clouds and climate: sensitivity of simple systems. *J. Atmos. Sci.* 38, 235–247. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1981\)038<0235:CACSOS>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1981)038<0235:CACSOS>2.0.CO;2). URL:https://journals.ametsoc.org/view/journals/atms/38/2/1520-0469_1981_038_0235_cacos_2_0_co_2.xml.
- Stevens, B., Bony, S., Brogniez, H., Hentgen, L., Hohenegger, C., Kiemle, C., L'Ecuyer, T. S., Naumann, A.K., Schulz, H., Siebesma, P.A., Vial, J., Winker, D.M., Zuidema, P., 2020. Sugar, gravel, fish and flowers: Mesoscale cloud patterns in the trade winds. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 146, 141–152. <https://doi.org/10.1002/qj.3662>. URL:<https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.3662>, arXiv:<https://rmtets.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/qj.3662>.
- Sèze, G., Pawlowska, H., 2001. Cloud cover analysis with meteosat-5 during indoex. *J. Geophys. Res.: Atmos.* 106, 28415–28426. <https://doi.org/10.1029/2001JD900097>. URL:<https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001JD900097>.
- Villani, P., Picard, D., Marchand*, N., Laj, P., 2007. Design and validation of a 6-volatility tandem differential mobility analyzer (vtdma). *Aerosol Sci. Technol.* 41, 898–906. <https://doi.org/10.1080/02786820701534593>.
- Weston, M.J., Temimi, M., Nelli, N.R., Fonseca, R.M., Thota, M.S., Valappil, V.K., 2021. On the analysis of the low-level double temperature inversion over the united arab emirates: A case study during April 2019. *IEEE Geosci. Remote Sens. Lett.* 18, 346–350. <https://doi.org/10.1109/LGRS.2020.2972597>.
- Wettlaufer, J.S., 2016. Editorial: Climate science: An invitation for physicists. *Phys. Rev. Lett.* 116, 150002. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.116.150002>. URL:<https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.116.150002>.
- Xu, W., Ovadnevaite, J., Fossom, K.N., Lin, C., Huang, R.J., Ceburnis, D., O'Dowd, C., 2022. Sea spray as an obscured source for marine cloud nuclei. *Nat. Geosci.* 15, 282–286. <https://doi.org/10.1038/s41561-022-00917-2>.
- Yousef, L.A., Temimi, M., Molini, A., Weston, M., Webbe, Y., Mandous, A.A., 2020. Cloud cover over the arabian peninsula from global remote sensing and reanalysis products. *Atmos. Res.* 238, 104866. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2020.104866>. URL:<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809519301218>.
- Zhu, J., Che, H., Xia, X., Yu, X., Wang, J., 2019. Analysis of water vapor effects on aerosol properties and direct radiative forcing in China. *Sci. Total Environ.* 650, 257–266. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2018.09.022>. URL:<https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969718334405>.

Indian Ocean Cloud *Ising* Model (IOCIM)

Sommaire du présent chapitre

| | |
|--|------------|
| 6.1 Définition & objectifs | 136 |
| 6.1.1 Rappels sur le modèle d’Ising | 136 |
| 6.1.2 Transposition aux champs de nuages | 137 |
| 6.2 Fonctionnement du modèle IOCIM | 138 |
| 6.2.1 Description | 138 |
| 6.2.2 Mise en œuvre informatique | 140 |
| 6.3 Premiers résultats | 148 |
| 6.4 Conclusion et perspectives | 151 |
| 6.5 MASCAUT et al. (2023) | 152 |

Le modèle présenté ici est un modèle de type *Ising* qui s’inspire de la physique statistique pour l’étude des comportements collectifs dans la matière condensée. On sait en effet l’efficacité dont a fait preuve le modèle d’Ising pour l’étude du magnétisme de la matière. Dans un premier temps, nous faisons un point rapide sur ce type de modèles en rappelant, dans ses grands traits, le modèle d’Ising originel. Ceci permettra de comprendre à quelles situations ce type de modèle

est adapté. Puis nous présentons le fonctionnement et les premiers résultats d'un tel modèle transposé à notre problématique : l'organisation des champs de nuages au-dessus de l'océan.

6.1 Définition & objectifs

6.1.1 Rappels sur le modèle d'Ising

Dans les années 1920, Ernest ISING, alors étudiant en thèse sous la direction de Wilhelm LENZ, développa un modèle pour l'étude d'une chaîne linéaire de moments magnétiques, ayant chacun deux valeurs possibles : « haut » (+M ou \uparrow) et « bas » (-M ou \downarrow) (ISING 1925). Ces moments interagissent entre eux et seule est considérée, dans ce modèle, l'interaction entre plus proches voisins. Ce modèle relativement simple et réaliste est alors appelé modèle d'*Ising*, ou mieux, modèle de *Lenz-Ising* puisque c'est Lenz qui l'inventa (LENZ 1920).

Le modèle développé par Lenz et Ising est à une dimension et, hormis à une température nulle, il ne rend pas compte des transitions de phases d'un corps, c'est-à-dire des changements soudains et notables de leurs propriétés macroscopiques. Or certains corps, dits ferromagnétiques, présentent la particularité de posséder une aimantation spontanée, même en l'absence de champ magnétique (c'est le principe des aimants), laquelle disparaît dès que la température dépasse une certaine valeur critique dépendante du corps (ou température de Curie). Contrairement à ce que pensait Ising, son modèle est apte à décrire cette transition. À deux dimensions, N moments magnétiques sont placés sur un réseau régulier et, comme précédemment, ils ne peuvent prendre que deux valeurs : $\pm M$ correspondant respectivement aux états $|\uparrow\rangle$ et $|\downarrow\rangle$. Ces moments magnétiques sont en fait des spins ($M = 1/2$). Pour un spin donné, seul est considéré le couplage avec ses plus proches voisins. À température nulle, l'énergie est minimale quand les états de spins sont identiques, ce qui correspond à une aimantation du milieu extrême, soit NM , soit $-NM$. Lorsque la température croît, l'agitation thermique vient perturber cet ordre macroscopique. À partir de la température de Curie, l'ordre est macroscopiquement détruit et l'aimantation moyenne du milieu devient nulle. Le milieu est alors dit paramagnétique. C'est

la transition de phase ferromagnétique-paramagnétique.

Le modèle d'*Ising* est certainement l'un des plus célèbres en physique statistique, en raison de sa relative simplicité et de ses capacités d'explication et de prédiction. Il est en effet adapté pour décrire des *effets collectifs* qui résultent d'*interactions locales* entre des éléments à *deux états* (d'où l'archétype du spin 1/2). Outre le magnétisme, citons comme application la description du comportement des alliages binaires $A - B$. Dans ce cas, on s'intéresse à l'occupation des sites du réseau cristallin par l'une ou l'autre des espèces atomiques ; les états + correspondent à des sites occupés par A et les états - à des sites occupés par B . Suivant la même idée, une autre application est la description de l'adsorption d'un gaz. Là, on distingue, les sites occupés (état +) de ceux vacants (état -). On retrouve aussi des modèles de type *Ising* en biologie, économie, ou sociologie.

6.1.2 Transposition aux champs de nuages

La constatation que, sous certaines conditions, des champs de nuages semblent présenter une organisation à des échelles suffisamment grandes (~ 100 km) suggère fortement une approche de type *Ising* pour décrire le comportement de ces champs. Il s'agit non seulement de comprendre leur apparition puis leur évolution, mais aussi les traits de leur organisation. Le contexte reste celui d'un environnement océanique pristine. Comme précédemment, nous portons notre attention sur les nuages d'eau liquide.

L'idée fondamentale consiste à redéfinir sensiblement un nuage. On sait que ces derniers se forment pour des conditions particulières d'humidité, de température et de contenu en aérosols CCN. Le point de vue est donc celui de la théorie du champ : au lieu de définir un nuage comme un ensemble identifié de gouttelettes, on considère qu'il s'agit d'un état particulier du champ \mathcal{C} déterminé par le triplet \mathcal{T} {température, humidité, concentration en CCN}. Ainsi, la transposition recherchée s'obtient avec la prescription suivante :

- On construit un réseau, ou une grille, pour représenter la zone géographique à étudier. La taille et le pas de cette grille sont arbitraires et choisis selon la situation. En ce qui nous concerne, une zone océanique carrée de 100 km de côté, avec un pas de 1 km, est bien adaptée.

- Chaque point de grille ne peut posséder que deux états, soit nuageux (état +1), soit clair (état -1). Ces deux états correspondent aux deux états de spin dans le modèle originel. Il importe de bien comprendre que l'état +1 signifie que le champ \mathcal{C} présente des valeurs du triplet \mathcal{T} qui sont thermodynamiquement compatibles avec la formation d'un nuage et que, à l'inverse, l'état -1 correspond à des valeurs de \mathcal{T} qui ne permettent pas l'apparition d'un nuage (le ciel reste donc clair)
- Chaque point de grille interagit avec ses plus proches voisins et avec l'océan; ces interactions seront définies dans la section suivante

La section suivante présente le modèle construit à partir de ces conditions, nous l'avons appelé IOCIM pour Indian Ocean Cloud Ising Model.

6.2 Fonctionnement du modèle IOCIM

6.2.1 Description

La figure 6.1 schématise IOCIM.

Soit un site (i, j) d'une grille bi-dimensionnelle à une altitude z . Pour l'explication, on s'appuiera sur une seule dimension, donc en considérant l'entier i (partie haute de la Figure 6.1). Le passage à deux dimensions est immédiat. Comme déjà indiqué plus haut, ce site, ou ce pixel, i est caractérisé par un triplet regroupant la température (T), l'humidité (L_v) et le nombre de CCN (N_a). Ce triplet étant défini pour chaque valeur de i , il constitue un champ; c'est le champ que nous avons noté \mathcal{C} .

Chaque pixel interagit avec ses plus proches voisins par l'intermédiaire de flux Φ , en l'occurrence $\Phi(i \leftrightarrow i - 1)$ et $\Phi(i \leftrightarrow i + 1)$. Il y a en effet des échanges d'énergie par chaleur, de vapeur d'eau et d'aérosols entre deux pixels contigus. Les flux correspondants sont notés respectivement $\Phi_{\mathcal{E}}$, Φ_v et Φ_a . Le même type d'échanges entre le site i et l'océan est pris en compte; ce sont les flux notés $\Phi(s \rightarrow i)$. En outre, on tient compte de flux sortants comme la sédimentation (de CCN) et les précipitations. Les flux présentent deux contributions, l'une dite conductive (ou diffusive) et l'autre convective (ou advective). La première est due à l'hétérogénéité du champ \mathcal{C} : deux valeurs différentes de T , L_v ou N_a

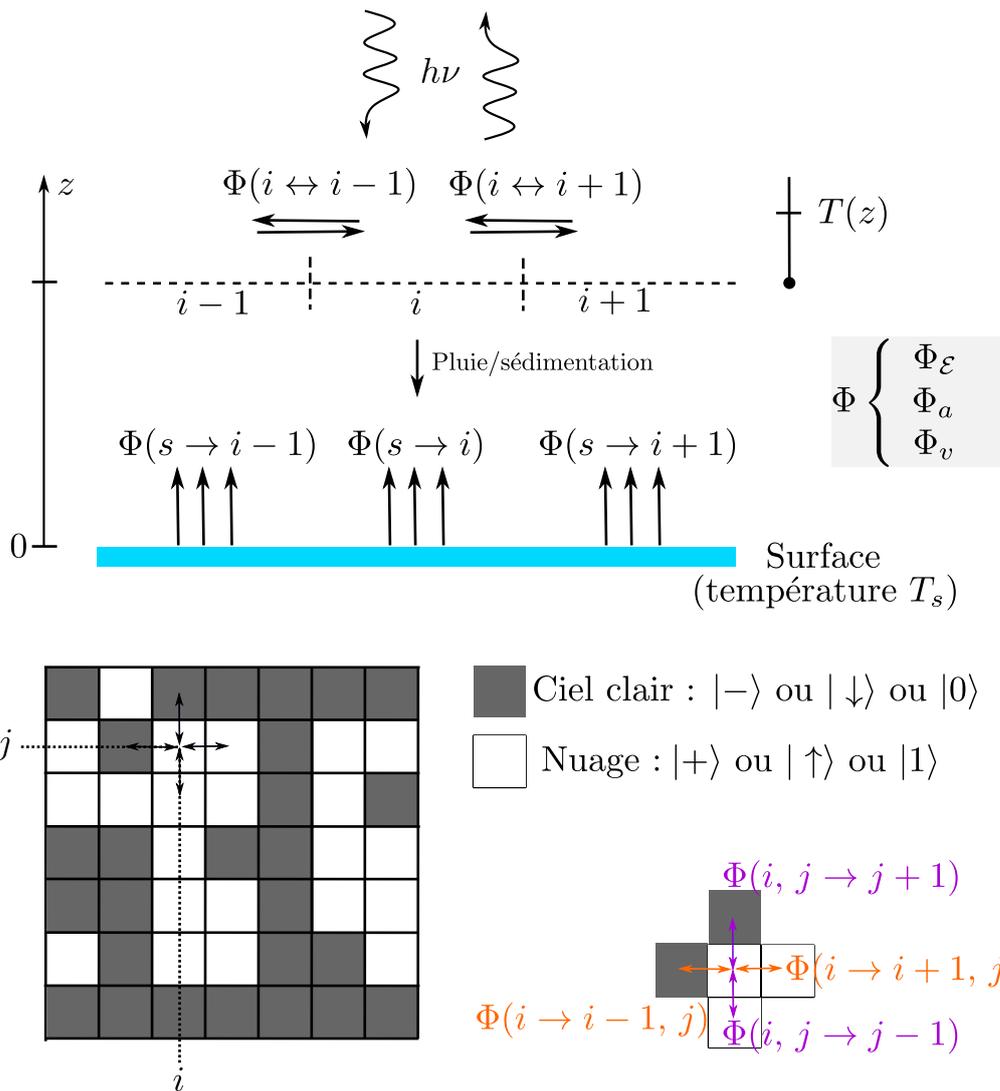


FIGURE 6.1 – Schématisation du fonctionnement du modèle IOCIM et des interactions entre une parcelle d’air (notée i) et son environnement ($\Phi(i \leftrightarrow i-1)$, $\Phi(i \leftrightarrow i+1)$ et $\Phi(s \leftrightarrow i)$).

entre deux pixels voisins conduit à un flux tendant à rétablir l’équilibre. Ce flux diffusif est proportionnel au gradient de la grandeur non-uniforme ($\Phi^{dif} \propto \nabla x$ où $x = T, L_v, N_a$). Les flux convectifs sont liés au vent (vitesse v) : ce dernier assure un transport tel que $\Phi^{con} \propto xv$. Signalons enfin que le rayonnement, en tant que source d’énergie, est susceptible de modifier l’état du pixel i . Bien que nous ayons représenté cette contribution, sous la forme $h\nu$ (h étant la constante

de Planck et ν la fréquence), elle n'est pas prise en compte dans cette première version de IOCIM.

6.2.2 Mise en œuvre informatique

Le modèle IOCIM fonctionne selon l'algorithme schématisé Figure 6.2.

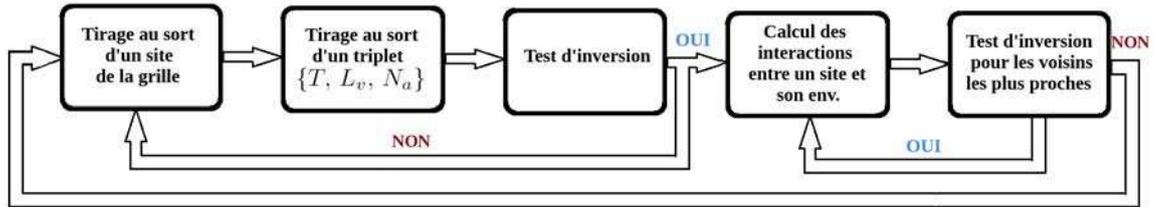


FIGURE 6.2 – Schématisation des étapes de fonctionnement du modèle IOCIM.

Il y a six étapes :

Tirage au sort

On tire au sort (aléatoirement) un point (i, j) de la grille ;

Création du triplet T

On affecte à ce point une valeur du triplet $\{T, L_v, N_a\}$ à l'aide d'un tirage aléatoire pour les valeurs de chacune des grandeurs T , L_v et N_a (il y a donc trois tirages au sort indépendants). En l'occurrence, les deux premières sont fournies par les mesures du radiomètre micro-onde déployé pendant la campagne AEROMARINE. Les densités de probabilités des valeurs de T et de L_v , obtenues lors cette campagne, sont représentées sur la Figure 6.3a et 6.3b, respectivement. Pour l'exemple, nous avons choisi une altitude de 2 km (soit une pression standard de 800 hPa environ).

C'est parmi ces densités de probabilités que le tirage aléatoire des valeurs de T et L_v s'effectue. Le nombre de CCN, N_a , ne s'obtient pas, lui, aussi directement : il est dérivé de la mesure d'AOD à 550 nm. Celle-ci est reliée à N_a selon : $AOD_{550} = \pi r_{SSA}^2 Q_{e870} N_a$, avec Q_{e870} l'efficacité d'extinction à 870 nm (MADRY et al. 2011) et r_{SSA} le rayon des sels marins. On utilise l'exposant d'Angström ($\alpha \approx 0,75$ d'après

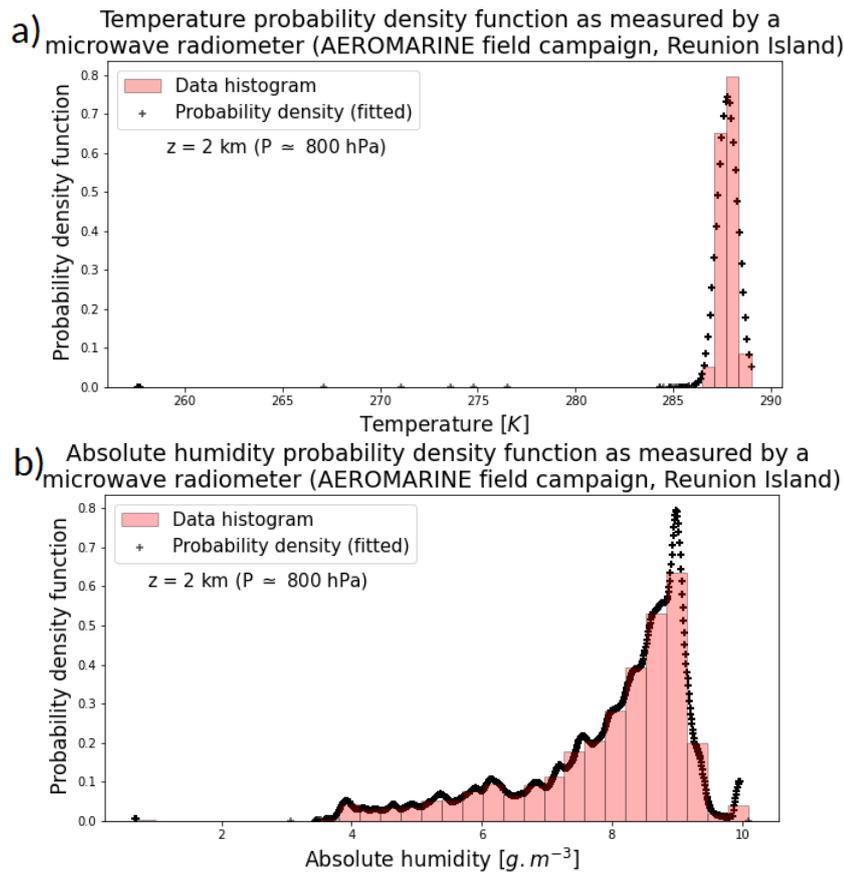


FIGURE 6.3 – Densités de probabilité des mesures de température et d’humidité absolue issues de la campagne AEROMARINE pour le niveau de pression 800 hPa et le mois de février 2019.

MASCAUT, PUJOL, VERREYKEN et al. 2022), considéré comme homogène pour toute la zone étudiée, afin d’estimer l’AOD à 550 nm ; précisément $AOD_{550}/AOD_{870} = (\lambda_{550}/\lambda_{870})^{-\alpha}$.

Le Figure 6.4 montre la densité de probabilité de l’AOD à 870 nm. La densité de probabilité du nombre de CCN N_a correspondant est présentée dans l’article de la Section 6.5 (Fig.4c).

Test d’inversion

La troisième étape est un test d’inversion. La question posée est la suivante : les valeurs du triplet \mathcal{T} est-elle compatible avec un changement d’état en (i, j) ?

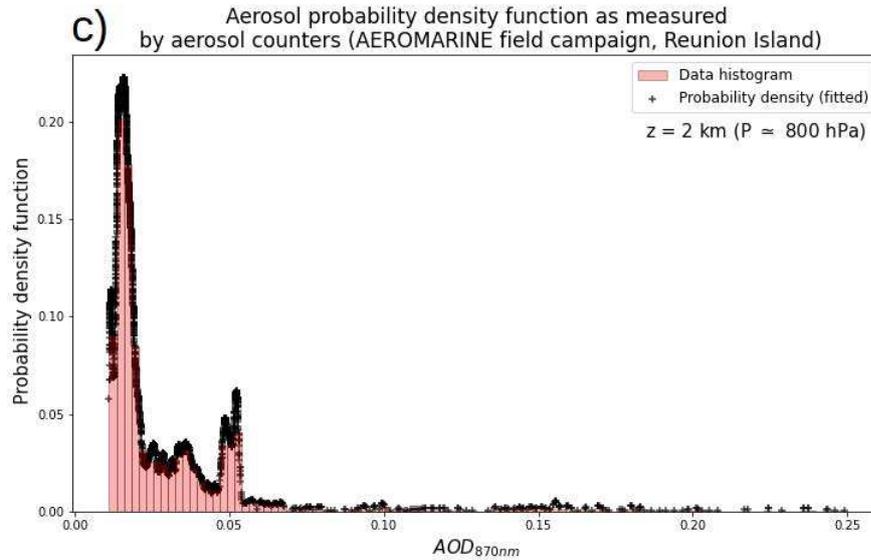


FIGURE 6.4 – Densités de probabilité des mesures d’AOD à 870nm issues de la campagne AEROMARINE pour le niveau de pression 800hPa et le mois de février 2019.

Autrement dit, passe-t-on d’un état de ciel clair à un état nuageux? L’état de (i, j) est obtenu à l’aide de la formule de Twomey : $N_a = CS^k$, où S est la sursaturation, $k = 0,4$ (dans un cas océanique) et C un coefficient. Sa valeur peut se calculer à l’aide du triplet \mathcal{T} précédent; la valeur obtenue est alors comparée au seuil $C_s = 176\text{cm}^{-3}$ (HUDSON et YUM 2002) : si $C < C_s$, le pixel (i, j) est dans l’état clair; si $C > C_s$, alors il est nuageux. Aussi, partant d’un état initial pour (i, j) , la valeur de \mathcal{T} tirée au sort offre deux possibilités : soit elle n’autorise pas ($C < C_s$) un changement d’état, soit l’autorise ($C > C_s$). Dans ce dernier cas, la question de savoir si *on accepte* le changement d’état est déterminée par la méthode de Metropolis (METROPOLIS et al. 1953).

Si $C < C_s$ ou si le changement d’état n’est pas accepté, on repart au début de l’algorithme en tirant aléatoirement un nouveau point (i, j) .

Si $C > C_s$ et que le changement d’état est accepté, alors il devient nécessaire d’analyser l’impact du changement d’état de (i, j) sur ses plus proches voisins. En effet, une transition introduit des hétérogénéités avec l’environnement. Ainsi, pour la transition clair \rightarrow nuage, de la vapeur d’eau et des aérosols sont consommés et la température augmente localement (libération d’énergie par chaleur

latente).

Flux entre un pixel, ses voisins et son environnement

Comme déjà mentionné plus haut, les échanges interpixels sont assurés par des flux diffusifs et des flux convectifs. Ils permettent un transport de vapeur d'eau, d'aérosols et d'énergie (par chaleur).

Les flux diffusifs résultent d'un déséquilibre entre deux pixels voisins et s'écrivent sous la forme $D_x \nabla x$ où $x = L_v, N_a, T$ et D_x un coefficient de diffusion. Les échanges de vapeur d'eau (en masse) et d'aérosols (en nombre) sont donnés par la loi de Fick, respectivement $\Delta L_v = -D_v(L_{v,i} - L_{v,j})S_{int}\Delta t$ et $\Delta N_a = -D_{SSA}(N_{a,i} - N_{a,j})S_{int}\Delta t$ où $D_v = 2,19 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau et D_{SSA} celui des aérosols. Ce dernier est donné par la relation $D_{SSA} = 3\pi k_B T C_c \mu_a d_{SSA}$ avec $k_B \approx 1,35 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ la constante de Boltzmann, μ_a la viscosité dynamique de l'air, C_c le facteur correctif de Cunningham (indispensable pour des aérosols de diamètre inférieur à 100 nm) et d_{SSA} le diamètre des aérosols. L'échange d'énergie par chaleur dépend, lui, du caractère nuageux ou clair d'un site. S'il est nuageux, il est constitué d'air sec (a), de vapeur d'eau (v) et d'eau liquide (l). On calcule la quantité d'eau condensée en retranchant du rapport de mélange de la vapeur d'eau, w , celui à saturation, w_s . En effet, au-delà de ce seuil ($w > w_s$), la vapeur d'eau se liquéfie, d'où la quantité d'eau condensé : $\xi_e = w - w_s$. On rappelle que $w_s = e_s/(p - e_s)$ avec p la pression totale et e_s la pression de vapeur d'eau à saturation. Les énergies internes massique des sites clairs et nuageux s'écrivent respectivement :

$$\left\{ \begin{array}{l} U_{clair} = U_{-1} = c_a T + c_v w T \\ U_{nuageux} = U_1 = c_a T + c_v w T + c_l \xi_e T \end{array} \right.$$

avec $c_a \approx 1005 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $c_v \approx 1865 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $c_l \approx 4186 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$, les capacités thermiques massiques à pression constante de l'air, de la vapeur d'eau et de l'eau liquide, respectivement. La nature du site tiré au sort (i) permet de déterminer l'expression de la quantité d'énergie échangée avec un site voisin (k). Ces échanges sont déterminés par la loi de Fourier : $\Delta Q_{-1} = [-\lambda_a(T_i - T_k) -$

$\lambda_v(T_i - T_k)] S_{int} \Delta t$ et $\Delta Q_1 = [-\lambda_a(T_i - T_k) - \lambda_v(T_i - T_k) - \lambda_l(T_i - T_k)] S_{int} \Delta t$, avec $\lambda_a \approx 0,021 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, $\lambda_v \approx 0,016 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ et $\lambda_l \approx 0,561 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$, les conductivités thermiques de l'air, de la vapeur d'eau et de l'eau liquide, respectivement.

Les flux convectifs s'écrivent eux sous la forme xv où v est le vent horizontal. Concernant la masse de vapeur d'eau et le nombre d'aérosols transportés, et donc échangés avec un pixel voisin, on a $L_v v S_{int} \Delta t$ et $N_a v S_{int} \Delta t$. Quant à l'échange d'énergie impliquant la température, il est de la forme $uv S_{int} \Delta t$ où u est l'énergie interne volumique, en distinguant comme au-dessus la nature, claire ou nuageuse, du pixel i considéré.

En présence de vent, les flux convectifs sont en général dominants car l'échelle de temps pour les échanges par diffusion est plus longue. Ces derniers ne sont cependant pas sans intérêt car, dans une situation sans vent, ou de vent très faible, ils peuvent rendre compte de la « stationnarité » d'un champ de nuage ou de sa lente évolution.

Les échanges d'aérosols, d'énergie et de vapeur d'eau entre un pixel et l'océan sont également pris en compte dans ce modèle.

Comme on l'a vu au cours des Chapitres 1 et 3, l'océan représente une source majeure d'aérosols. Nous définissons le flux d'aérosols parvenant à un niveau de pression avec une vitesse de vent vertical W fixée par $\Phi_a = W \Phi_{SSA,emis} S_{O-A} \Delta t / V$, avec $\Phi_{SSA,emis}$ le flux d'aérosols émis par l'océan (d'après OVADNEVAITE et al. 2014), S_{O-A} la surface d'interface ocean-atmosphère normalisée à l'unité et V le volume de la parcelle d'air. Pour compenser cet apport, on introduit les pertes dues au lessivage par précipitation et à la sédimentation. Les flux correspondants représentent un puit de CCN pour le pixel considéré. Le premier Φ_{prec} a été choisi indépendant du pixel et égal à un taux moyen de $5 \times 10^{-5} \text{ mms}^{-1}$; la variation correspondante d'aérosols est

$$\Delta N_a = -N_a \frac{3ER}{2d_{gouttes}} \Delta t$$

où $(3ER)/(2d_{gouttes})$ est le coefficient de lessivage (Λ en s^{-1}) d'après SPORTISSE

2008. Le flux de sédimentation peut s'écrire, lui :

$$\Phi_{sed} = N_a \left[\frac{1}{k_c} + \frac{1}{k_d} - \frac{(\rho_{SSA} d_{SSA}^2 g C_c) / 18 \mu_a}{k_c k_d} \right]^{-1}$$

Dans cette dernière équation, le terme entre parenthèses représente la vitesse de sédimentation pour un dépôt sur une surface composée d'eau et est définie d'après SALEEBY et HEEVER 2013. k_c est un terme de transfert turbulent, k_d représente les effets de la diffusion brownienne et de glissement, μ_a la viscosité dynamique de l'air, g la pesanteur, C_c le facteur correctif de Cunningham, et d_{SSA} et ρ_{SSA} respectivement le diamètre et la masse volumique des sels marins.

Les mesures de précipitations dans l'océan Indien (Tropical Rainfall Measuring Mission) montrent un faible taux de précipitations. C'est pourquoi nous imposons un processus de sédimentation plus important que les précipitations.

Enfin, le flux d'énergie (Φ_E) entre l'océan et le pixel considéré à une altitude donnée est défini par $\Phi_E = \rho_a c_a C_H (v_h - U_s) (T_s - \theta)$ (DECOSMO et al. 1996). Enfin, les échanges de vapeur d'eau (Φ_v) sont modélisés par $\Phi_v = \rho_a C_E (v_h - U_s) (Q_s - Q)$ (DECOSMO et al. 1996), avec $C_H = 1,1 \times 10^{-3}$ et $C_E = 1,2 \times 10^{-3}$ des facteurs correctifs sans dimension, $\rho_a = 1,2 \text{ kg m}^{-3}$ la masse volumique de l'air, U_s la vitesse de vent horizontal à la surface de l'océan (vitesse de vent à 10m). Q et Q_s sont les humidités spécifiques à l'altitude donnée et à la surface de l'océan (respectivement).

Une fois tous ces flux calculés (dont les différents paramètres sont résumés dans les Tableaux 6.1 et 6.2), on somme algébriquement, pour chaque quantité échangée, les contributions entre plus proches voisins de chaque site.

Impact sur les plus proches voisins

Les interactions prises en compte, on regarde ensuite la modification du triplet des plus proches voisins. On modifie leur état le cas échéant.

Tirage au sort d'un nouveau point de grille

On recommence cette série d'étapes en tirant au sort un nouveau point (i, j) .

TABLEAU 6.1 – Détails des différentes constantes en jeu dans les équations du modèle IOCIM, valeurs et unités SI (1/2)

| Paramètre | Signification physique | Valeur et unité SI |
|---------------------------------------|---|--------------------------------------|
| Construction du triplet \mathcal{T} | | |
| α | Exposant d'Angström (MASCAUT, PUJOL, VERREYKEN et al. 2022) | 0,75 |
| AOD | Épaisseur optique des aérosols | – |
| C_s | Valeur seuil (HUDSON et YUM 2002) | 176 cm^{-3} |
| L_v | Humidité | g m^{-3} |
| N_a | Concentration en CCN | m^{-3} |
| r_{SSA} | Rayon des sels marins | m |
| T | Température | K |
| Q_{e870} | Efficacité d'extinction (MADRY et al. 2011) | – |
| Flux océan-atmosphère | | |
| Λ | Coefficient de lessivage par précipitation | s^{-1} |
| μ_w | Viscosité dynamique (SHARQAWY et al. 2010) | $\text{kg}(\text{ms})$ |
| Φ_a | Flux d'aérosols parvenant à un niveau de pression | |
| Φ_{prec} | Flux de lessivage par précipitation | |
| $\Phi_{SSA,emis}$ | Flux d'aérosols émis par l'océan (OVADNEVAITE et al. 2014) | |
| ρ_a | Masse volumique de l'air | $1,2 \text{ kg m}^{-3}$ |
| C_d | Coefficient de traînée | 0,0013 |
| C_H | Facteur correctif sans dimension | $1,1 \times 10^{-3}$ |
| C_E | Facteur correctif sans dimension | $1,2 \times 10^{-3}$ |
| $d_{gouttes}$ | Diamètre des gouttes d'eau | m |
| H_s | Hauteur de la vague | 1,3m |
| R | Taux de précipitation moyen | $5 \times 10^{-5} \text{ mm s}^{-1}$ |
| R_e | Nombre de Reynolds : $R_e = (C_d^{1/2} U_{10} H_s) \mu_w$ | – |
| U_{10} | Vitesse du vent à 10m | m s^{-1} |
| Q | Humidité spécifique à une altitude donnée | kg kg^{-1} |
| Q_s | Humidité spécifique à la surface de l'océan | kg kg^{-1} |
| S_{O-A} | Surface d'interface océan-atmosphère normalisés | m^2 |
| W | Vent vertical | m s^{-1} |

TABLEAU 6.2 – Détails des différentes constantes en jeu dans les équations du modèle IOCIM, valeurs et unités SI (2/2)

| Paramètre | Signification physique | Valeur et unité SI |
|---|---|--|
| Flux interpixels : $\Phi(i \leftrightarrow i - 1)$ et $\Phi(i \leftrightarrow i + 1)$ | | |
| μ_a | Viscosité dynamique de l'air | Pa/s ou $\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}$ |
| λ_a | Conductivité thermique de l'air | $0,021 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| λ_l | Conductivité thermique de l'eau liquide | $0,561 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| λ_v | Conductivité thermique de la vapeur d'eau | $0,016 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| ζ_e | Quantité d'eau condensée : $\zeta_e = w - w_s$ | g kg^{-1} |
| c_a | Capacité thermique massique de l'air à pression constante | $1005 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| c_l | Capacité thermique massique de l'eau liquide à pression constante | $4186 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| c_v | Capacité thermique massique de la vapeur d'eau à pression constante | $1865 \text{ J kg}^{-1} \text{ K}^{-1}$ |
| C_c | Facteur correctif de Cunningham | – |
| d_{SSA} | Diamètre des aérosols | m |
| D_{SSA} | Coefficient de diffusion des aérosols : $D_{SSA} = \frac{3\pi k_B T C_c \mu_a d_{SSA}}{16}$ | m^2/sec |
| D_v | Coefficient de diffusion de la vapeur d'eau | $2,19 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{sec}$ |
| e, e_s | Pression de vapeur d'eau (e_s : à saturation) | Pa |
| k_B | Constante de Boltzmann | $1,35 \times 10^{-23} \text{ J K}^{-1}$ |
| $U_{clair,nuage}$ | Énergie interne massique du site (clair ou non) | J |
| V | Volume de la parcelle d'air considérée | m^3 |
| v | Vent horizontal | $1,5 \text{ m s}^{-1}$ |
| w | Rapport de mélange de la vapeur d'eau : $w = \frac{0.622e}{(p - e)}$ | g kg^{-1} |
| w_s | Rapport de mélange à saturation : $w_s = \frac{0.622e_s}{(p - e_s)}$ | g kg^{-1} |

6.3 Premiers résultats

En cette fin de thèse, nous avons fait tourner IOCIM en utilisant les données d'AEROMARINE et en considérant quatre conditions initiales. Les grilles initiales sont représentées sur la Figure 6.5. La première est une situation claire, la deuxième une zone 100% nuageuse, et les deux dernières des cas intermédiaires avec un certain pourcentage de pixels initialement nuageux. La différence entre la troisième grille et la quatrième sont que celle-là représente une disposition aléatoire de nuages isolés alors que celle-ci représente une organisation en stries du champ nuageux.

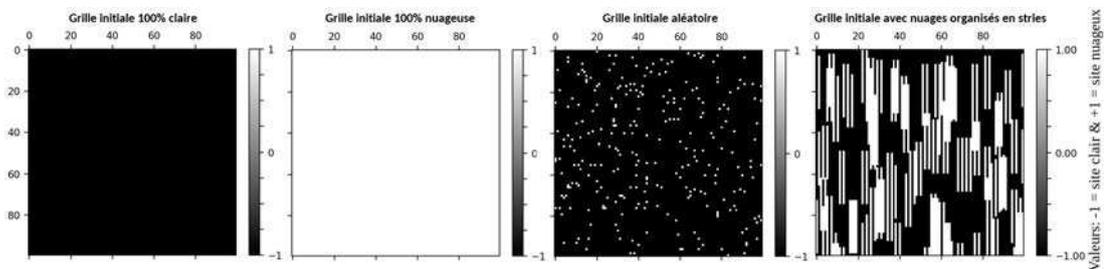


FIGURE 6.5 – Quatre grilles initiales possibles : 100% claire, 100% nuageuse, aléatoire et nuages organisés en stries. Blanc (= +1) : pixel nuageux ; Noir (= -1) : pixel clair.

Rappelons que, s’agissant d’un modèle à deux dimensions, on doit choisir une altitude z , donc un niveau de pression, par exemple 975 hPa (proche de la surface), 900 hPa (couche limite marine), 800 hPa et 700 hPa (troposphère libre). Pour les premiers résultats présentés ici, $z = 2$ km ($p \approx 800$ hPa).

La Figure 6.6 présente les champs de nuages obtenus après un certain nombre de tirages au sort ($\approx 50\,000$ et $100\,000$) à partir des grilles initiales présentées ci-dessus. Les simulations données en exemple utilisent les densités de probabilité (issues de la campagne AEROMARINE) du mois de février 2019.

Nous pouvons observer que les résultats obtenus à partir des grilles initiales 100% claire, 100% nuageuse et composée de nuages en stries sont similaires. En effet, après 100 000 tirages au sort, nous obtenons un champ de nuages avec une disposition aléatoire. Cependant, nous observons plus de pixels nuageux dans le cas où l’état initial est 100% nuageux (2^{ème} ligne de la Fig. 6.6). Cela semble être

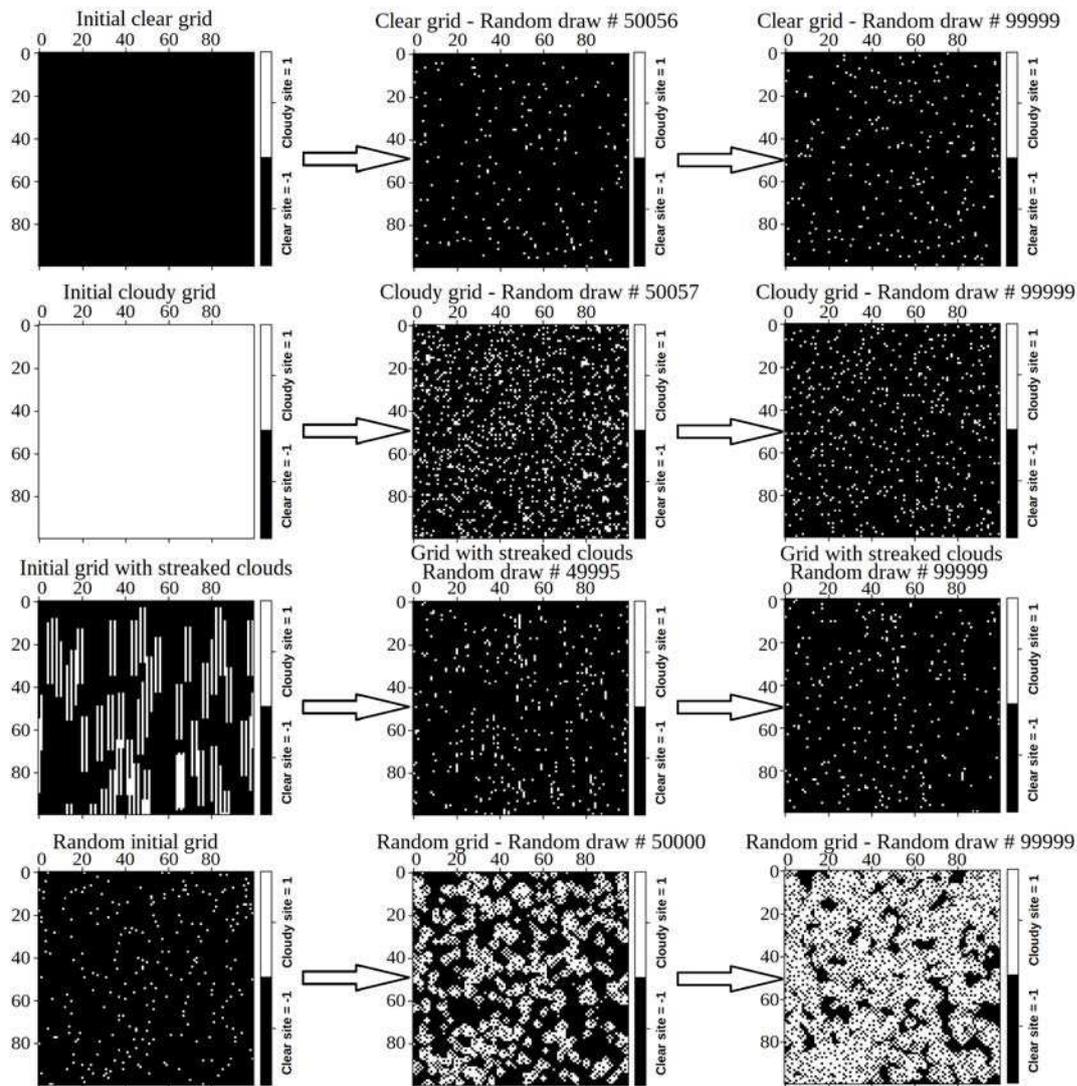


FIGURE 6.6 – Résultats obtenus à partir des quatre grilles initiales possibles (première colonne), après environ 50 000 tirages au sort (2^{nd} e colonne) et après quelque 100 000 tirages au sort (dernière colonne), pour le niveau de pression 800hPa avec les données du mois de février 2019 (campagne AEROMARINE).

un comportement réaliste car, dans ce cas, les conditions thermodynamiques qui constituent le triplet \mathcal{T} présentent une grande probabilité de former un nuage. À l'inverse, à partir d'une grille initiale 100% claire, \mathcal{T} montre des conditions moins favorables à la formation de nuages.

À partir d'une grille initiale aléatoire, le modèle présente un comportement

intéressant. Au bout de 50 000 tirages au sort, le champ de nuage s'organise et montre une certaine « flocculation » qui ressemble fortement à une organisation des champs de nuages de type « Flowers » (cellules ouvertes) proposée par STEVENS et al. 2020 (Fig. 6.7). À la fin de la simulation (après environ 100 000 tirages au sort), le champ de nuages obtenu se présente sous une forme qui rappelle des cellules fermées (Fig. 6.7).

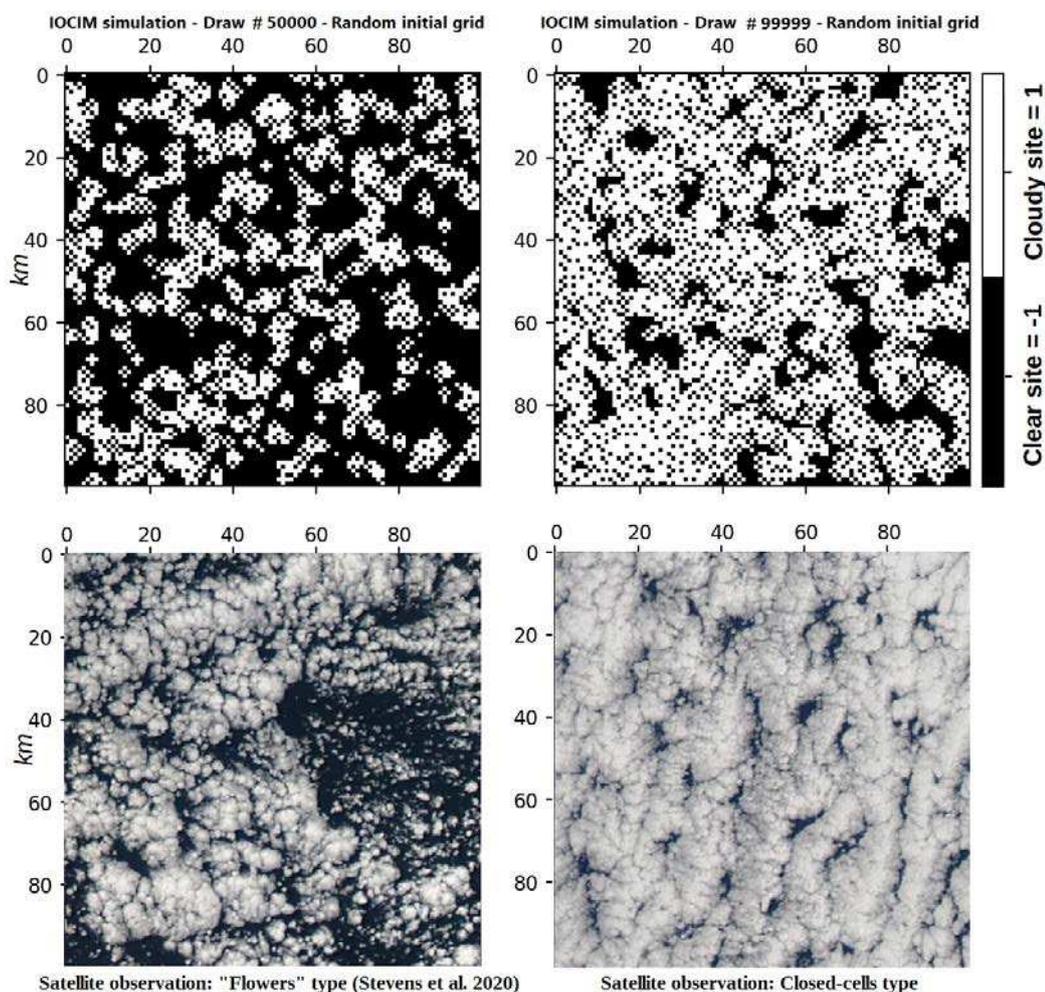


FIGURE 6.7 – Comparaison des champs de nuages générés par IOCIM à partir d'une grille initiale aléatoire (en haut) avec des observations par satellite (en bas) de type « Flowers » (observation du 23 octobre 2022) et type cellules fermées (du 12 octobre 2022) au-dessus de l'océan Indien.

6.4 Conclusion et perspectives

Nous avons présenté, dans ce chapitre, un modèle statistique de type *Ising*, IOCIM, capable de générer ou dissiper des nuages, en tenant compte de différentes interactions entre une parcelle d'air, ses voisines et son environnement (comportement collectif). L'étude de l'organisation des champs de nuages est alors possible à travers cette nouvelle approche de modélisation 2D. En effet, à l'aide de quelques propriétés physiques simples, mais réalistes, nous arrivons à obtenir une évolution du rapport pixel nuageux/pixel clair qui semble correspondre à ce que l'on peut observer. Les premiers résultats présentés ici sont prometteurs et nous encourageant à des études plus approfondies.

Bien que les résultats préliminaires de IOCIM semblent cohérents, nous souhaitons à l'avenir apporter certaines améliorations et tester la fiabilité des simulations. Par exemple, il serait possible d'incorporer une source d'énergie par rayonnement, susceptible d'influencer, en tant que source d'énergie, l'état d'un pixel. Les champs de nuages obtenus au-dessus de l'océan Indien par notre modèle devront en outre faire l'objet d'analyses statistiques et mathématiques (longueur de corrélation, paramètre d'ordre, fonction de partition...) et de comparaison plus quantitatives à des observations satellites. C'est ce que propose MONROY et NAUMIS 2021 dans leur approche pour décrire la formation de champs de nuages organisés à mésoéchelle en utilisant les équations stochastiques de Ginzburg-Landau et de Swift-Hohenberg dépendantes du temps. Ils utilisent, par exemple, des champs moyens du modèle d'*Ising* pour décrire les précipitations et l'évaporation, et montrent que cette approche peut reproduire l'aspect général d'un champ de nuages. Signalons, en outre, que l'examen détaillé du rôle de chacune des interactions dans IOCIM et des conditions thermodynamiques (triplet T) susceptibles de conduire à des champs nuageux structurés (ou pas), a vocation, selon nous, et c'est notre objectif scientifique, à aboutir à une classification des champs de nuages en fonction des conditions environnementales.

Notre modèle est, pour le moment, centré sur le Sud de l'océan Indien, pour des conditions prêtes, mais il est possible d'introduire de nouvelles données *in-situ*, pour d'autres périodes de temps ou dans des régions différentes.

6.5 MASCAUT et al. (2023)

Les résultats de IOCIM ont fait l'objet d'une publication dans la revue *The European Physical Journal Plus* (accepté entre l'écriture de ce manuscrit et la soutenance de thèse). L'article ci-après reprend et complète donc les résultats présentés dans ce chapitre et propose une comparaison des simulations IOCIM avec des observations du satellite MODIS/Aqua. Ces comparaisons confirment que l'approche de notre modèle d'Ising semble cohérente et encourageante pour l'étude des champs de nuages au-dessus de l'océan.



A 2D Ising-like model for cloud field organization in pristine oceans

Faustine Mascout^{1,a}, Olivier Pujol^{1,b}, Jérôme Brioude^{2,c}, Andrew Jensen^{3,d}

¹ Laboratoire d'Optique Atmosphérique, LOA, CNRS, UMR 8518, Université de Lille, 59000 Lille, France

² Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy), UMR 8105, Météo France/CNRS/Université de La Réunion, St Denis de La Réunion, France

³ Mathematical Sciences, Northland College, Ashland, WI 54806, USA

Received: 14 November 2022 / Accepted: 24 December 2022

© The Author(s), under exclusive licence to Società Italiana di Fisica and Springer-Verlag GmbH Germany, part of Springer Nature 2023

Abstract A two-dimensional Ising model is presented in order to reproduce cloud field organization at the mesoscale (*i.e.*, from 10 up to 10 km). This model takes into account different interactions between an air mass and its environment. It is shown that this novel and original approach allows to reproduce quite well satellite observations. Although created initially for pristine (*i.e.*, natural) oceanic conditions, this model can be adapted to any other situations, *mutatis mutandis*.

1 Introduction

Clouds form from aerosols, in particular cloud condensation nuclei (CCN), over which water vapor condenses under adequate thermodynamical conditions. Temperature, absolute humidity and number of CCN are thus crucial quantities if one wishes to understand how clouds evolve, what are their main properties and their impact on the climate. If one observes a cloud field at the mesoscale (a few hundreds of kilometers in space and several minutes or hours in time), a both striking and scheming property of clouds is their apparent organization (or structure) under certain conditions. An illustration is given in Fig. 1 which is a satellite observation (a snapshot) over the Indian Ocean. If one completely disregards the (atmospheric) context, *i.e.*, if one takes this snapshot without asking what it represents, this field of white and black points may be confused with a lot of organized nonlinear and irreversible systems, *e.g.*, a Rayleigh–Bénard convection structure. If then one thinks about the context, some natural questions arise in mind: Are cloud fields really organized and is this organization governed by fundamental laws? How much of randomness and/or order in such fields and for which spatiotemporal scales? What are the most propitious thermodynamical conditions to get such cloud fields?

It is not the first time that one notices that clouds seem organized at the mesoscale. To our knowledge, one of the very first study is that of [1] which focused upon cumulus clouds and analyzed their spatial distribution, morphology, nearest-neighbor distributions and clustering scales from satellite observations at a 1 km resolution (at least). Satellite data and qualitative considerations have also been used by [2] who proposed four kinds of mesoscale structures (“Flowers,” “Sugar,” “Gravel” and “Fish”) over the North Atlantic Ocean. Another example is [3] who suggested that stratocumulus clouds over oceans could present four types of mesoscale morphology (none cellularity, unorganized cells, closed and opened convective cells) and pointed out that rain may play a key role in their occurrence.

The present paper proposes an original insight to investigate cloud fields at the mesoscale. From the apparent proximity indicated with nonlinear and irreversibly generated structures, statistical physics and its undoubted efficiency in investigating collective behaviors (magnetism of condensed matter is a good example) is a source of inspiration. A point in the sky (*viz.* an air parcel) can be clear or cloudy, and it is coupled with its surroundings, much like, *e.g.*, spins in ferromagnets or localized atoms in a binary alloy. We formulate the hypothesis that statistical physics may be a fruitful approach for the examination of some atmospheric cloud fields. In particular, this paper presents a preliminary version of a two-dimensional (2D) Ising-like model taking into account, as realistically as possible, the possible interactions between an air parcel and its environment. In other words, the observation that, likely under certain conditions, cloud fields seem to be organized at a sufficiently large scale ($\sim 10 - 10$ km) strongly suggests an Ising-like approach to describe the behavior of these fields. It is not only a question of understanding their appearance and how they evolve, but also the features of their organization.

^a e-mail: faustine.mascout@univ-lille.fr (corresponding author)

^b e-mail: olivier.pujol@univ-lille.fr (corresponding author)

^c e-mail: jerome.brioude@univ-reunion.fr

^d e-mail: ajensen@northland.edu

Fig. 1 Cloud fields on 02/23/2019 in the Indian Ocean (EOSDIS Worldview: [https://worldview.earthdata.nasa.gov/?v=54.93698924654181,-39.84152260430299,78.70984080904181,-27.39621010430299&l=Reference_Labels_15m\(hidden\),Reference_Features_15m\(hidden\),Coastlines_15m,VIIRS_NOAA20_CorrectedReflectance_TrueColor\(hidden\),VIIRS_SNPP_CorrectedReflectance_TrueColor\(hidden\),MODIS_Aqua_CorrectedReflectance_TrueColor,MODIS_Terra_CorrectedReflectance_TrueColor&lg=true&t=2019-02-23-T16%3A25%3A07Z](https://worldview.earthdata.nasa.gov/?v=54.93698924654181,-39.84152260430299,78.70984080904181,-27.39621010430299&l=Reference_Labels_15m(hidden),Reference_Features_15m(hidden),Coastlines_15m,VIIRS_NOAA20_CorrectedReflectance_TrueColor(hidden),VIIRS_SNPP_CorrectedReflectance_TrueColor(hidden),MODIS_Aqua_CorrectedReflectance_TrueColor,MODIS_Terra_CorrectedReflectance_TrueColor&lg=true&t=2019-02-23-T16%3A25%3A07Z))



The Ising model is certainly one of the most famous model in statistical physics, due to its relative simplicity and its explanatory and predictive abilities. Indeed, it is suitable for the description of collective phenomena, like phase transitions, which result from local interactions between *two-state* elements (the archetypal $1/2$ spin). This model was initially developed by Lenz and Ising [4, 5] to explain some properties of magnetic matter, like ferromagnets. In two dimensions, N magnetic momenta ($1/2$ spins) are placed on a regular grid and can take only two values, $\pm 1/2$, corresponding, resp., to the states $|\uparrow\rangle$ and $|\downarrow\rangle$. A given spin is coupled only with its nearest neighbors. Depending on the temperature, this model explains the paramagnetic and ferromagnetic states of matter and affords for the corresponding phase transition at the Curie point. Binary alloys, gas adsorption on a substrate are two other examples where the Ising model is useful.

It is not the very first time that statistical physics is used to address self-organization of clouds. [6] proposed a phenomenological cellular automaton to explain why atmosphere acts near criticality during cloud formation. Although the term “Ising” is not written in this reference, this model turns out to be fundamentally in a similar vein. However, despite of its scientific interest, the couplings considered in this model make it too simple for the atmospheric context. In the same spirit, [7] have presented an analytical statistical model to describe the structure of broken cloud fields. These authors have also discussed its possible relation with the $2D$ Ising model and encouraged following this line of research while acknowledging that they do not have a rigorous $2D$ continuous cellular model (*i.e.*, clouds of arbitrary shape). Here, we propose (1) to consider the idea of the $2D$ Ising model in cloud field formation, (2) to develop and deepen much further this idea, and (3) to consider realistic interactions. Another originality of the present article is that comparisons with real satellite observations are performed; they reveal that Ising simulations and observations agree quite well. This is the first time, to our knowledge, that such an agreement is showed so explicitly. Focus is put on the specific but important situation of pristine oceanic conditions, and especially over the South-West Indian Ocean. Indeed, this ocean provides relatively stable conditions of temperature and, in addition, it is a major source of water vapor (humidity) and CCN aerosols [8, 9]. This region is also representative of the natural component of the climate in the sense that it is largely spared by pollution of anthropogenic origins; it is thus close to the pre-industrial conditions [8, 10]. Furthermore, the South Indian Ocean is a typical place of important liquid cloud (*e.g.*, stratocumulus) occurrences [11, 12]. Developing an Ising model is also of great interest since it is a theory complementary to other stochastic approaches. Recently, [13] have used conjointly an Ising model with time-dependent stochastic Ginzburg–Landau and Swift–Hohenberg equations in order to reproduce the general appearance of cloud fields.

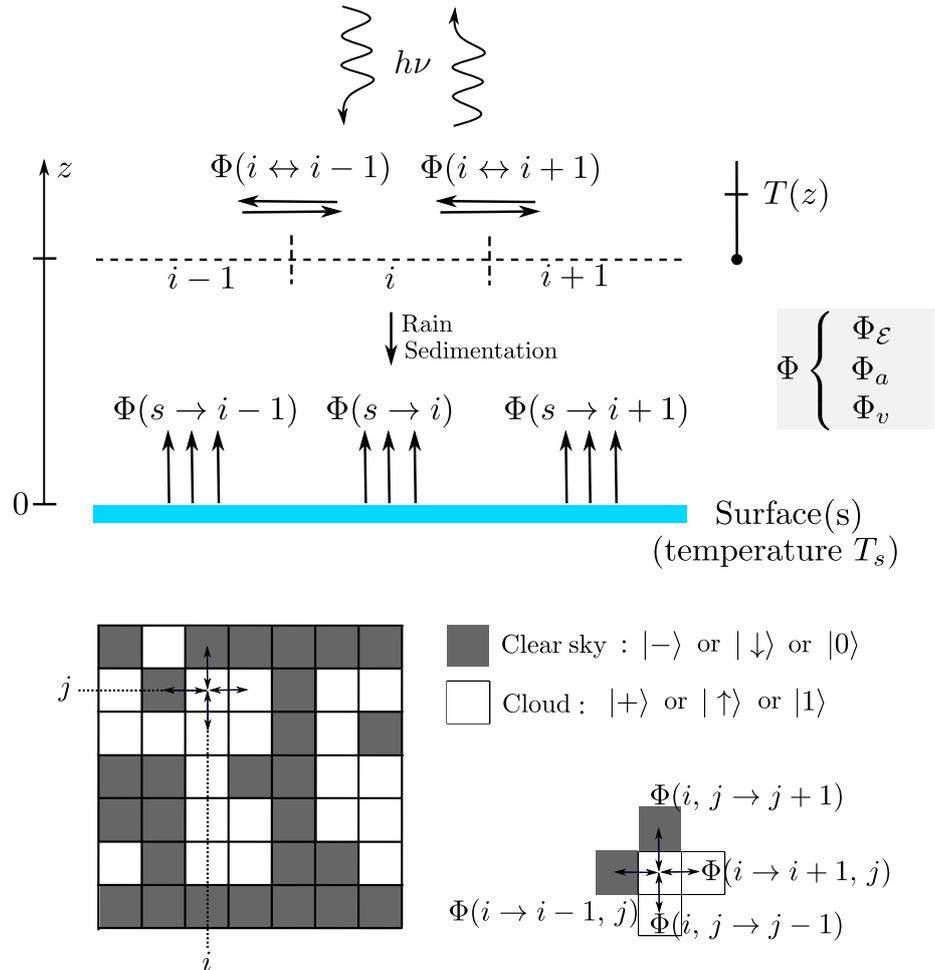
Section 2 describes the model and its underlying assumptions. We have called this model IOCIM for “Indian Ocean Cloud Ising Model.” It can, however, be adapted to any other situations, *mutatis mutandis*. Results are presented and compared with satellite observations in Sect. 3. Conclusions and perspectives are given in Sect. 4.

2 Model description

2.1 Assumptions

The underlying idea of our model is to substantially redefine a cloud. Since it is known that a cloud forms under particular conditions of humidity, temperature and CCN concentration (in number), the point of view is therefore that of field theory: Instead of defining a cloud as an identified set of droplets, it is considered to be a particular state of the field \mathcal{C} determined by the triplet \mathcal{T} {temperature, humidity, CCN concentration}. Thus, to define an Ising model for cloud field examination, we consider the following main assumptions:

Fig. 2 Sketch of IOCIM and interactions between an air parcel (i, j) and its environment. The upper part is for one-dimensional thinking and the figure at the bottom is the two-dimensional grid at the altitude z



1. A network, or a grid, is constructed to represent the geographical area of interest. The size and step of this grid are arbitrary and chosen according to the situation. As far as we are concerned, a squared ocean area of 10 km side, with a step of 1 km, is well adapted.
2. Each grid point can only have two states, either cloudy (state +1) or clear (state -1). These two states correspond to the two spin states in the historical model. It is important to understand that the state +1 means that the field \mathcal{C} presents values thermodynamically compatible with the formation of a cloud and that, conversely, the state -1 corresponds to values which do not allow the appearance of a cloud (the sky therefore remains clear).
3. Each grid point interacts with its nearest neighbors and with the ocean in a way defined in the next section.

2.2 Description

Figure 2 shows a sketch of IOCIM.

Consider a site (i, j) of a two-dimensional grid at an altitude z . For simplicity, we will reason first in one dimension by considering the integer i (upper part of Fig. 2). The generalization to two dimensions is immediate. As already indicated above, this site (or pixel) i is characterized by a triplet gathering the temperature (T), the absolute humidity (L_v) and the number of CCN (N_a). This triplet is defined for each value of i ; it thus constitutes a field $\mathcal{C}(i)$.

Each pixel interacts with its nearest neighbors *via* fluxes Φ , in this case $\Phi(i \leftrightarrow i - 1)$ and $\Phi(i \leftrightarrow i + 1)$. Indeed, two contiguous pixels exchange energy by heat, water vapor and aerosols. The corresponding fluxes are denoted $\Phi_{\mathcal{E}}$, Φ_v and Φ_a , respectively. The same type of exchanges can also occur between the pixel i and the ocean; the corresponding fluxes are $\Phi(s \rightarrow i)$ – the “s” holds for “surface.” In addition, outgoing fluxes such as CCN sedimentation and precipitation (rain) are taken into account. Fluxes have two contributions: One is called conductive (or diffusive) and the other convective (or advective). The first is due to heterogeneities in the field \mathcal{C} : Two different values of T , L_v or N_a between two neighboring pixels lead to a flux tending to re-establish equilibrium. Such a diffusive flux is proportional to the gradient of the non-uniform quantity: $\Phi^{dif} \propto D_x \nabla x$ with $x = T, L_v, N_a$ and where D_x is a coefficient of diffusion for x . Convective fluxes depend on wind speed (v) which allows the transport of x : $\Phi^{con} \propto xv$.

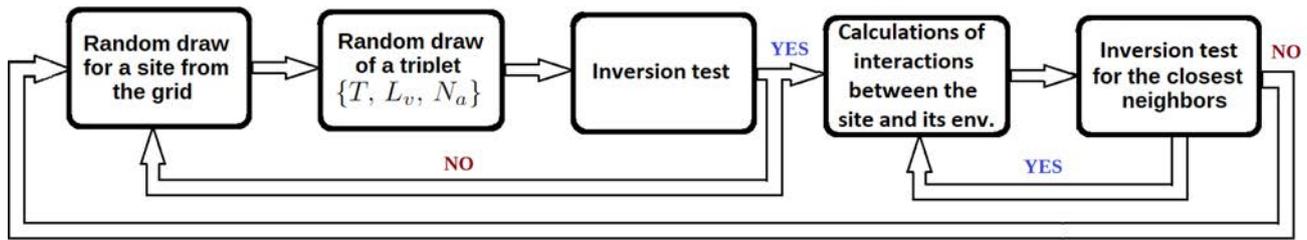


Fig. 3 Algorithm of the IOCIM operating steps

Finally, let us point out that radiation, as an energy source, is able to modify the state of pixel i . Although we have represented this contribution in Fig. 2, under the form $h\nu$ (h is Planck's constant and ν the radiation frequency), it is not taken into account in this first version of IOCIM.

2.3 Implementation

IOCIM follows the algorithm shown in Fig. 3.

There are six main steps:

- (1) Random drawing: we draw (randomly) a pixel (i, j) from the 2D grid;
- (2) Creation of the triplet \mathcal{T}

A value for the triplet $\{T, L_v, N_a\}$ is assigned to this pixel using a random draw for the values of each of the quantities T , L_v and N_a (so there are three independent draws). For that, we have used measurements made during the field campaign AEROMARINE, around Reunion Island, in the South-West Indian Ocean [9]. During AEROMARINE, a microwave radiometer was deployed from mid-December 2018 to early March 2019 in Saint Denis (Reunion Island). It provides temperature (T) and absolute humidity (L_v) data with a very high time resolution (at most 1min) between 0 and 10 km of altitude. The probability density functions of the values of T and L_v obtained from these measurements are displayed in Fig. 4a and b, respectively. For the example, we have chosen an altitude $z = 2$ km (i.e., standard pressure $p \approx 800$ hPa). The probability density function for the number N_a of CCN is displayed in Fig. 4c. The values of N_a have been measured by particle counters. It is from these three probability density functions that the values of T , L_v and N_a are randomly drawn. It is worth precising that the values measured during AEROMARINE, around Reunion Island, are typical of the Indian Ocean [8, 9], so that they can be considered as representative of the considered marine pristine thermodynamic conditions.

- (3) Inversion test

The third step is a test of inversion. The question is the following: Are the values of the triplet \mathcal{T} compatible with a change of state for the pixel (i, j) ? In other words, can this state change from (for instance) a state of clear sky to a cloudy state (or reciprocally, from a cloudy state to a clear sky state)? The answer can be obtained using Twomey's formula [14]: $N_a = CS^k$, where S is the supersaturation, $k = 1/4$ (oceanic case) and C a coefficient. The value of the latter is calculated from the triplet considered as follows: From T and L_v picked randomly in the corresponding pdfs, one can calculate, by means of the ideal gas law, the water vapor pressure $e = L_v(R/M_v)T$, where $L_v = m_v/\mathcal{V}$ is the mass (m_v) of vapor (per unit volume), $R \approx 8.314 \text{ J}^{-1}\text{K mole}^{-1}$ the gas constant and $M_v \approx 18 \text{ g mole}^{-1}$ the molar mass of water. Then, one derives $S = (e - e_s)/e_s$ where e_s is the water vapor pressure at saturation (Clausius–Clapeyron relationship). Then, from a value of N_a picked randomly in the pdf, one finally gets $C = N_a/S^k$. To sum up, picking up randomly values for L_v , T , N_a in the pdfs gives a random value for S and thus for C . This last value is then compared to the threshold $C_s = 176 \text{ cm}^{-3}$ [15]:

- if $C < C_s$, the pixel (i, j) is in the clear state;
- if $C > C_s$, then it is cloudy.

So, starting from an initial clear state (for instance) for (i, j) , the associated value of \mathcal{T} randomly drawn offers two possibilities: Either it does ($C > C_s$) or does not ($C < C_s$) allow a state change. In the case the change is allowed, the question of whether *one accepts* the state change is determined by means of the Metropolis algorithm [16]. Consequently: (1) if $C < C_s$ or the change of state is not accepted, we start again at the beginning of the algorithm by randomly drawing a new point (i, j) ; (2) if $C > C_s$ and the change of state is accepted, then it becomes necessary to analyze how the change of state for the pixel (i, j) impacts the state of its nearest neighbors $(i \pm 1, j \pm 1)$, see Fig. 2 (bottom part). Indeed, a transition introduces heterogeneities with the environment. For the clear \rightarrow cloud transition, water vapor and aerosols are consumed and the temperature increases locally (release of energy by latent heat). The same reasoning is valid for an initial cloudy pixel, but permuting the two conditions: If $C > C_s$, the state transition (cloudy \rightarrow clear sky) is forbidden, whereas it is permitted if $C < C_s$. When such a transition occurs, water vapor and aerosols are released and the temperature locally decreases (consumption of energy—opposite to the latent heat).

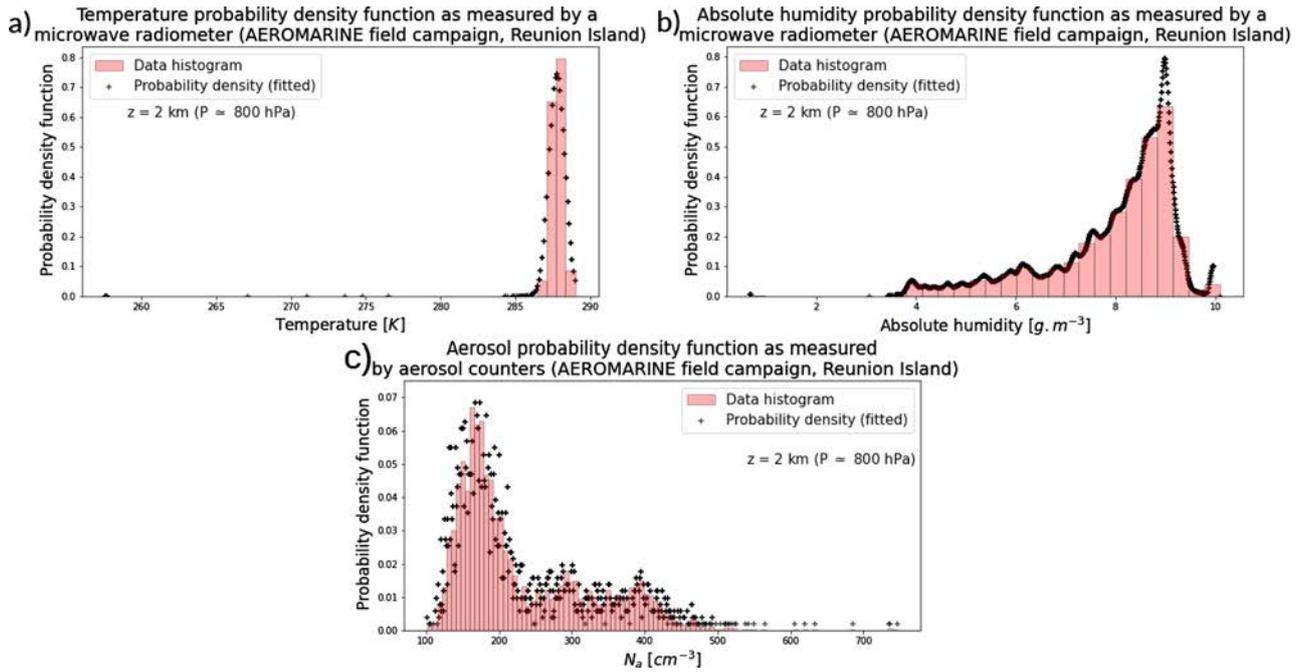


Fig. 4 Probability density functions of the measured temperature T (a), absolute humidity L_v (b) and aerosol concentration (in number) N_a (c) during the AEROMARINE field campaign in February 2019 at an altitude of 2 km (standard pressure level $p \approx 800$ hPa). These pdfs represent a statistic over the whole month of February 2019

(4) Fluxes between a pixel, its neighbors and its environment

The interpixel exchanges are due to diffusive and convective fluxes. They permit transport of water vapor, aerosols and energy (by heat).

Diffusive fluxes $D_x \nabla x$ result from an imbalance between two neighboring pixels. The exchanges of water vapor (in mass) and aerosols (in number) are given by Fick’s law, respectively $\Delta L_v = -D_v [L_v(i, j) - L_v(i \pm 1, j \pm 1)] S_{int} \Delta t$ and $\Delta N_a = -D_a [N_a(i, j) - N_a(i \pm 1, j \pm 1)] S_{int} \Delta t$ where $D_v \approx 2.19 \times 10^{-5} m^2 s^{-1}$ is the diffusion coefficient for water vapor [17] and $D_a \approx 4.9 \times 10^{-12} m^2 s^{-1}$ that for aerosols [18]. In the expressions of ΔL_v and ΔN_a , S_{int} is the surface through which exchanges occur and Δt a user-defined duration. (We have taken 1min.) The diffusive exchange of energy (by heat Q) is determined by Fourier’s law: $Q = -\lambda [T(i, j) - T(i \pm 1, j \pm 1)] S_{int} \Delta t$, where λ is the thermal conductivity. If the pixel (i, j) is a clear sky pixel, λ is the sum of the thermal conductivity for dry air (λ_d) and of the thermal conductivity for water vapor (λ_v). If the pixel is cloudy, it contains also liquid water (thermal conductivity λ_l) and so $\lambda = \lambda_d + \lambda_v + \lambda_l$. Typical values in the atmosphere at $z \approx 2$ km are [17]: $\lambda_a \approx 0.021 W m^{-1} K^{-1}$, $\lambda_v \approx 0.016 W m^{-1} K^{-1}$ and $\lambda_l \approx 0.561 W m^{-1} K^{-1}$. Heat then changes the internal energy per unit of dry air mass of the neighborhood. According to the nature of a neighbor pixel, the variation of its internal energy is:

$$\begin{cases} Q = \Delta U_{clear} = (c_a + c_v w) \Delta T \\ Q = \Delta U_{cloudy} = (c_a + c_v w + c_l \xi) \Delta T \end{cases}$$

with $c_a \approx 1005 J kg^{-1} K^{-1}$, $c_v \approx 1865 J kg^{-1} K^{-1}$, $c_l \approx 4186 J kg^{-1} K^{-1}$, the specific thermal capacities at constant pressure for dry air, water vapor and liquid water, respectively [17]. From these two expressions, we can deduce the ΔT concomitant to the energy exchange. The thermal capacities are assumed to be independent on the temperature. In these two expressions, w is the mixing ratio of water vapor, viz. the mass of water vapor per unit of dry air mass, and ξ that of liquid water. The former is directly given by the value of humidity, while the latter is given by $\xi = w - e_s / (p - e_s)$ where e_s is the water vapor pressure at saturation (Clapeyron’s relationship). This identity is only valid if $w > e_s / (p - e_s)$ for liquid water appears only above the saturation condition.

Convective fluxes between two pixels are of the form $x v_h$ where v_h is the horizontal wind. With respect to the mass of water vapor and the number of aerosols transported, and therefore exchanged with a neighboring pixel, we have $L_v v_h S_{int} \Delta t$ and $N_a v_h S_{int} \Delta t$. The energy exchange involving temperature is of the form $u v_h S_{int} \Delta t$ where u is the internal energy per unit volume—we distinguish, as above, the clear or cloudy nature of the considered pixel (i, j) . In the presence of wind, convective fluxes dominate generally the diffusive fluxes because the time scales of the latter are longer. However, diffusive fluxes are not without any interest because, in a windless situation, or for very weak wind, they become important and can account for the “stationarity” of a cloud field or its slow evolution.

The exchanges of aerosols, energy and water vapor between a pixel and the ocean are also taken into account in this model. Indeed, the ocean is a major source of CCN aerosols and of water vapor. It is also a reserve of energy. We can define the flux of aerosols

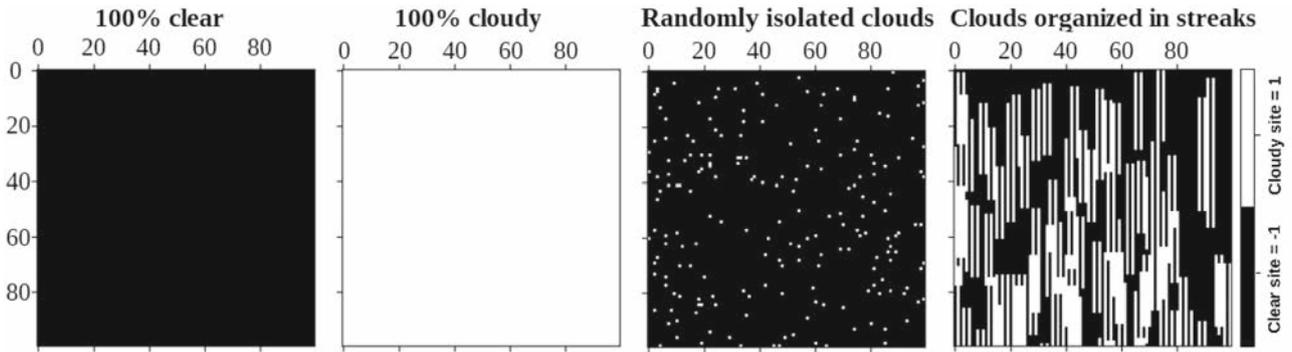


Fig. 5 Four examples of initial grids: 100% clear, 100% cloudy, random and clouds streakily organized. White: cloudy pixel. Black: clear pixel

reaching the altitude z by $\Phi_a = \Phi_{a,o} W S_{OA} \Delta t$, where $\Phi_{a,o}$ is the flux of aerosols emitted by one cubic meter of oceanic water, S_{OA} the surface of the ocean-atmosphere interface, and W the vertical wind speed ([19]). To compensate for this input, losses due to precipitation (mainly rain) and sedimentation are introduced in the model. The corresponding fluxes represent a CCN sink for the considered pixel. The first Φ_{prec} has been chosen independent of the pixel and equal to an average rate $R = 5 \times 10^{-5} \text{ mm s}^{-1}$ [17]; the corresponding variation of aerosols is $\Delta N_a \approx -4.9 \times 10^{-12} R N_a \Delta t$ [20]. The sedimentation flux takes into account apparent weight of the CCN (*i.e.*, weight plus buoyancy force depending on diameter and density of the aerosols), aerodynamics friction, local turbulent air motions and Brownian motion. It can be written as: $\Phi_{sed} = -10^{-6} N_a \Delta t$ [21].

Finally, the energy and water vapor fluxes (Φ_E and Φ_v , resp.) between the ocean (temperature T_s) and the considered pixel (i, j) at the altitude z are [22] $\Phi_E = \rho_a c_a C_H [v_h(i, j) - U_s][T_s - T(i, j)]$ and $\Phi_v = \rho_a C_E [v_h(i, j) - U_s][L_{v,s} - L_v(i, j)]$, with $C_H \approx 1.1 \times 10^{-3}$ and $C_E \approx 1.6 \times 10^{-3}$ two factors, $\rho_a \approx 1.29 \text{ kg m}^{-3}$ the air density, U_s the horizontal wind speed at the ocean surface and $L_{v,s}$ the absolute humidity just above the oceanic surface. These formulas are empirical relationships linking air/sea exchanges with, especially, the horizontal wind. The importance of the latter is due to the fact that, blowing tangentially to the sea surface, it extracts molecules and energy which are then transported upward. The corrective coefficients C_H and C_E allow to parameterize the upward air mass motion in the transport. The values taken here are averaged values typical of marine conditions. In the above expression of Φ_a relative to the air/sea exchange of aerosols, the horizontal velocity is included in $\Phi_{a,o}$ through an appropriate Reynolds number (see [19, Eq. 3]) The values of v_h are taken from ERA5 reanalyses¹, for the whole month of February 2019 in the region considered.

Once calculated all the fluxes, we sum algebraically, for each quantity exchanged, the contributions between the closest neighbors of each site.

- (5) Impact on the nearest neighbors: Once the interactions have been calculated, we look at how the triplets of the nearest neighbors are modified, and their respective state are changed accordingly if necessary.
- (6) Draw a new grid point: The algorithm finishes at this point for the pixel (i, j) and its four closest neighbors. This series of steps is repeated from the beginning by randomly drawing a new pixel (i, j).

In the current version of IOCIM, the boundary conditions are such that, at the grid boundaries, only three neighbors are considered for the different exchanges (fluxes); there is no exchange (energy, aerosols or humidity) coming horizontally from outside the grid.

The pdfs used in this model are assumed to be representative of the region considered, whatever the grid size from the smallest one $(10 \text{ km})^2$ up to the current one $(100 \text{ km})^2$. This is not a too severe assumption for the Indian Ocean, since this area is relatively quite “homogeneous” in its thermodynamical properties (see, *e.g.*, [8, 9]). Nonetheless, a better representation over the horizontal scales would be better. Presently, the required data are not available. However, they should be available in a mid-future thanks to the MAP-IO field campaign² which is still in progress.

3 Results

For the present study, IOCIM has been run with four initial grids (Fig. 5). The first one is a totally clear sky situation, the second a 100% cloudy area, and the last two ones are intermediate cases with a certain percentage of initial cloudy pixels. The difference between the third grid and the fourth one is that the former represents a random arrangement of isolated clouds, while the latter represents a streaky organization of the cloud field. This last organization has been listed by [1, (Fig1, C and F)].

¹ ERA5 is the latest climate reanalysis produced by ECMWF (European Center for Medium-Range Weather Forecast). Reanalyses are realized combining observations with models in order to generate time series of various meteorological variables.

² A boat is embarking different instruments to perform measurements over the Indian Ocean (<https://www.data-terra.org/en/news/map-io-a-marine-and-atmospheric-observatory-aboard-the-marion-dufresne/>).

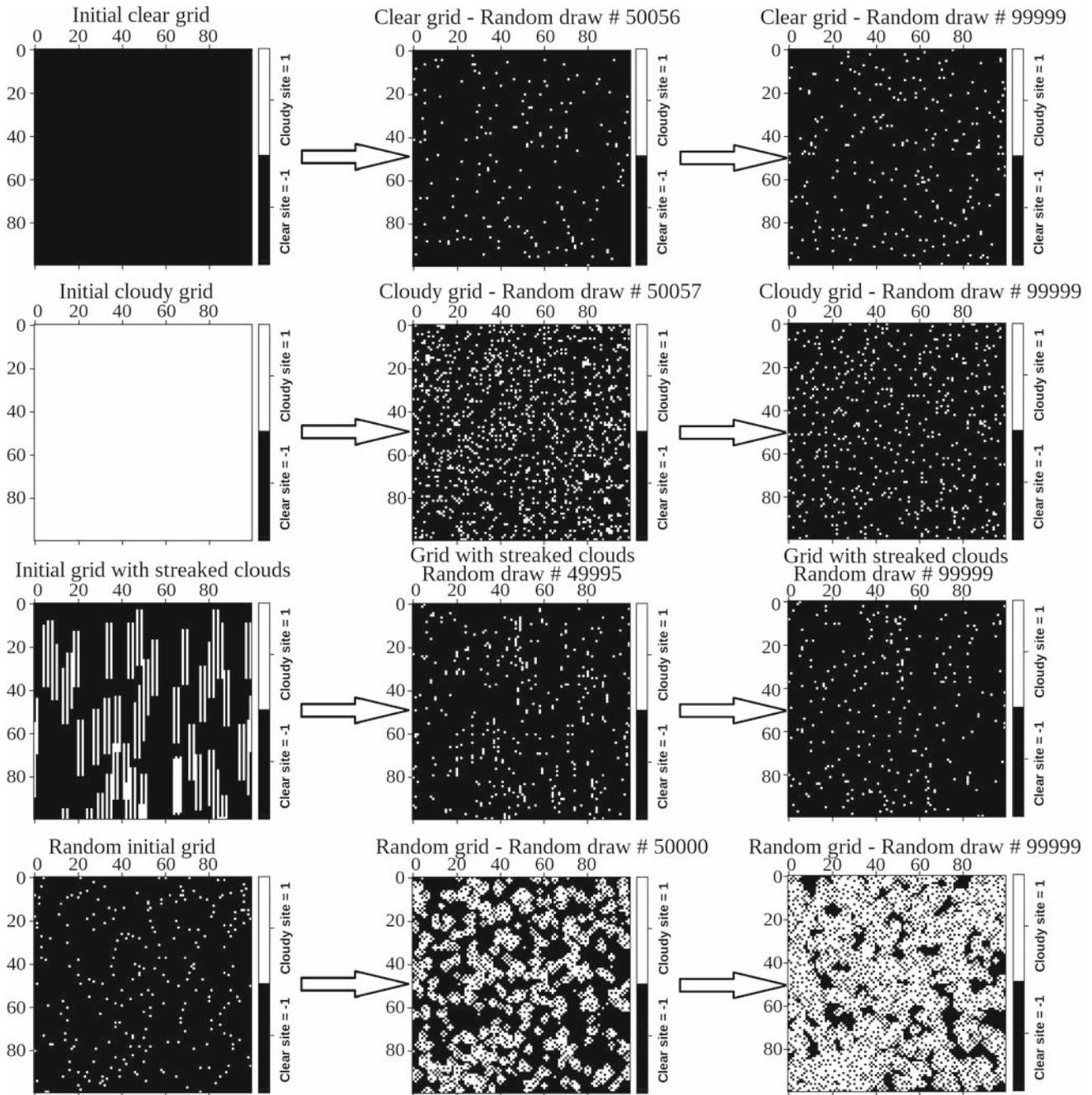


Fig. 6 Results obtained by IOCIM from the four initial grids (first column), after approximately 50 000 draws (2nd column) and after approximately 100, 000 draws (last column), for $z = 2$ km (pressure level 800 hPa) with data for February 2019 (AEROMARINE field campaign)

First, we must choose an altitude z , and therefore a pressure level, for example, 975 hPa (near to the surface), 900 hPa (marine boundary layer), 800 hPa and 700 hPa (free troposphere). The results presented here use the probability density functions from the AEROMARINE field campaign in February 2019 at $z = 2$ km ($p \approx 800$ hPa).

Starting from the initial 100% clear, 100% cloudy and streaky cloud grids similar cloud fields with random arrangements of the cloudy pixels have been obtained after 100 000 draws (Fig. 6). Cloudy pixels are more numerous if the initial state is 100% cloudy (second line), which is a realistic result because, for such a case, the thermodynamic conditions which constitute the triplet \mathcal{T} have already a high probability of forming a cloud. Conversely, from an initial 100% clear grid (first line), \mathcal{T} shows less favorable conditions for cloud formation, so that cloudy pixels are not at all dominant. Similar results have been obtained after repeating several times the simulations starting from the same grid.

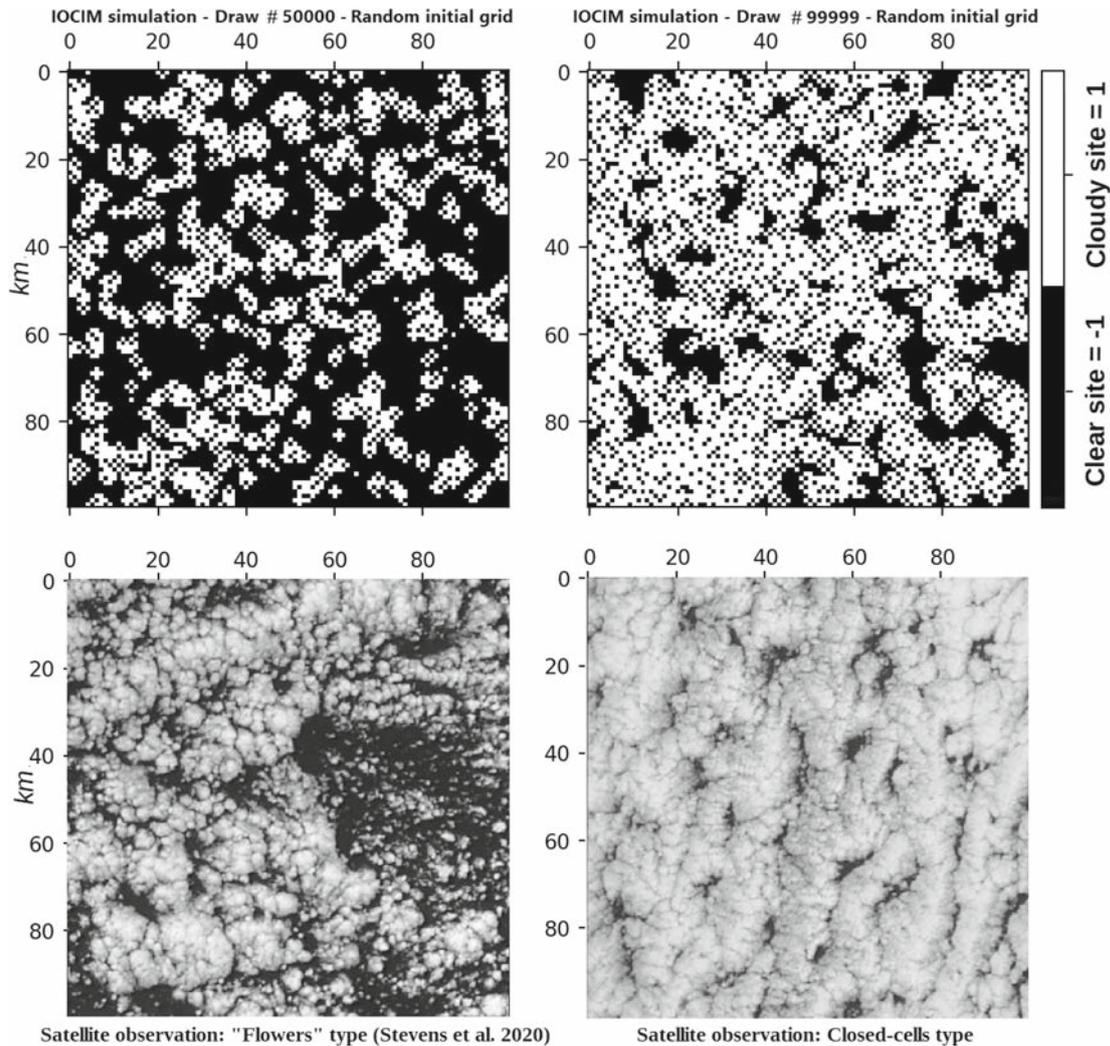


Fig. 7 Comparison of cloud fields generated by IOCIM from a random initial grid (top) with satellite observations (bottom) of “Flowers” type (on October, 23th 2022) and closed cells (on October, 12th 2022) over Indian Ocean

A very interesting behavior is exhibited by IOCIM when starting from a random initial grid. After 50, 000 random draws, the cloud field organizes itself and shows some flocculation which strongly looks like what one can observe from satellite imagery. In particular, the simulated flocculation resembles strikingly to the “flowers”-type organization proposed by [2]. See the left part of Fig. 7 (top and bottom). At the end of the simulation (after around 100 000 random draws), the resulting cloud field appears in a shape reminiscent of closed cells (Fig. 7, right part). This suggests that IOCIM is capable of reproducing the spatial organization of a cloud field from simple, but realistic, physical parameters and exchanges between an air mass and its environment. We precise that about several tens of thousands draws are necessary to reach the cloud field states presented here (Fig. 7). This means that such fields appear after exploring enough values for the triplet. An estimate is about #30 000 for the structure on the left-hand panel and about #80 000 for the structure on the right-hand panel. The numbers indicated on the title of each panel (on the top), *viz.* #50 000 and #99 999, are larger. This is because we have continued to draw randomly much after the necessary numbers (#30 000 and #80 000) in order to be sure that the simulated cloud fields do not change anymore.

We ran a simulation, for the four initial grids, with the same input distributions as before but without the convective fluxes between the pixels, *i.e.*, considering only the ocean/atmosphere convective fluxes and the inter-pixel conductive fluxes. The results are shown in Fig 8. After about 50 000 draws, the simulated cloud fields tend toward a random arrangement, regardless of the initial grid. We observe that, for an initially 100% cloudy grid, the number of cloudy pixels is greater than for the other cases (as previously, the triplet \mathcal{T} shows greater probabilities of forming a cloud). However, flocculations (observed earlier from an initial random grid) do not form anymore, namely in the absence of convective flux. The latter then seems to play a crucial role in the organization of the cloudy fields.

In order to evaluate more quantitatively what IOCIM simulates, we have compared the simulated fields with observations from the MODIS/Aqua satellite in the same region (Southern Indian Ocean) on February 23th, 2019. We have chosen this special date

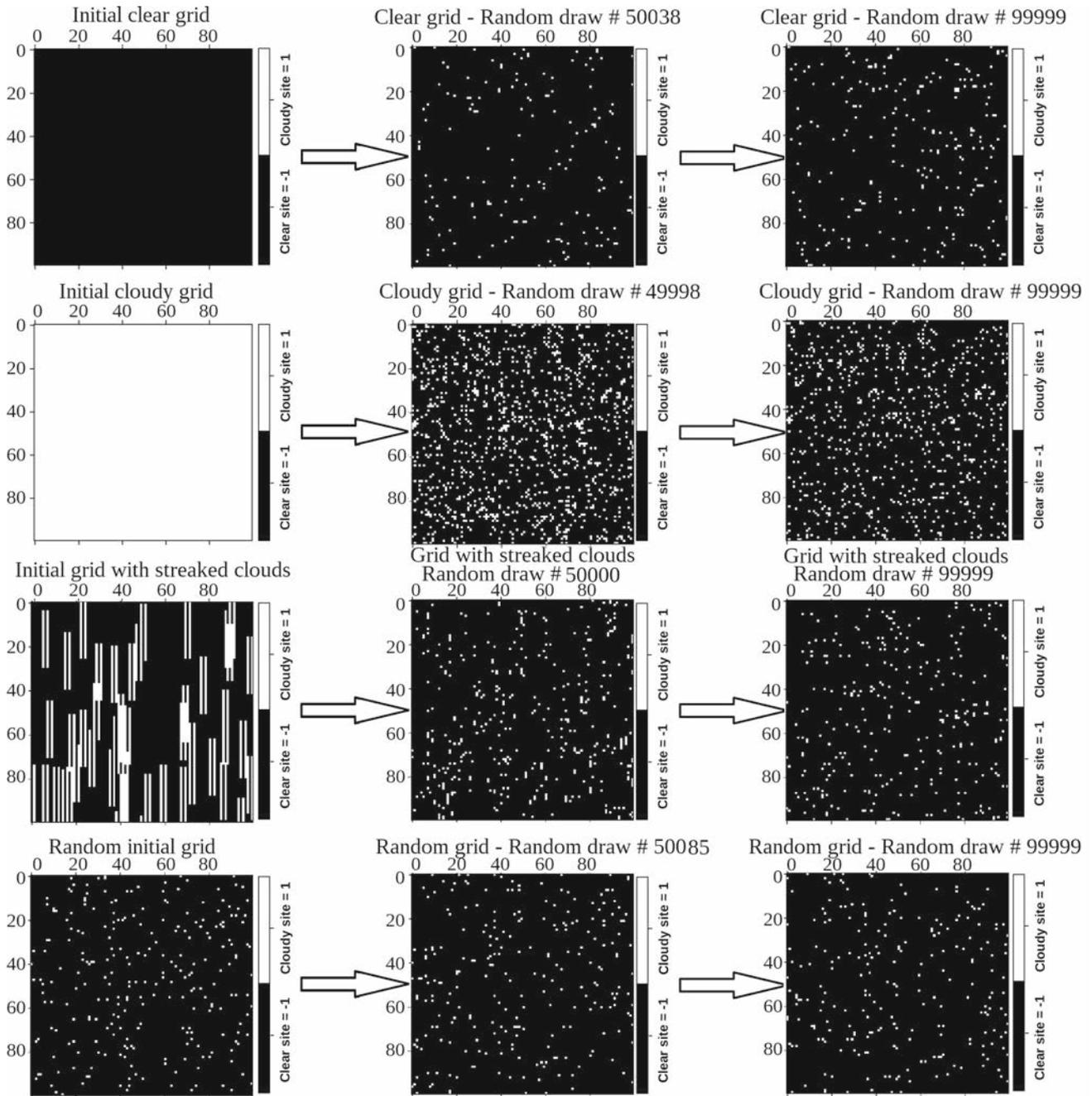


Fig. 8 Same as Fig. 6 but without interpixel convective fluxes

and area because the data used to feed IOCIM are the probability density functions deduced from *in situ* measurements carried out during February 2019 around Reunion Island (close geographical area, same meteorological conditions, [8]). Hence, *in situ* measurements and satellite observations coincide in time and location. Moreover, during the passage of the satellite on this date, different organizations of cloud fields could be observed. Thus, the thermodynamic conditions simulated by IOCIM are representative of the region and the season.

Figure 9 shows the MODIS/Aqua satellite observations, on February 23th, 2019, in the box {60°S – 40°S; 80°E – 125°E}. The three colored boxes (A, B and C) identify particular cloud organizations for the comparison with IOCIM simulations. These three regions offer the opportunity to test IOCIM for various typical cloud organizations: one with a low percentage of clouds (foculation, region A), with a higher cloud fraction (region B) and an important cloud cover of closed cells type (region C).

Fig. 9 MODIS/Aqua observations, February 23th, 2019, 07:35 UTC, (Universal Time Coordinate) over the Southern Indian Ocean

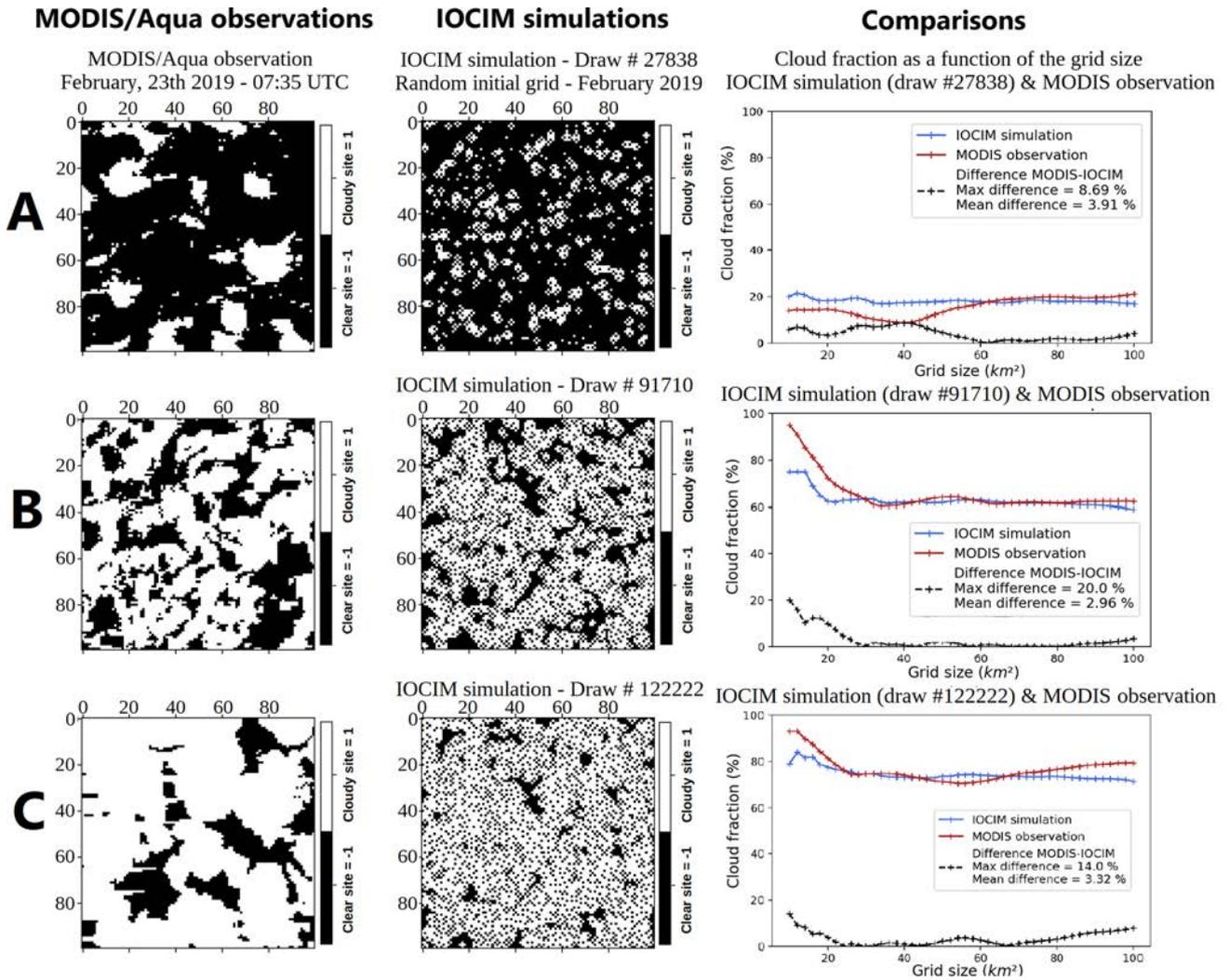
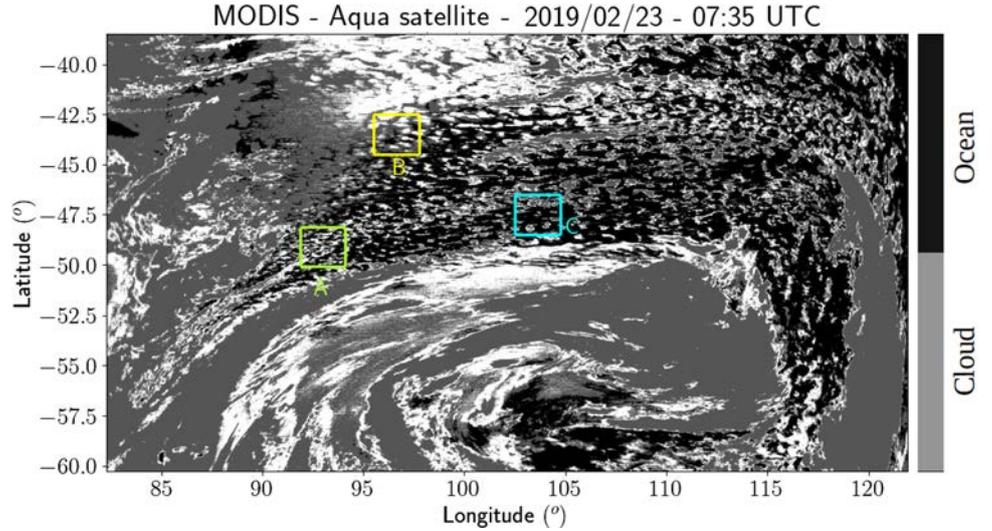


Fig. 10 MODIS/Aqua observations of the February 23th, 2019 (first column) and IOCIM simulations from a random initial grid (2nd column) for the three selected cases (regions A, B and C). The last column presents the cloud fractions calculated for the observations and the simulations as well as the difference (absolute value)

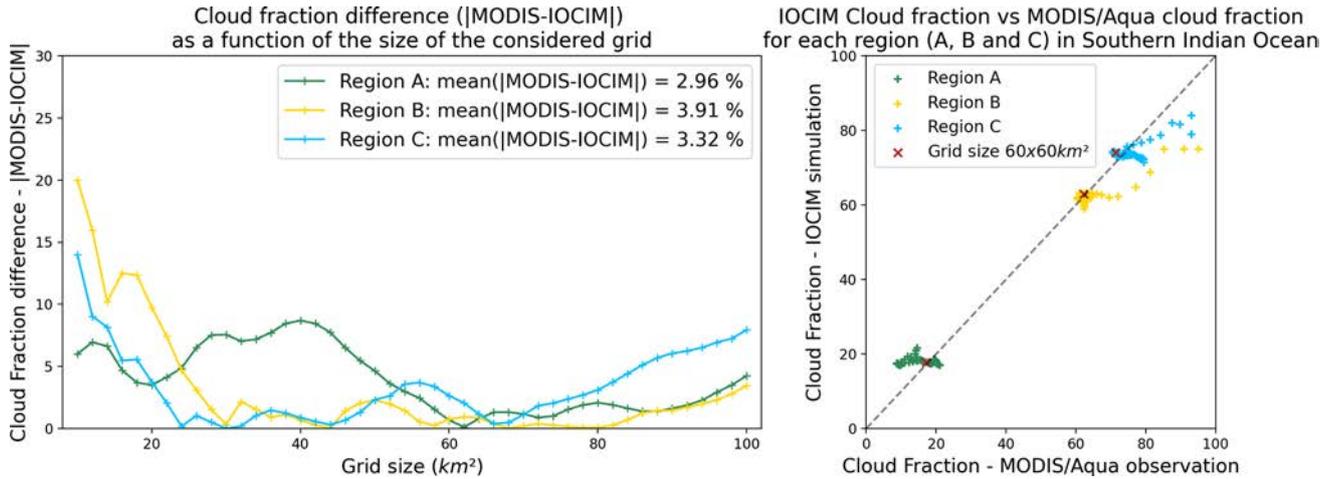


Fig. 11 On the left: Observation-simulation differences (MODIS/Aqua-IOCIM) and mean values for the three boxes considered (A, B and C). On the right: Ratio of cloud fractions of IOCIM compared to cloud fractions of the MODIS/Aqua observations for the three regions

For the IOCIM-Satellite comparison, we have focused on the cloud fraction and for different grid sizes. For that, we have determined the percentage of cloudy pixels for square grids with sizes ranging from $10 \times 10 \text{ km}^2$ up to $100 \times 100 \text{ km}^2$, progressing step sizes of $2 \times 2 \text{ km}^2$, in order to test IOCIM at different spatial scales.

Figure 10 displays the observations (A, B and C) from MODIS/Aqua (first column) and the corresponding simulated fields (second column) (grid size: $100 \times 100 \text{ km}^2$). The values of the cloud cover obtained for each grid size (simulated and observed) are shown in the last column of Fig. 10.

It is quite striking to see, again, that the model is close to the observations in terms of how clouds are spatially organized. This seems to be particularly the case for cloud fields with heavy cloud cover (closed cell type, region C and region B). The calculated cloud covers in each case show little differences between the simulation and the observations: The difference MODIS-IOCIM (in absolute value) never exceeds 20%, and the average value of these differences does not reach 4%.

For the box A, IOCIM slightly overestimates (MODIS-IOCIM difference less than 9%) the cloud fraction compared to the observed cloud field. For a grid of side more than 50 km, the model and the observations seem to correspond well. In the second region (B), the observed cloud fraction is higher than the IOCIM cloud fraction when the spatial scale is less than 25 km^2 . Beyond, the model presents negligible differences with the observations. Concerning the region C, the observed and simulated cloud fractions are very close. An underestimation of the model for grid sides less than about 30 km and more than around 80 km is still visible.

The evolution of the observation-model differences, for each of the three regions, is plotted as a function of the size of the considered grid in Fig. 11. It can be noted that, for the three cases, the smallest differences are for a grid of a size around $60 \times 60 \text{ km}^2$. This means that IOCIM model best reproduces observations for mesoscale cloud fields of about 60 km. This is not a surprising behavior. At a too small spatial case (small grid size), the atmosphere is submitted to fluctuations which prevent any clear organization to form. At a high enough scale (large grid size), thermodynamic conditions can significantly change with space inside the grid so that one cannot expect a clear and well-identified cloud field organization to be related to specific thermodynamic conditions (here, the data represented by AEROMARINE).

Figure 11 also presents the correlation of cloud fraction obtained by the model and observed by satellite, for the boxes A, B and C. The data appear to be approaching the [1:1] line. The red crosses show the values for a grid of $60 \times 60 \text{ km}^2$ and are, in the three case studies, positioned on this line [1:1]. Also, this figure confirms that IOCIM tends to underestimate cloud fractions when the grid has heavy cloud cover. Conversely, the model overestimates the cloud fractions when fewer clouds are present.

Another way to characterize cloud field organization is to calculate the ratio (or occurrences) $R_{l < r}$ that the distance l between two cloudy pixels, taken randomly, is less than a fixed radius r . We have estimated l from the MODIS/Aqua observations and from the IOCIM simulations. We have chosen r ranging from 1 km (grid resolution) up to the size of the considered grid. The ratio that $l < r$ is then calculated, for each grid size, for the three regions A, B and C. Figure 12 presents the correlation of $R_{l < r}$ for the satellite observations and for the IOCIM simulations (first column). The second column shows these same ratios as a function of r in the case where the observation-simulation differences are minimal. For the region A (first row), the simulated ratio is lower than that deduced from the observation for small grid size (e.g., $40 \times 40 \text{ km}^2$ grid size). Conversely, for larger grids (e.g., $100 \times 100 \text{ km}^2$), the model shows higher ratios. The minimum average difference is obtained for a grid size of $50 \times 50 \text{ km}^2$. Regions B and C show very good agreement between IOCIM simulations and MODIS/Aqua observations. These last results correspond to what was obtained for the cloud fractions.

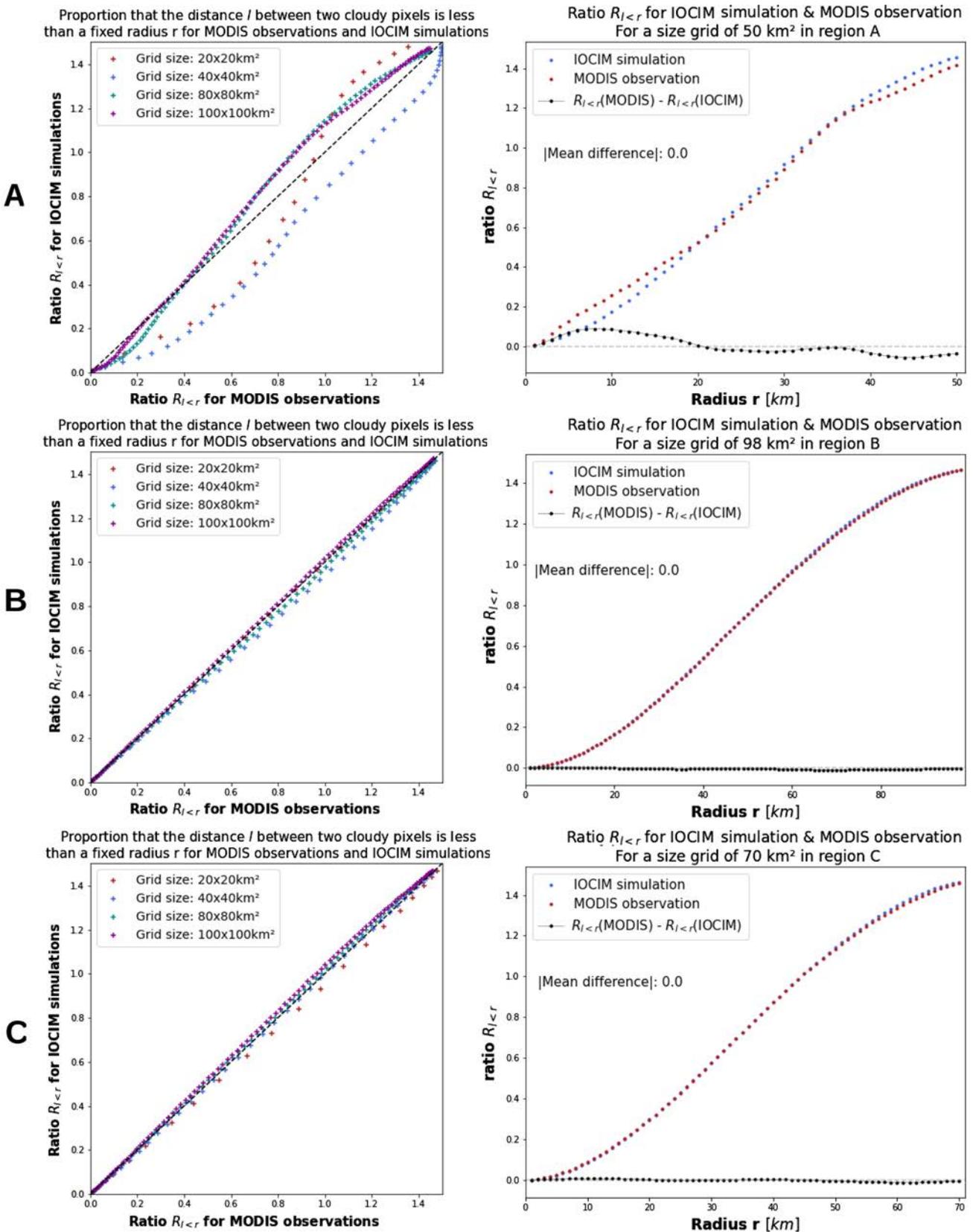


Fig. 12 First column: Scatter plot of the ratio ($R_{l < r}$) for satellite observations and for IOCIM simulations. Second column: Ratio $R_{l < r}$ versus radius r for the case where the observation-simulation differences are minimal for each region

The preliminary results presented are encouraging. Indeed, it can be said that, at least for the context chosen here, IOCIM is able to reproduce cloud fields with spatial organizations similar to those observed. This first version therefore incites to deepen the investigations and to further develop and improve the original approach of IOCIM.

4 Conclusion and perspectives

In this paper, a 2D Ising-like model (IOCIM) for simulating cloud field organization at the mesoscale has been presented. This model is primarily based on the natural assumption that a cloud is just a particular state of the thermodynamic field formed by temperature, humidity and aerosol (CCN) population (number) of the atmosphere rather than an identified population of droplets and raindrops (focus has been put on liquid clouds, not on ice clouds). It has been shown that IOCIM is capable of generating and dissipating clouds by taking into account different interactions between an air mass (a pixel in the model) and its environment, *i.e.*, the closest neighborhood and the oceanic surface (collective behavior). Also, we have been able to examine the evolution of the cloudy/clear-sky pixel ratio and to highlight its closeness with observations. The work presented in this paper thus suggests strongly that answering the fundamental question of cloud field organization, and relation with specific thermodynamic conditions, seems to be possible by means of a novel approach using efficient fundamental physics tools. This is of crucial importance to better understand climate change and especially the role played by clouds.

The results of this first version of IOCIM are promising. Their consistency and agreement with satellite observations encourage us to follow this line of research and to consider some perspectives of investigation. First, a deeper examination of the role of each of the interactions considered in IOCIM and of the thermodynamic conditions likely to lead to structured (or not) cloud fields is intended to propose a cloud field classification depending on environmental conditions. For that, it would be helpful to run IOCIM differently as done here, precisely by fixing (so imposing a constraint) the total energy and the total mass of the system (the grid at z). This should suggest which possible cloud field states are allowed for a fixed value of the energy (and the mass). In a near future version IOCIM will have to incorporate radiation as a source of energy capable of influencing the state of a pixel and so the cloud organization. The cloud fields observed and simulated will also have to be analyzed in terms of statistical physics (at and out of equilibrium): Correlation length, order parameter, partition function, entropy will be calculated. A question of prime importance (for us) is the criticality of the clear sky-cloudy sky transition and especially whether it follows a principle of extremal production rate entropy. We think that the original approach presented here could contribute to provide some answers.

The model IOCIM is, for now, centered on the South Indian Ocean, in pristine conditions. More refined data, considering precise horizontal variations (and for different seasons) of the thermodynamical quantities in pristine conditions, should be available in a mid-future thanks to the MAP-IO field campaign.

Of course, IOCIM can also be adapted to other conditions, *mutatis mutandis*.

We hope that this study will pave the way to further investigations on cloud fields which combine atmospheric science and fundamental physics. This kind of approach is more than welcome: Atmospheric science gives the context, fundamental physics gives the tools!

Acknowledgements We are grateful to the Labex CAPP (ANR-11-LABX-0005-01) which has funded this work in the context of the Cloud-aerosol interactions work package. The authors thank Lambert Delbeke who realized the very first implementation of the first version of IOCIM during his internship supervised by Olivier Pujol.

Data Availability Statement This manuscript has associated data in a data repository. [Author's comment: The datasets generated during and/or analyzed during the current study are available from the corresponding author on reasonable request.]

References

1. S.K. Sengupta, R.M. Welch, M.S. Navar, T.A. Berendes, D.W. Chen, Cumulus cloud field morphology and spatial patterns derived from high spatial resolution landsat imagery. *J. Appl. Meteorol. Climatol.* **29**, 1245–1267 (1990). https://doi.org/10.1175/1520-0450.1990_029_1245_ccfmas_2_0_co_2.xml https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/29/12/1520-0450_1990_029_1245_ccfmas_2_0_co_2.xml
2. B. Stevens, S. Bony, H. Brogniez, L. Hentgen, C. Hohenegger, C. Kiemle, T.S. L'Ecuyer, A. Naumann, H. Schulz, P.A. Siebesma, J. Vial, D.M. Winker, P. Zuidema, Sugar, gravel, fish and flowers: mesoscale cloud patterns in the trade winds. *Quart. J. Royal Meteorol. Soci.* **146**, 141–152 (2020). <https://doi.org/10.1002/qj.3662>
3. R. Wood, Stratocumulus clouds. *Month. Weath. Rev.* **140**, 2373–2423 (2012). <https://doi.org/10.1175/MWR-D-11-00121.1> <https://journals.ametsoc.org/view/journals/mwre/140/8/mwr-d-11-00121.1.xml>
4. E. Ising, Beitrag zur theorie des ferromagnetismus. *Z. Phys.* **31**(1), 253–258 (1925)
5. W. Lenz, Beiträge zum verständnis der magnetischen eigenschaften in festen körpern. *Physikalische Zeitschrift* **21**, 613–615 (1920)
6. K. Nagel, E. Raschke, Self-organizing criticality in cloud formation? *Physica A: Stat. Mech. Appl.* **182**, 519–531 (1992)
7. M.D. Alexandrov, A. Marshak, A.S. Ackerman, Cellular statistical models of broken cloud fields. part i: theory. *J. Atmosph. Sci.* **67**, 2125–2151 (2010). <https://doi.org/10.1175/2010JAS3364.1> <https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/67/7/2010jas3364.1.xml>
8. P.E. Mallet, O. Pujol, J. Brioude, S. Evan, A. Jensen, Marine aerosol distribution and variability over the pristine southern indian ocean. *Atmosph. Environ.* **182**, 17–30 (2018). <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.03.016>

9. F. Mascout, O. Pujol, B. Verreyken, R. Peroni, J.M. Metzger, L. Blarel, T. Podvin, P. Goloub, K. Sellegri, T. Thornberry, V. Duflot, P. Tulet, J. Brioude, Aerosol characterization in an oceanic context around reunion island (aeromarine field campaign). *Atmosph. Environ.* **268**, 118770 (2022). <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118770>. www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231021005926
10. I. Koren, G. Dagan, O. Altaratz, From aerosol-limited to invigoration of warm convective clouds. *Science* **344**, 1143–1146 (2014). <https://doi.org/10.1126/science.1252595>
11. S. Bony, W.D. Collins, D.W. Fillmore, Indian ocean low clouds during the winter monsoon. *J. Clim.* **13**, 2028–2043 (2000). <https://doi.org/10.1175/1520-0442>. https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/13/12/1520-0442_2000_013_2028_iolcldt_2.0.co_2.xml
12. G. Sèze, H. Pawlowska, Cloud cover analysis with meteosat-5 during indoex. *J. Geophys. Res.: Atmosph.* **106**, 28415–28426 (2001). <https://doi.org/10.1029/2001JD900097>
13. D.L. Monroy, G.G. Naumis, Description of mesoscale pattern formation in shallow convective cloud fields by using time-dependent ginzburg-landau and swift-hohenberg stochastic equations. *Phys. Rev. E* **103**, 032312 (2021). <https://doi.org/10.1103/PhysRevE.103.032312>
14. S. Twomey, The nuclei of natural cloud formation part ii: The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. *Geofisica pura e applicata* **43**, 243–249 (1959). <https://doi.org/10.1007/BF01993560>
15. J. Hudson, S. Yum, Cloud condensation nuclei spectra and polluted and clean clouds over the Indian ocean. *J. Geophys. Res.: Atmosph.* **107**, INX2 21–1–INX2 21–12. (2002). <https://doi.org/10.1029/2001JD000829>
16. N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth, A.H. Teller, E. Teller, Equation of state calculations by fast computing machines. *J. Chem. Phys.* **21**, 1087–1092 (1953). <https://doi.org/10.1063/1.1699114>
17. E. Lewis, S. Schwartz, Sea salt aerosols production: mechanisms, methods, measurements and models - A critical review. *Geophys. Monogr.* **152**, (2004).
18. I. Zvára, *Physicochem. Fund.* (Methods for Studying Gaseous Compounds, The Inorganic Radiochemistry of Heavy Elements, 2008), pp.35–51
19. J. Ovadnevaite, A. Manders, G. de Leeuw, D. Ceburnis, C. Monahan, A.I. Partanen, H. Korhonen, C.D. O’Dowd, A sea spray aerosol flux parameterization encapsulating wave state. *Atmosph. Chem. Phys.* **14**, 1837–1852 (2014). <https://doi.org/10.5194/acp-14-1837-2014>
20. B. Sportisse, Pollution atmosphérique. Des processus à la modélisation. *Ingénierie et développement durable*, Springer, France, (2008). <https://hal.inria.fr/inria-00581172>
21. S.M. Saleeby, S.C. van den Heever, Developments in the csu-rams aerosol model: Emissions, nucleation, regeneration, deposition, and radiation. *J. Appl. Meteorol. Climatol.* **52**, 2601–2622 (2013). <https://doi.org/10.1175/JAMC-D-12-0312.1>. <https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/52/12/jamc-d-12-0312.1.xml>
22. J. DeCosmo, K.B. Katsaros, S.D. Smith, R.J. Anderson, W.A. Oost, K. Bumke, H. Chadwick, Air-sea exchange of water vapor and sensible heat: the humidity exchange over the sea (hexos) results. *J. Geophys. Res.: Oceans* **101**, 12001–12016 (1996). <https://doi.org/10.1029/95JC03796>

Springer Nature or its licensor (e.g. a society or other partner) holds exclusive rights to this article under a publishing agreement with the author(s) or other rightsholder(s); author self-archiving of the accepted manuscript version of this article is solely governed by the terms of such publishing agreement and applicable law.

Conclusion Générale & Perspectives

Cette thèse s'inscrit dans un contexte scientifique relatif à la formation des nuages, et plus précisément aux couplages entre la vapeur d'eau, les aérosols et les nuages. Nous avons choisi un contexte précis, celui des régions océaniques pristines. La raison est que ces régions ultra-propres (ou vierges, sauvages, primitives) en termes d'aérosols constituent une composante naturelle du climat ; éloignées des continents, ces régions sont épargnées par les pollutions d'origines anthropiques. On peut les considérer comme proches des conditions atmosphériques pré-industrielles. Par conséquent, elles sont d'un intérêt de premier plan pour l'étude du changement climatique. En outre, les océans occupent presque trois quarts de la surface planétaire et constituent donc un réservoir d'aérosols (naturels) et d'humidité. Une des originalités de cette thèse est que relativement peu d'études se focalisent sur ces régions pristines car l'impact humain sur le climat est une préoccupation qui retient l'attention de la communauté scientifique. Analyser la composante naturelle permet aussi de mettre en évidence cette composante anthropique.

Pour tenter d'apporter une contribution, deux types d'études ont été réalisées : une étude expérimentale et une étude théorique. La première est relative à une campagne de mesures autour et sur l'île de la Réunion (campagne AEROMARINE). Quant à la seconde, elle porte sur le développement de modèles par le biais de deux approches fondées sur une démarche interdisciplinaire conciliant la physique statistique, la dynamique non-linéaire et les sciences du climat.

Les travaux réalisés pendant cette thèse ont permis, dans un premier temps, de caractériser les propriétés physiques des aérosols naturels (marins) et les conditions thermodynamiques dans un contexte océanique pristin, grâce aux mesures de la campagne AEROMARINE. Lors de cette campagne, six vols ins-

trumentés ont permis d'échantillonner les aérosols (principalement marins), de quantifier leurs propriétés physiques (AOD, concentrations...) et de déterminer leur distribution verticale. Nous avons ainsi trouvé que les aérosols suivent la distribution verticale suivante : (L1) dans la couche limite marine ($z \leq 0,5$ km), les aérosols (d'origine océanique ou insulaire selon le vent) viennent essentiellement de la surface ; (L2) la couche intermédiaire, c'est-à-dire entre 0,5 et 1,5 km, est une couche de mélange dans laquelle les aérosols sont mélangés à ceux provenant des couches atmosphériques inférieures et/ou supérieures ; et (L3) au-dessus d'une altitude de 1,5 km, les aérosols échantillonnés ne sont pas sensiblement impactés par la surface et une concentration de fond en aérosols naturels a pu être quantifiée.

Ces mesures ont ensuite été utilisées pour les aspects théoriques. Tout d'abord, nous avons construit un modèle de type proie-prédateur (à partir du modèle de O. PUJOL et JENSEN 2019) capable de décrire certaines caractéristiques macroscopiques des interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages. Ce modèle considère la vapeur d'eau comme une variable indépendante du système ; il s'agit d'un système de trois équations (degrés de liberté) qui s'inspire de la dynamique de compétition entre espèces. L'intérêt d'une telle approche est d'essayer de contribuer à la compréhension d'un système aussi complexe que les interactions aérosols-vapeur d'eau-nuages, sans considérer toute la complexité de ces couplages. Ce type de modèle diffère donc des modèles atmosphériques les plus exhaustifs tels que les LES, CRMs ou modèles de prévision. Face à la complexité de ces derniers, il n'est pas inutile d'examiner des modèles plus simples qui n'ont pas vocation, certes, à les remplacer mais sont plutôt à valeur au moins heuristique. Ils peuvent en effet constituer une aide précieuse pour comprendre les interactions mentionnées plus haut. Le modèle de type proie-prédateur construit lors de cette thèse montre alors que nous parvenons à décrire les aspects macroscopiques les plus importants dans un nuage. Ce qui peut paraître ici être une affirmation a été corroboré et justifié par la comparaison des sorties du modèle avec des mesures *in-situ*, des réanalyses et/ou des observations satellites. Ainsi, nous avons montré que le cycle de vie des nuages (apparition, évolution, disparition, contenus en eau, organisation, etc) est bien simulé par notre système de trois équations. De plus, ce modèle pourrait être utilisé, non seulement

comme modèle de formation de nuages, mais aussi comme outil pour déterminer des valeurs optimisées pour les constantes cinétiques (entrant en jeu dans les équations) à partir d'observations dans un contexte déterminé. Deux pistes d'amélioration sont envisageables : (i) ajouter un terme de couplage entre les pixels, qui pourrait dépendre du vent par exemple ; (ii) utiliser l'intelligence artificielle (ou le machine learning) pour l'optimisation des constantes cinétiques du modèle.

Le second modèle présenté dans ce manuscrit ne concerne pas un nuage isolé comme précédemment mais s'intéresse à l'organisation des champs de nuages au-dessus de l'océan Indien. S'inspirant du modèle d'Ising en physique statistique, il a été baptisé IOCIM (Indian Ocean Cloud Ising Model). Son principe est le suivant : partant du changement d'état d'une parcelle d'air (par ex. d'un état clair à nuageux), il considère que ce changement d'état est susceptible de modifier l'état (clair \rightarrow nuageux) de l'air environnant. Par le biais de ces interactions, on s'attend à ce qu'un changement d'état local puisse avoir des conséquences sur une région étendue. Dans ce modèle, nous prenons en compte les interactions avec l'océan, qui, rappelons-le, est un réservoir important d'aérosols (naturels), de vapeur d'eau et d'énergie. Les premiers résultats montrent que l'approche originale de ce modèle permet de reproduire un champ de nuages comparable à ce que l'on peut observer par satellite. Ces champs dépendent de la nature et de l'intensité des interactions considérées (entre l'océan et une parcelle d'air et inter-parcelles). Nous précisons que les résultats sont préliminaires en fin de thèse, de sorte que IOCIM a vocation à être complété, amélioré puis comparé à des observations de façon plus quantitative. Une analyse plus détaillée des paramètres thermodynamiques (température, humidité et concentration en CCN) sera réalisée pour essayer de prédire et/ou reproduire l'organisation des champs nuageux en fonction des conditions environnementales.

Un couplage entre nos deux modèles, qui sont alors complémentaires, pourrait en outre être réalisé dans le sens où les caractéristiques des nuages (L_v, L_c, N_a, \dots) de chaque pixel du modèle IOCIM pourraient être déterminées par notre modèle de type proie-prédateur.

Les deux modèles développés au cours de cette thèse pourront être, à l'avenir, alimentés par d'autres données *in-situ* dans l'océan Indien, comme celles du

programme MAP-IO (Marion Dufresne Atmospheric Program - Indian Ocean). Pour ce projet, le Marion Dufresne (bateau de ravitaillement des Terres Australes Françaises, naviguant quatre fois par an dans l'océan Indien) a été instrumenté et utilisé comme laboratoire mobile. La répétition des navigations, sur les mêmes routes maritimes et les mêmes périodes permet d'étudier les variabilités interannuelles atmosphériques au-dessus des océans Indien et Austral, dans les eaux de surface, et à plus long terme de documenter les tendances et prévisions climatiques. Cette plateforme mobile d'observation permet la caractérisation des émissions d'aérosols marins pour la prédiction numérique atmosphérique ou les modèles climatiques, une fois les masses d'air d'origine terrestre (principalement d'Afrique et de Madagascar) aient été isolées. Il s'agit d'étudier le transport de masse d'air et la redistribution des aérosols et des composés chimiques dans la troposphère et la stratosphère ainsi que de suivre les changements atmosphériques globaux, notamment dans la région de l'océan Indien. Cela permettra ainsi de faire progresser notre compréhension des échanges océan-atmosphère, des pollutions régionales et des mécanismes chimiques en permettant d'améliorer et d'adapter les paramétrisations utilisées dans les modèles numériques de prévision météorologique et climatique dans la région occidentale de l'océan Indien.

Les résolutions spatio-temporelles de nos deux modèles (de type proie-prédateur et IOCIM) étant aisément adaptables selon les besoins, les mesures issues d'autres campagnes, dans des régions/conditions météorologiques différentes et pour des périodes de temps variées pourraient également être utilisées. Nous espérons que les approches originales que nous avons formulées et présentées au cours de cette thèse constitueront, en raison des résultats encourageants qu'elles ont donné, les premières pierres de nouvelles directions de recherches. Nous espérons aussi que cette thèse permettra de renforcer l'intérêt scientifique porté sur les régions proustines.

Bibliographie

- AGEE, E.M. (1987). « Mesoscale cellular convection over the oceans ». In : *Dynamics of Atmospheres and Oceans* 10.4, p. 317-341. ISSN : 0377-0265. DOI : [https://doi.org/10.1016/0377-0265\(87\)90023-6](https://doi.org/10.1016/0377-0265(87)90023-6). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0377026587900236>.
- ALBRECHT, B.A (1989). « Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness ». In : *Science* 245.4923, p. 1227-1230.
- ANDREAE, M.O et D ROSENFELD (2008). « Aerosol–cloud–precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols ». eng. In : *Earth-science reviews* 89.1-2, p. 13-41. ISSN : 0012-8252.
- BARAY, J-L. et al. (2013). « Maïdo observatory : a new high-altitude station facility at Reunion Island (21° S, 55° E) for long-term atmospheric remote sensing and in situ measurements ». In : *Atmospheric Measurement Techniques* 6.10, p. 2865-2877. DOI : 10.5194/amt-6-2865-2013.
- BLANCHARD, D C. (1983). « The Production, Distribution, and Bacterial Enrichment of the Sea-Salt Aerosol ». In : *Air-Sea Exchange of Gases and Particles*. Sous la dir. de Peter S. LISS et W. George N. SLINN. Dordrecht : Springer Netherlands, p. 407-454. ISBN : 978-94-009-7169-1. DOI : 10.1007/978-94-009-7169-1_7. URL : https://doi.org/10.1007/978-94-009-7169-1_7.
- BODAS-SALCEDO, A. et al. (2008). « Evaluating cloud systems in the Met Office global forecast model using simulated CloudSat radar reflectivities ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D8. DOI : <https://doi.org/10.1029/2007JD009620>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2007JD009620>.
- BONY, S et A. E KERRY (2001). « A Parameterization of the Cloudiness Associated with Cumulus Convection; Evaluation Using TOGA COARE Data ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 58.21, p. 3158-3183. DOI : 10.1175/1520-0469(2001)058<3158:APOTCA>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/58/21/1520-0469_2001_058_3158_apotca_2.0.co_2.xml.
- BONY, S, H SCHULZ et al. (2020). « Sugar, Gravel, Fish, and Flowers : Dependence of Mesoscale Patterns of Trade-Wind Clouds on Environmental Conditions ».

- In : *Geophysical Research Letters* 47.7. e2019GL085988 10.1029/2019GL085988, e2019GL085988. DOI : <https://doi.org/10.1029/2019GL085988>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2019GL085988>.
- BONY, S., W D. COLLINS et D W. FILLMORE (2000). « Indian Ocean Low Clouds during the Winter Monsoon ». In : *Journal of Climate* 13.12, p. 2028-2043. DOI : 10.1175/1520-0442(2000)013<2028:IOLCDT>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/13/12/1520-0442_2000_013_2028_ioLCDT_2.0.co_2.xml.
- BONY, S., R. COLMAN et al. (2006). « How Well Do We Understand and Evaluate Climate Change Feedback Processes? » In : *Journal of Climate* 19.15, p. 3445-3482. DOI : 10.1175/JCLI3819.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/19/15/jcli3819.1.xml>.
- BOOTH, B. B. B. et al. (2012). « Aerosols implicated as a prime driver of twentieth-century North Atlantic climate variability ». In : *Nature* 484, p. 228-232. DOI : 10.1038/nature10946. URL : <https://doi.org/10.1038/nature10946>.
- BOUCHER, O. et al. (2013). « Clouds and Aerosols. » In : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Sous la dir. de T.F. STOCKER et al. Cambridge, United Kingdom et New York, NY, USA : Cambridge University Press. ISBN : ISBN 978-1-107-66182-0. DOI : 10.1017/CB09781107415324.018. URL : www.climatechange2013.org.
- BOVCHALIUK, V. et al. (2016). « Comparison of aerosol properties retrieved using GARRLiC, LIRIC, and Raman algorithms applied to multi-wavelength lidar and sun/sky-photometer data ». In : *Atmospheric Measurement Techniques* 9.7, p. 3391-3405. DOI : 10.5194/amt-9-3391-2016. URL : <https://amt.copernicus.org/articles/9/3391/2016/>.
- BOX, J. E et al. (2019). « Key indicators of Arctic climate change : 1971–2017 ». In : *Environmental Research Letters* 14.4, p. 045010. DOI : 10.1088/1748-9326/aafc1b. URL : <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aafc1b>.
- CAVALLI, F. et al. (2004). « Advances in characterization of size-resolved organic matter in marine aerosol over the North Atlantic ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 109.D24. DOI : <https://doi.org/10.1029/2004JD005137>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2004JD005137>.
- CESANA, G. et H. CHEPFER (2012). « How well do climate models simulate cloud vertical structure? A comparison between CALIPSO-GOCCP satellite observations and CMIP5 models ». In : *Geophysical Research Letters* 39.20. DOI : <https://doi.org/10.1029/2012GL053153>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2012GL053153>.

- CHEN, G. et al. (2022). « European aerosol phenomenology 8 : Harmonised source apportionment of organic aerosol using 22 Year-long ACSM/AMS datasets ». In : *Environment International* 166, p. 107325. ISSN : 0160-4120. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.envint.2022.107325>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0160412022002525>.
- DAVY, R. et al. (2018). « Climate change impacts on wind energy potential in the European domain with a focus on the Black Sea ». In : *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 81, p. 1652-1659. ISSN : 1364-0321. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.rser.2017.05.253>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1364032117308997>.
- DECOSMO, J. et al. (1996). « Air-sea exchange of water vapor and sensible heat : The Humidity Exchange Over the Sea (HEXOS) results ». In : *Journal of Geophysical Research : Oceans* 101.C5, p. 12001-12016. DOI : <https://doi.org/10.1029/95JC03796>. eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/95JC03796>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/95JC03796>.
- DOUVILLE, H. et al. (2021). « Water Cycle Changes. In Climate Change 2021 : The Physical Science Basis. » In : *Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I.Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (eds.)]*. DOI : 10.1017/9781009157896.010..
- DUFLOT, V. et al. (2019). « Preliminary results from the FARCE 2015 campaign : multidisciplinary study of the forest–gas–aerosol–cloud system on the tropical island of La Réunion ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 19.16, p. 10591-10618. DOI : 10.5194/acp-19-10591-2019.
- DUFRESNE, J-L et S BONY (2008). « An Assessment of the Primary Sources of Spread of Global Warming Estimates from Coupled Atmosphere–Ocean Models ». In : *Journal of Climate* 21.19, p. 5135-5144. DOI : 10.1175/2008JCLI2239.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/21/19/2008jcli2239.1.xml>.
- EINSTEIN, A. (1917). « On the special and general theory of relativity ». In : *CPAE (English translation)* 6, p. 247-420.
- ELEFTHERIADIS, K. et al. (2006). « Size distribution, composition and origin of the submicron aerosol in the marine boundary layer during the eastern Mediterranean “SUB-AERO” experiment ». In : *Atmospheric Environment* 40.32, p. 6245-6260. ISSN : 1352-2310. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2006.03.059>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231006004237>.

- EVAN, A. T. et al. (2009). « The Role of Aerosols in the Evolution of Tropical North Atlantic Ocean Temperature Anomalies ». In : *Science* 324.5928, p. 778-781. DOI : 10.1126/science.1167404. URL : <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.1167404>.
- FITZGERALD, J. W. (1991). « Marine aerosols : A review ». In : *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 25.3, p. 533-545. ISSN : 0960-1686. DOI : [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(91\)90050-H](https://doi.org/10.1016/0960-1686(91)90050-H). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/096016869190050H>.
- FLÄSCHNER, D., T.B. MAURITSEN et Bjorn STEVENS (2016). « Understanding the Intermodel Spread in Global-Mean Hydrological Sensitivity ». In : *Journal of Climate* 29.2, p. 801-817. DOI : 10.1175/JCLI-D-15-0351.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/29/2/jcli-d-15-0351.1.xml>.
- FOLTZ, G. R. et M. J. MCPHADEN (2008). « Trends in Saharan dust and tropical Atlantic climate during 1980–2006 ». In : *Geophysical Research Letters* 35.20. DOI : <https://doi.org/10.1029/2008GL035042>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2008GL035042>.
- FORBES, R et A TOMPKINS (2011). « An improved representation of cloud and precipitation ». In : *ECMWF Newsletter* 129.129, p. 13-18.
- FORBES, RM, AM TOMPKINS et A UNTCH (2012). « A new prognostic bulk microphysics scheme for the ECMWF forecast model ». In : *EGU General Assembly Conference Abstracts*, p. 12155.
- GAFFIOT, F. (1934). « entrée nucleus ». In : *Dictionnaire LATIN-FRANCAIS*. 2. Hachette, p. 1043. URL : http://gerardgreco.free.fr/IMG/pdf/Gaffiot_2016_-_komarov.pdf.
- GLANSDORFF, Paul et Ilya PRIGOGINE (1971). « Thermodynamique chimique ». In : *Structure stabilité et fluctuations*. Masson, Paris.
- GOLAZ, Jean-Christophe, Vincent E. LARSON et William R. COTTON (2002). « A PDF-Based Model for Boundary Layer Clouds. Part II : Model Results ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 59.24, p. 3552-3571. DOI : 10.1175/1520-0469(2002)059<3552:APBMFB>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/59/24/1520-0469_2002_059_3552_apbmf_2.0.co_2.xml.
- GRYTHE, H. et al. (2014). « A review of sea-spray aerosol source functions using a large global set of sea salt aerosol concentration measurements ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.3, p. 1277-1297. DOI : 10.5194/acp-14-1277-2014. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/14/1277/2014/>.
- GUILPART, E et al. (2017). « The isotopic composition of near-surface water vapor at the Maïdo observatory (Reunion Island, southwestern Indian Ocean) documents the controls of the humidity of the subtropical troposphere ».

- In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 122.18, p. 9628-9650. DOI : 10.1002/2017JD026791.
- GUTIÉRREZ, J.M. et al. (2021). In : *Atlas. In Climate Change 2021 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Sous la dir. de V. MASSON-DELMOTTE et al., p. 1927-2058. DOI : 10.1017/9781009157896.021..
- HAMILTON, Douglas S. et al. (2014). « Occurrence of pristine aerosol environments on a polluted planet ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 111.52, p. 18466-18471. DOI : 10.1073/pnas.1415440111. eprint : <https://www.pnas.org/doi/pdf/10.1073/pnas.1415440111>. URL : <https://www.pnas.org/doi/abs/10.1073/pnas.1415440111>.
- HAMILTON, J. F. et al. (2008). « Observations of an atmospheric chemical equator and its implications for the tropical warm pool region ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D20. DOI : <https://doi.org/10.1029/2008JD009940>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2008JD009940>.
- HÄNGGI, Peter, Peter TALKNER et Michal BORKOVEC (avr. 1990). « Reaction-rate theory : fifty years after Kramers ». In : *Rev. Mod. Phys.* 62 (2), p. 251-341. DOI : 10.1103/RevModPhys.62.251. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/RevModPhys.62.251>.
- HELD, I. M. (2005). « The Gap between Simulation and Understanding in Climate Modeling ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 86.11, p. 1609-1614. ISSN : 00030007, 15200477. URL : <http://www.jstor.org/stable/26221382> (visité le 31/05/2022).
- HELD, I. M. et B. J. SODEN (2006). « Robust Responses of the Hydrological Cycle to Global Warming ». In : *Journal of Climate* 19.21, p. 5686-5699. DOI : 10.1175/JCLI3990.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/19/21/jcli3990.1.xml>.
- HOROWITZ, H. M. et al. (2017). « Evaluation of climate model aerosol seasonal and spatial variability over Africa using AERONET ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 17.22, p. 13999-14023. DOI : 10.5194/acp-17-13999-2017. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/17/13999/2017/>.
- HOWARD, L. (1894). *On the modifications of clouds*. 3. Asher.
- HUDSON, J.G. et S.S. YUM (2002). « Cloud condensation nuclei spectra and polluted and clean clouds over the Indian Ocean ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 107.D19, INX2 21-1-INX2 21-12. DOI : <https://doi.org/10.1029/2001JD000829>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001JD000829>.

- « IFS Documentation CY47R1 - Part IV : Physical Processes » (2020). In : *IFS Documentation CY47R1*. IFS Documentation 4. ECMWF. DOI : 10.21957/cpmkqvha. URL : <https://www.ecmwf.int/node/19748>.
- ISING, E. (1925). « Beitrag zur Theorie des Ferromagnetismus ». In : *Z. Phys.* 31 (1), p. 253-258.
- JACOB, D. (2001). « The role of water vapour in the atmosphere. A short overview from a climate modeller's point of view ». In : *Physics and Chemistry of the Earth, Part A : Solid Earth and Geodesy* 26.6. Proceedings of the First COST Action 716 Workshop Towards Operational GPS Meteorology and the Second Network Workshop of the International GPS Service (IGS), p. 523-527. ISSN : 1464-1895. DOI : [https://doi.org/10.1016/S1464-1895\(01\)00094-1](https://doi.org/10.1016/S1464-1895(01)00094-1). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1464189501000941>.
- JAEGLÉ, L. et al. (2011). « Global distribution of sea salt aerosols : new constraints from in situ and remote sensing observations ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.7, p. 3137-3157. DOI : 10.5194/acp-11-3137-2011. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/11/3137/2011/>.
- JOHANSEN, A. M., R. L. SIEFERT et M. R. HOFFMANN (1999). « Chemical characterization of ambient aerosol collected during the southwest monsoon and intermonsoon seasons over the Arabian Sea : Anions and cations ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 104.D21, p. 26325-26347. DOI : <https://doi.org/10.1029/1999JD900405>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999JD900405>.
- KOREN, I., G. DAGAN et O. ALTARATZ (2014). « From aerosol-limited to invigoration of warm convective clouds ». In : *Science* 344.6188, p. 1143-1146. ISSN : 0036-8075. DOI : 10.1126/science.1252595.
- KUMAR, A., A. K. SUDHEER et M. M. SARIN (2008). « Chemical characteristics of aerosols in MABL of Bay of Bengal and Arabian Sea during spring intermonsoon : A comparative study ». In : *Journal of Earth System Science* 117, p. 325-332. DOI : 10.1007/s12040-008-0035-9. URL : <https://doi.org/10.1007/s12040-008-0035-9>.
- LAJ, P. et al. (2020). « A global analysis of climate-relevant aerosol properties retrieved from the network of Global Atmosphere Watch (GAW) near-surface observatories ». In : *Atmospheric Measurement Techniques* 13.8, p. 4353-4392. DOI : 10.5194/amt-13-4353-2020. URL : <https://amt.copernicus.org/articles/13/4353/2020/>.
- LAMARQUE, J.-F. et al. (2013). « The Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) : overview and description of models, simulations and climate diagnostics ». In : *Geoscientific Model Development*

- 6.1, p. 179-206. DOI : 10.5194/gmd-6-179-2013. URL : <https://gmd.copernicus.org/articles/6/179/2013/>.
- LARSON, V. E. et al. (2001). « Small-Scale and Mesoscale Variability of Scalars in Cloudy Boundary Layers : One-Dimensional Probability Density Functions ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 58.14, p. 1978-1994. DOI : 10.1175/1520-0469(2001)058<1978:SSAMVO>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/58/14/1520-0469_2001_058_1978_ssamvo_2.0.co_2.xml.
- LAWRENCE, M. G. et J. LELIEVELD (2010). « Atmospheric pollutant outflow from southern Asia : a review ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 10.22, p. 11017-11096. DOI : 10.5194/acp-10-11017-2010. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/10/11017/2010/>.
- LAWRENCE, M. G., P. J. RASCH et al. (2003). « Global chemical weather forecasts for field campaign planning : predictions and observations of large-scale features during MINOS, CONTRACE, and INDOEX ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 3.1, p. 267-289. DOI : 10.5194/acp-3-267-2003. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/3/267/2003/>.
- LENZ, W. (1920). « Beiträge zum Verständnis der magnetischen Eigenschaften in festen Körpern ». In : *Physikalische Zeitschrift* 21, p. 613-615.
- LESOUËF, D et al. (2013). « Low Tropospheric Layers Over Reunion Island in Lidar-Derived Observations and a High-Resolution Model ». eng. In : *Boundary-layer meteorology* 149.3, p. 425-453. ISSN : 0006-8314. DOI : 10.1007/s10546-013-9851-9.
- LEWIS, E et E SCHWARTZ (2004). *Sea salt aerosols production : mechanisms, methods, measurements and models*. Geophysical monograph ; 152, p. 413.
- LOHMANN, U. et J. FEICHTER (2005). « Global indirect aerosol effects : a review ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 5.3, p. 715-737. DOI : 10.5194/acp-5-715-2005. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/5/715/2005/>.
- LONG, A.B. (1974). « Solutions to the Droplet Collection Equation for Polynomial Kernels ». In : *Journal of Atmospheric Sciences* 31.4, p. 1040-1052. DOI : 10.1175/1520-0469(1974)031<1040:STTDCE>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/31/4/1520-0469_1974_031_1040_sttdce_2_0_co_2.xml.
- LUCAS-PICHER, Philippe et al. (2021). « Convection-permitting modeling with regional climate models : Latest developments and next steps ». In : *WIREs Climate Change* 12.6, e731. DOI : <https://doi.org/10.1002/wcc.731>. eprint : <https://wires.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/wcc.731>. URL : <https://wires.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/wcc.731>.

- MADRY, W.L., O.B. TOON et C. D. O'DOWD (2011). « Modeled optical thickness of sea-salt aerosol ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 116.D8. DOI : <https://doi.org/10.1029/2010JD014691>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2010JD014691>.
- MALKUS, J. S. et H. RIEHL (1964). « Cloud structure and distributions over the tropical Pacific Ocean1 ». In : *Tellus* 16.3, p. 275-287. DOI : <https://doi.org/10.1111/j.2153-3490.1964.tb00167.x>. URL : <https://onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1111/j.2153-3490.1964.tb00167.x>.
- MALLET, P-E. et al. (2018). « Marine aerosol distribution and variability over the pristine Southern Indian Ocean ». In : *Atmospheric Environment* 182, p. 17-30. ISSN : 1352-2310. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.03.016>.
- MARTÍNEZ AVELLANEDA, N. et al. (2010). « Response of the eastern subtropical Atlantic SST to Saharan dust : A modeling and observational study ». In : *Journal of Geophysical Research : Oceans* 115.C8. DOI : <https://doi.org/10.1029/2009JC005692>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2009JC005692>.
- MASCAUT, PUJOL, BRIOUDE et al. (2023). « A competition–species model for water vapour-aerosol-cloud-rain interactions ». In : *Atmospheric Research* 284, p. 106588. ISSN : 0169-8095. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2022.106588>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809522005749>.
- MASCAUT, PUJOL, VERREYKEN et al. (2022). « Aerosol characterization in an oceanic context around Reunion Island (AEROMARINE field campaign) ». In : *Atmospheric Environment* 268, p. 118770. ISSN : 1352-2310. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2021.118770>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231021005926>.
- MASSIE, S. T. et al. (2010). « HIRDLS and CALIPSO observations of tropical cirrus ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 115.D4. DOI : <https://doi.org/10.1029/2009JD012100>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2009JD012100>.
- MCCOMISKEY, A. et G. FEINGOLD (2012). « The scale problem in quantifying aerosol indirect effects ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 12.2, p. 1031-1049. DOI : 10.5194/acp-12-1031-2012. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/12/1031/2012/>.
- 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 ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D14. DOI : <https://doi.org/10.1029/2007JD009606>.

- URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2007JD009606>.
- METROPOLIS, N. et al. (1953). « Equation of State Calculations by Fast Computing Machines ». In : *The Journal of Chemical Physics* 21.6, p. 1087-1092. DOI : 10.1063/1.1699114. URL : <https://doi.org/10.1063/1.1699114>.
- MONAHAN, E. C., D. E. SPIEL et K. L. DAVIDSON (1986). « A Model of Marine Aerosol Generation Via Whitecaps and Wave Disruption ». In : *Oceanic Whi-tecaps : And Their Role in Air-Sea Exchange Processes*. Sous la dir. d'Edward C. MONAHAN et Gearóid Mac NIOCAILL. Dordrecht : Springer Netherlands, p. 167-174. ISBN : 978-94-009-4668-2. DOI : 10.1007/978-94-009-4668-2_16. URL : https://doi.org/10.1007/978-94-009-4668-2_16.
- MONROY, Diana L. et Gerardo G. NAUMIS (2021). « Description of mesoscale pattern formation in shallow convective cloud fields by using time-dependent Ginzburg-Landau and Swift-Hohenberg stochastic equations ». In : *Phys. Rev. E* 103 (3), p. 032312. DOI : 10.1103/PhysRevE.103.032312. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.103.032312>.
- MOORTHY, K. K. et al. (1999). « Optical properties of atmospheric aerosols over the Arabian Sea and Indian Ocean : North-south contrast across the ITCZ ». In : *Current Science* 76.7, p. 956-960. ISSN : 00113891. URL : <http://www.jstor.org/stable/24101372> (visité le 16/06/2022).
- MORTIER, A. et al. (2013). « Detection and characterization of volcanic ash plumes over Lille during the Eyjafjallajökull eruption ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.7, p. 3705-3720. DOI : 10.5194/acp-13-3705-2013. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/13/3705/2013/>.
- NAM, C. C. W. et J. QUAAS (2012). « Evaluation of Clouds and Precipitation in the ECHAM5 General Circulation Model Using CALIPSO and CloudSat Satellite Data ». In : *Journal of Climate* 25.14, p. 4975-4992. DOI : 10.1175/JCLI-D-11-00347.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/25/14/jcli-d-11-00347.1.xml>.
- NORMAN, M., C. LECK et H. RODHE (2003). « Differences across the ITCZ in the chemical characteristics of the Indian Ocean MBL aerosol during INDOEX ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 3.3, p. 563-579. DOI : 10.5194/acp-3-563-2003. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/3/563/2003/>.
- NUIJENS, L. et A. P. SIEBESMA (2019). « Boundary Layer Clouds and Convection over Subtropical Oceans in our Current and in a Warmer Climate ». In : *Current Climate Change Reports* 5, p. 80-94. DOI : 10.1007/s40641-019-00126-x. URL : <https://doi.org/10.1007/s40641-019-00126-x>.
- ORLANSKI, I. (1975). « A Rational Subdivision of Scales for Atmospheric Processes ». In : *Bulletin of the American Meteorological Society* 56.5, p. 527-530.

- ISSN : 00030007, 15200477. URL : <http://www.jstor.org/stable/26216020> (visité le 24/06/2022).
- OVADNEVAITE, J. et al. (2014). « A sea spray aerosol flux parameterization encapsulating wave state ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.4, p. 1837-1852. DOI : 10.5194/acp-14-1837-2014. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/14/1837/2014/>.
- PAN, Z et al. (2022). « Coarse sea spray inhibits lightning ». In : *Nature Communications* 13. DOI : 10.1038/s41467-022-31714-5. URL : <https://doi.org/10.1038/s41467-022-31714-5>.
- PANT, V., C.G. DESHPANDE et A.K. KAMRA (2009). « The concentration and number size distribution measurements of the Marine Boundary Layer aerosols over the Indian Ocean ». In : *Atmospheric Research* 92.4, p. 381-393. ISSN : 0169-8095. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2008.12.004>.
- PARTANEN, A.-I. et al. (2014). « Global modelling of direct and indirect effects of sea spray aerosol using a source function encapsulating wave state ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 14.21, p. 11731-11752. DOI : 10.5194/acp-14-11731-2014. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/14/11731/2014/>.
- PETRENKO, M. et C. ICHOKU (2013). « Coherent uncertainty analysis of aerosol measurements from multiple satellite sensors ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.14, p. 6777-6805. DOI : 10.5194/acp-13-6777-2013. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/13/6777/2013/>.
- PIAZZOLA, J. et al. (2012). « Physicochemical characteristics of aerosols measured in the spring time in the Mediterranean coastal zone ». In : *Atmospheric Environment* 54, p. 545-556. ISSN : 1352-2310. DOI : <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.02.057>. URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1352231012001720>.
- PINCUS, R et M. B BAKER (1994). « Effect of precipitation on the albedo susceptibility of clouds in the marine boundary layer ». In : *Nature* 372.6503, p. 250-252.
- PRICE, J D. (2001). « A study of probability distributions of boundary-layer humidity and associated errors in parametrized cloud-fraction ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 127.573, p. 739-758. DOI : <https://doi.org/10.1002/qj.49712757302>. URL : <https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.49712757302>.
- PRIGOGINE, Ilya (1996). « Introduction à la thermodynamique des phénomènes irréversibles ». In : *Introduction à la thermodynamique des phénomènes irréversibles*. Jacques Gabay.
- PRUPPACHER, H.R. et J.D. KLETT (2010). « Microstructure of Atmospheric Clouds and Precipitation ». In : *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Springer

- Netherlands, p. 10-73. DOI : 10.1007/978-0-306-48100-0_2. URL : https://doi.org/10.1007%5C%2F978-0-306-48100-0_2.
- PRZYBYŁAK, R. et P. WYSZYŃSKI (2020). « Air temperature changes in the Arctic in the period 1951–2015 in the light of observational and reanalysis data ». In : *Theoretical and Applied Climatology* 139, p. 75-94. DOI : 10.1007/s00704-019-02952-3. URL : <https://doi.org/10.1007/s00704-019-02952-3>.
- PUJOL, O. et A. JENSEN (2019). « Cloud–rain predator–prey interactions : Analyzing some properties of the Koren–Feingold model and introduction of a new species-competition bulk system with a Hopf bifurcation ». eng. In : *Physica. D* 399, p. 86-94. ISSN : 0167-2789.
- QUINN, P K. et al. (2015). « Chemistry and Related Properties of Freshly Emitted Sea Spray Aerosol ». In : *Chemical Reviews* 115.10. PMID : 25844487, p. 4383-4399. DOI : 10.1021/cr500713g. URL : <https://doi.org/10.1021/cr500713g>.
- RAJEEV, K., V. RAMANATHAN et J. MEYWERK (2000). « Regional aerosol distribution and its long-range transport over the Indian Ocean ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 105.D2, p. 2029-2043. DOI : <https://doi.org/10.1029/1999JD900414>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/1999JD900414>.
- RAMANATHAN, V. et al. (2001). « Aerosols, Climate, and the Hydrological Cycle ». In : *Science* 294.5549, p. 2119-2124. DOI : 10.1126/science.1064034. URL : <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.1064034>.
- RANDALL, D A et al. (2007). « Climate models and their evaluation ». In : *Climate change 2007 : The physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the IPCC (FAR)*. Cambridge University Press, p. 589-662.
- RASCH, P. J., W. D. COLLINS et B. E. EATON (2001). « Understanding the Indian Ocean Experiment (INDOEX) aerosol distributions with an aerosol assimilation ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 106.D7, p. 7337-7355. DOI : <https://doi.org/10.1029/2000JD900508>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2000JD900508>.
- REDDY, MS. et al. (2005). « Aerosol optical depths and direct radiative perturbations by species and source type ». In : *Geophysical Research Letters* 32.12. DOI : <https://doi.org/10.1029/2004GL021743>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2004GL021743>.
- REDDY, S. et al. (2004). « General circulation model estimates of aerosol transport and radiative forcing during the Indian Ocean Experiment ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 109.D16. DOI : <https://doi.org/10.1029/2004JD004557>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2004JD004557>.

- REINARES MARTÍNEZ, I. et al. (2021). « Unprecedented Observations of a Nascent In Situ Cirrus in the Tropical Tropopause Layer ». In : *Geophysical Research Letters* 48.4. e2020GL090936 2020GL090936, e2020GL090936. DOI : <https://doi.org/10.1029/2020GL090936>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2020GL090936>.
- ROEHRIG, R. et al. (2013). « The Present and Future of the West African Monsoon : A Process-Oriented Assessment of CMIP5 Simulations along the AMMA Transect ». In : *Journal of Climate* 26.17, p. 6471-6505. DOI : 10.1175/JCLI-D-12-00505.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/26/17/jcli-d-12-00505.1.xml>.
- ROSENFELD, D. et al. (2002). « The role of sea spray in cleansing air pollution over ocean via cloud processes ». In : *science* 297.5587, p. 1667-1670.
- SALLEBY, Stephen M. et Susan C. van den HEEVER (2013). « Developments in the CSU-RAMS Aerosol Model : Emissions, Nucleation, Regeneration, Deposition, and Radiation ». In : *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 52.12, p. 2601-2622. DOI : 10.1175/JAMC-D-12-0312.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/apme/52/12/jamc-d-12-0312.1.xml>.
- SAMSET, B. H. et al. (2016). « Fast and slow precipitation responses to individual climate forcings : A PDRMIP multimodel study ». In : *Geophysical Research Letters* 43.6, p. 2782-2791. DOI : <https://doi.org/10.1002/2016GL068064>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2016GL068064>.
- SAUVAGEOT, H (1992). *Radar Meteorology*, p. 366.
- SAUVAGEOT, H et J OMAR (1987). « Radar Reflectivity of Cumulus Clouds ». In : *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 4.2, p. 264-272. DOI : 10.1175/1520-0426(1987)004<0264:RROCC>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atot/4/2/1520-0426_1987_004_0264_rrocc_2_0_co_2.xml.
- SCHUSTER, G.L., O. DUBOVIK et B.N. HOLBEN (2006). « Angstrom exponent and bimodal aerosol size distributions ». eng. In : *Journal of Geophysical Research - Atmospheres* 111.D7, D07207-n/a. ISSN : 0148-0227.
- SCHWIER, A. et al. (2017). « Primary marine aerosol physical flux and chemical composition during a nutrient enrichment experiment in mesocosms in the Mediterranean Sea ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 17.23, p. 14645-14660. DOI : 10.5194/acp-17-14645-2017.
- SEIFERT, A. et K.D BEHENG (2001). « A double-moment parameterization for simulating autoconversion, accretion and selfcollection ». In : *Atmospheric Research* 59-60. 13th International Conference on Clouds and Precipitation, p. 265-281. ISSN : 0169-8095. DOI : <https://doi.org/10.1016/S0169->

- 8095(01)00126-0. URL : <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169809501001260>.
- SEINFELD, JH. et al. (2016). « Improving our fundamental understanding of the role of aerosol−cloud interactions in the climate system ». In : *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113.21, p. 5781-5790. DOI : 10.1073/pnas.1514043113. URL : <https://www.pnas.org/doi/abs/10.1073/pnas.1514043113>.
- SEINFELD et PANDIS (1998). *Atmospheric Chemistry and Physics : From Air Pollution to Climate Change*, p. 1326.
- SELLEGRI, K. et al. (2006). « Surfactants and submicron sea spray generation ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 111.D22. DOI : <https://doi.org/10.1029/2005JD006658>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2005JD006658>.
- SÈZE, G. et H. PAWLOWSKA (2001). « Cloud cover analysis with METEOSAT-5 during INDOEX ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 106.D22, p. 28415-28426. DOI : <https://doi.org/10.1029/2001JD900097>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2001JD900097>.
- SHARQAWY, Mostafa H., John H. Lienhard V et Syed M. ZUBAIR (2010). « Thermo-physical properties of seawater : a review of existing correlations and data ». In : *Desalination and Water Treatment* 16.1-3, p. 354-380. DOI : 10.5004/dwt.2010.1079. URL : <https://doi.org/10.5004/dwt.2010.1079>.
- SLINGO, Julia et al. (2022). « Ambitious partnership needed for reliable climate prediction ». In : *Nature Climate Change* 12.6, p. 499-503. DOI : 10.1038/s41558-022-01384-8. URL : <https://doi.org/10.1038/s41558-022-01384-8>.
- SOFIEV, M. et al. (2011). « A regional-to-global model of emission and transport of sea salt particles in the atmosphere ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 116.D21. DOI : <https://doi.org/10.1029/2010JD014713>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2010JD014713>.
- SPADA, M. et al. (2013). « Modeling and evaluation of the global sea-salt aerosol distribution : sensitivity to size-resolved and sea-surface temperature dependent emission schemes ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 13.23, p. 11735-11755. DOI : 10.5194/acp-13-11735-2013. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/13/11735/2013/>.
- SPORTISSE, Bruno (2008). *Pollution atmosphérique. Des processus à la modélisation*. Ingénierie et développement durable. Springer-Verlag France, p. 350. URL : <https://hal.inria.fr/inria-00581172>.

- STEVENS, B. et al. (2020). « Sugar, gravel, fish and flowers : Mesoscale cloud patterns in the trade winds ». In : *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 146.726, p. 141-152. DOI : <https://doi.org/10.1002/qj.3662>. URL : <https://rmets.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/qj.3662>.
- STURGES, W. T. et G. E. SHAW (1993). « Halogens in aerosols in Central Alaska ». In : *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 27.17. Arctic air, snow and ice chemistry, p. 2969-2977. ISSN : 0960-1686. DOI : [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(93\)90329-W](https://doi.org/10.1016/0960-1686(93)90329-W). URL : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/096016869390329W>.
- TAO, Wei-Kuo et al. (2012). « Impact of aerosols on convective clouds and precipitation ». In : *Reviews of Geophysics* 50.2. DOI : <https://doi.org/10.1029/2011RG000369>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2011RG000369>.
- TOMPKINS, A. M. et J. BERNER (2008). « A stochastic convective approach to account for model uncertainty due to unresolved humidity variability ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D18. DOI : <https://doi.org/10.1029/2007JD009284>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2007JD009284>.
- TOMPKINS, A.M (2002). « A Prognostic Parameterization for the Subgrid-Scale Variability of Water Vapor and Clouds in Large-Scale Models and Its Use to Diagnose Cloud Cover ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 59.12, p. 1917-1942. DOI : 10.1175/1520-0469(2002)059<1917:APPFTS>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/59/12/1520-0469_2002_059_1917_appfts_2.0.co_2.xml.
- TRENBERTH, K. E. et L. SMITH (2005). « The Mass of the Atmosphere : A Constraint on Global Analyses ». In : *Journal of Climate* 18.6, p. 864-875. DOI : 10.1175/JCLI-3299.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/clim/18/6/jcli-3299.1.xml>.
- TWOMEY, S. (1974). « Pollution and the planetary albedo ». In : *Atmospheric Environment (1967)* 8.12, p. 1251-1256. ISSN : 0004-6981. DOI : [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(74\)90004-3](https://doi.org/10.1016/0004-6981(74)90004-3).
- (1991). « Aerosols, clouds and radiation ». In : *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 25.11. Symposium on Global Climatic Effects of Aerosols, p. 2435-2442. ISSN : 0960-1686. DOI : [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(91\)90159-5](https://doi.org/10.1016/0960-1686(91)90159-5).
- WALL, C., E. ZIPSER et C. LIU (2014). « An Investigation of the Aerosol Indirect Effect on Convective Intensity Using Satellite Observations ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 71.1, p. 430-447. DOI : 10.1175/JAS-D-13-0158.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/71/1/jas-d-13-0158.1.xml>.

- WARREN, S G et al. (déc. 1988). « Global distribution of total cloud cover and cloud type amounts over the ocean ». In : DOI : 10 . 2172 / 5415329. URL : <https://www.osti.gov/biblio/5415329>.
- WELTON, E. J. et al. (2002). « Measurements of aerosol vertical profiles and optical properties during INDOEX 1999 using micropulse lidars ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 107.D19, INX2 18-1-INX2 18-20. DOI : <https://doi.org/10.1029/2000JD000038>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2000JD000038>.
- WETTLAUFER, J. S. (2016). « Editorial : Climate Science : An Invitation for Physicists ». In : *Phys. Rev. Lett.* 116 (15), p. 150002. DOI : 10.1103/PhysRevLett.116.150002. URL : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.116.150002>.
- WINTER, B. et P. CHÝLEK (1997). « Contribution of sea salt aerosol to the planetary clear-sky albedo ». In : *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology* 49.1, p. 72-79. DOI : 10.3402/tellusb.v49i1.15951. URL : <https://doi.org/10.3402/tellusb.v49i1.15951>.
- WITEK, M. L., D. J. DINER et M. J. GARAY (2016). « Satellite assessment of sea spray aerosol productivity : Southern Ocean case study ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 121.2, p. 872-894. DOI : <https://doi.org/10.1002/2015JD023726>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1002/2015JD023726>.
- WOOD, R. (2012). « Stratocumulus Clouds ». In : *Monthly Weather Review* 140.8, p. 2373-2423. DOI : 10.1175/MWR-D-11-00121.1. URL : <https://journals.ametsoc.org/view/journals/mwre/140/8/mwr-d-11-00121.1.xml>.
- WOOD, R. et P. R. FIELD (2000). « Relationships between Total Water, Condensed Water, and Cloud Fraction in Stratiform Clouds Examined Using Aircraft Data ». In : *Journal of the Atmospheric Sciences* 57.12, p. 1888-1905. DOI : 10.1175/1520-0469(2000)057<1888:RBTWCW>2.0.CO;2. URL : https://journals.ametsoc.org/view/journals/atsc/57/12/1520-0469_2000_057_1888_rbtwcw_2.0.co_2.xml.
- XU, Wei et al. (2022). « Sea spray as an obscured source for marine cloud nuclei ». In : *Nature Geoscience* 15.4, p. 282-286. ISSN : 1752-0908. DOI : 10.1038/s41561-022-00917-2. URL : <https://doi.org/10.1038/s41561-022-00917-2>.
- YAU, M. K. et R R. ROGERS (1996). *A short course in cloud physics*. Elsevier.
- YUE, X. et al. (2011). « Role of sea surface temperature responses in simulation of the climatic effect of mineral dust aerosol ». In : *Atmospheric Chemistry and Physics* 11.12, p. 6049-6062. DOI : 10.5194/acp-11-6049-2011. URL : <https://acp.copernicus.org/articles/11/6049/2011/>.

- ZAKEY, A. S., F. GIORGI et X. BI (2008). « Modeling of sea salt in a regional climate model : Fluxes and radiative forcing ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 113.D14. DOI : <https://doi.org/10.1029/2007JD009209>. URL : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/abs/10.1029/2007JD009209>.
- ZHANG, MH et al. (2005). « Comparing clouds and their seasonal variations in 10 atmospheric general circulation models with satellite measurements ». In : *Journal of Geophysical Research : Atmospheres* 110.D15.

Annexes

Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses ERA5 au-dessus de l’océan Indien (Chap. 5)

Les figures qui suivent représentent les contenus en eau des nuages simulés par notre modèle de type proie-prédateur (panel du haut) et simulés par ERA5 (panel du bas) au-dessus de l’océan Indien, autour de l’île de La Réunion, entre le 9 et le 15 février 2019. Chaque grille de chaque figure correspond à une heure de la journée, c’est-à-dire que les résultats sont représentés de 00:00 à 23:00 UTC pour chaque jour de la simulation.

Pour la première journée de simulation (le 9 février, Fig. A.1), la région a une couverture nuageuse importante (d’après les deux modèles). Les réanalyses ERA5 et notre modèle montrent des résultats similaires, bien que notre modèle simule des contenus en eau des nuages (L_c) plus étendus spatialement entre 6:00 et 14:00 UTC. Les deux jours suivants (les 10 et 11 février, Figs. A.2 et A.3), il y a peu de nuages au-dessus de la zone d’étude d’après les deux modèles. Cependant, notre système d’équations a tendance à surestimer légèrement les L_c par rapport aux réanalyses ERA5 (notamment autour de l’île de La Réunion). À l’inverse, pour les 12 et 13 février (Figs. A.4 et A.5), ERA5 simule des L_c plus étendus que

notre modèle. Enfin, pour les 48 dernières heures de cette simulation (Figs. A.6 et A.7), les réanalyses ERA5 et notre système d'équations présentent des résultats très similaires (organisation, ordres de grandeur, etc).

En résumé, nous constatons que les contenus en eau des nuages simulés par nos équations au-dessus de cette région sont globalement en accord avec les réanalyses ERA5, bien que, ponctuellement, ils ne sont pas identiques. Globalement, les apparitions/disparitions des nuages sont similaires, de même que l'organisation spatiale et l'évolution temporelle des nuages simulés. Les contenus en eau des nuages obtenus par nos trois équations sont, de plus, du même ordre de grandeur que ceux d'ERA5 (entre 0 et $0,2 \text{ gm}^{-3}$).

ANNEXE A. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses

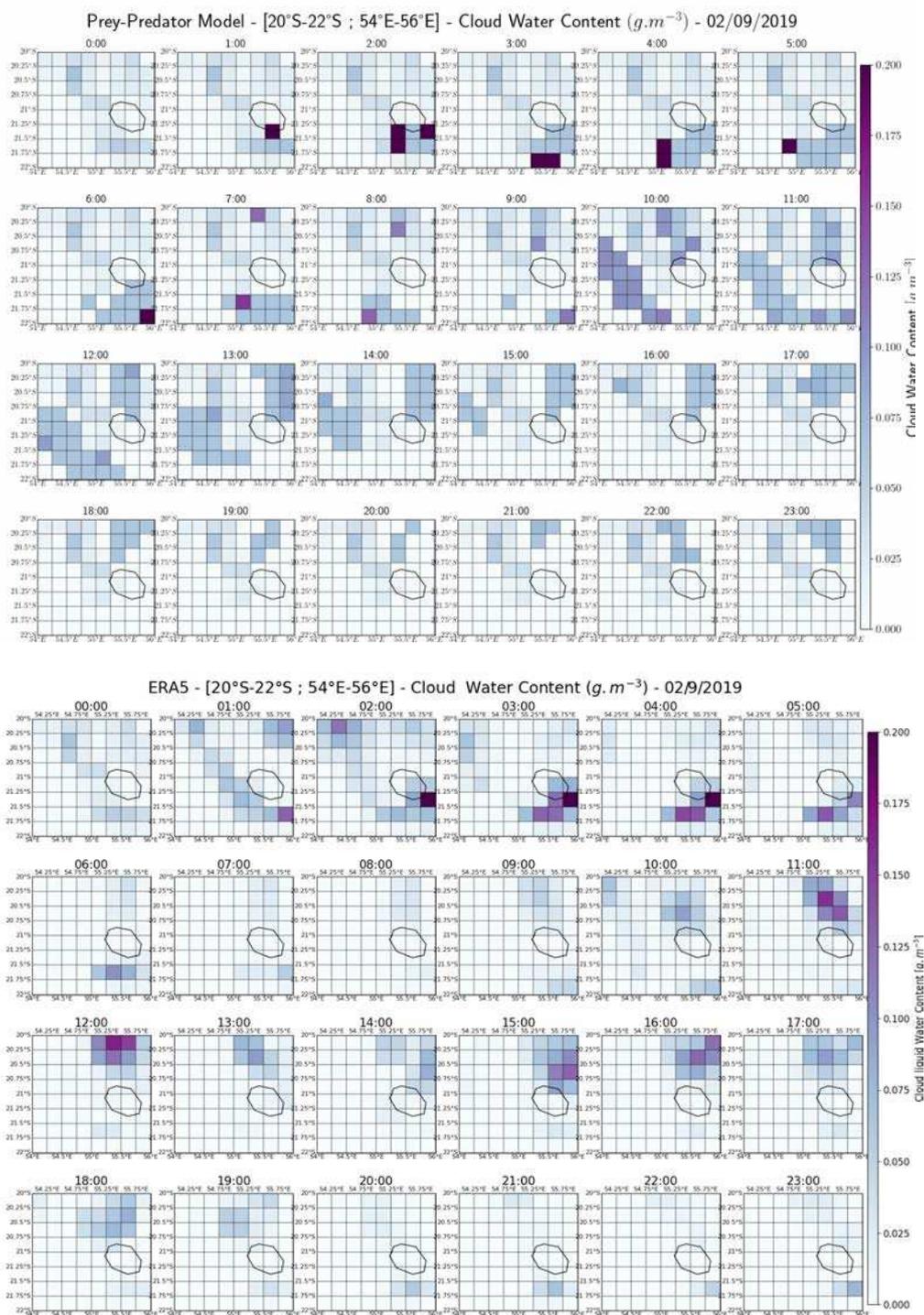


FIGURE A.1 – Le 9 février 2019 : contenus en eau des nuages (L_c) issus de notre modèle (panel du haut) et des réanalyses ERA5 (panel du bas).

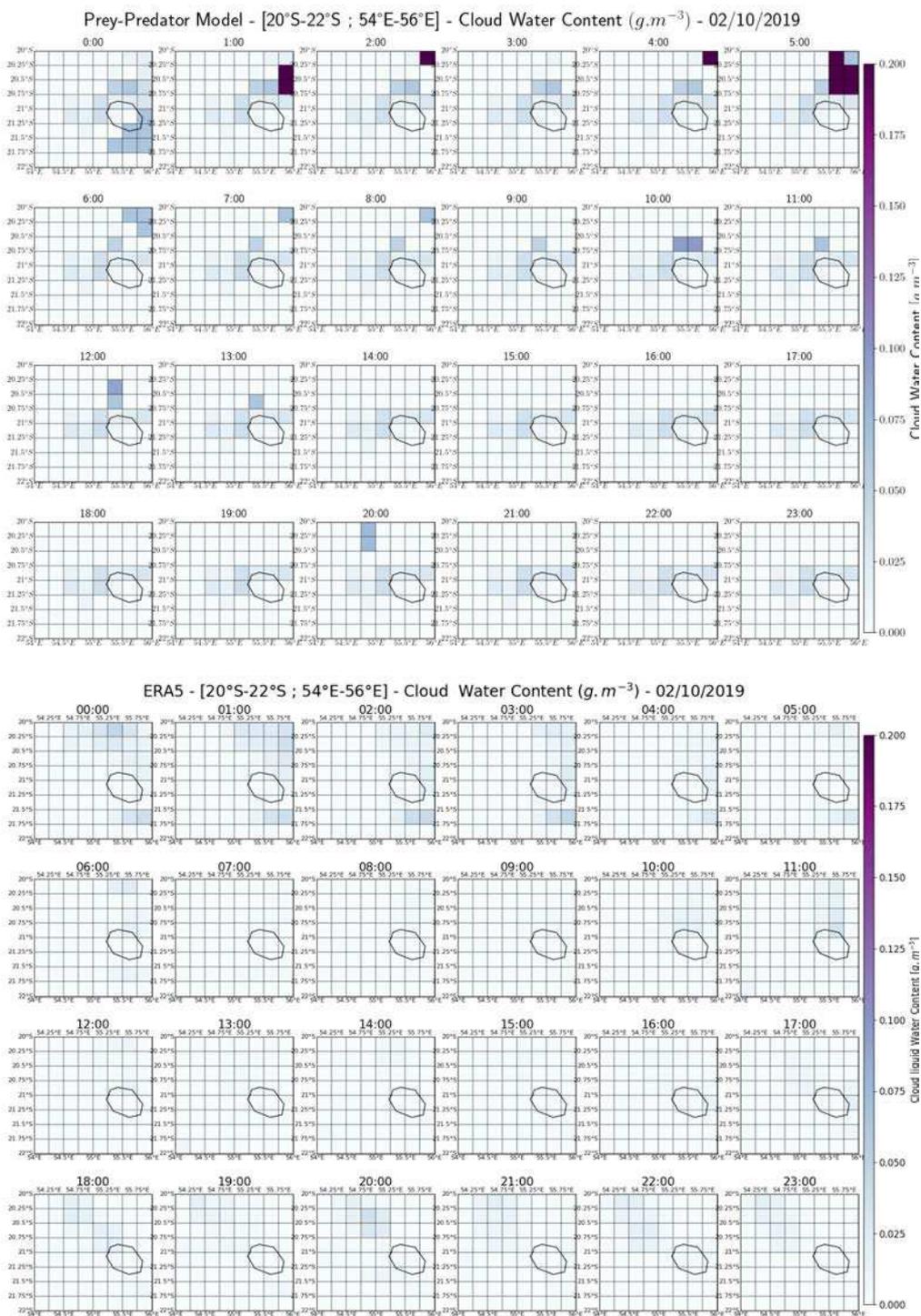


FIGURE A.2 – Identique à la Fig.A.1, pour le 10 février 2019.

ANNEXE A. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses

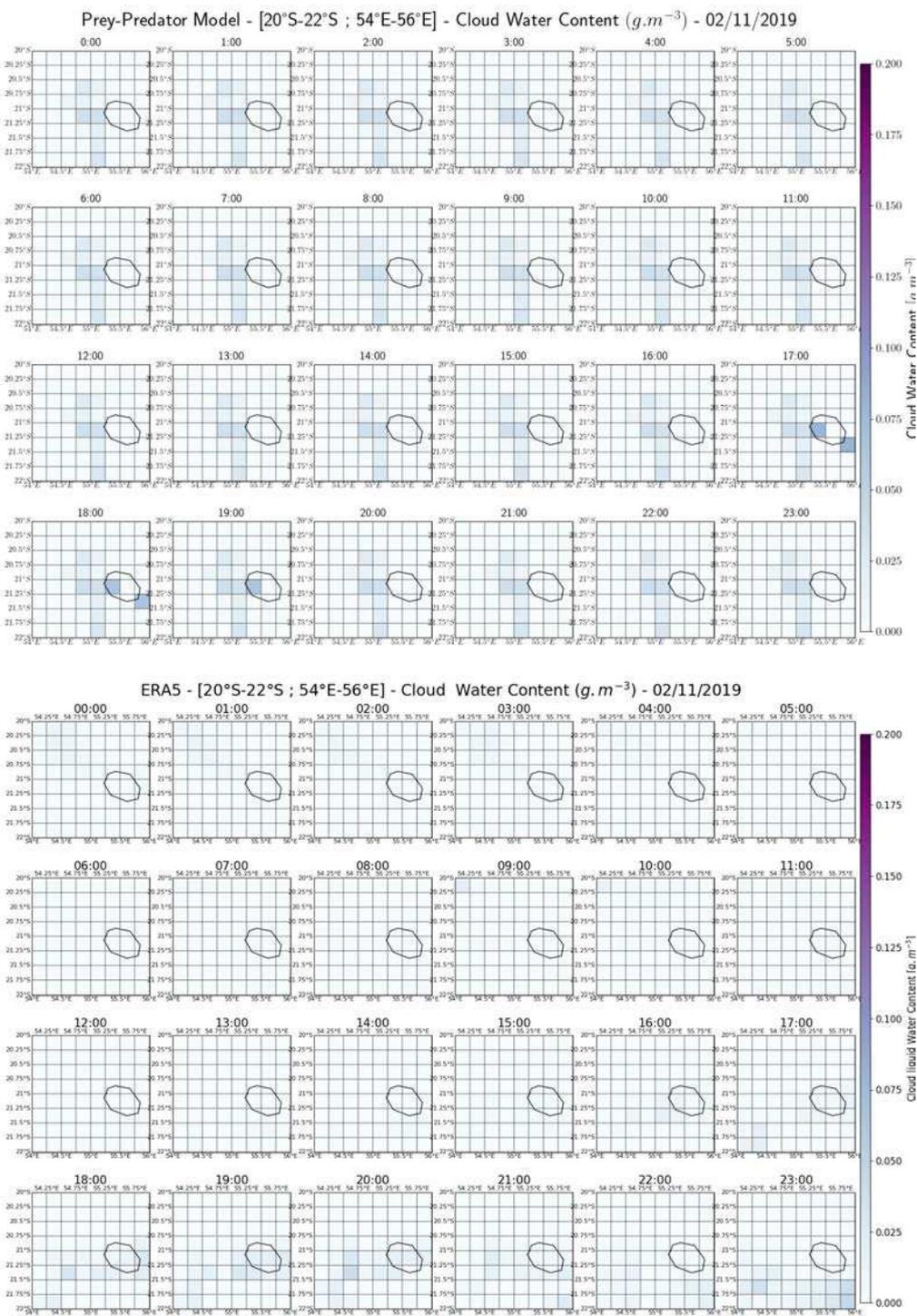


FIGURE A.3 – Identique à la Fig.A.1, pour le 11 février 2019

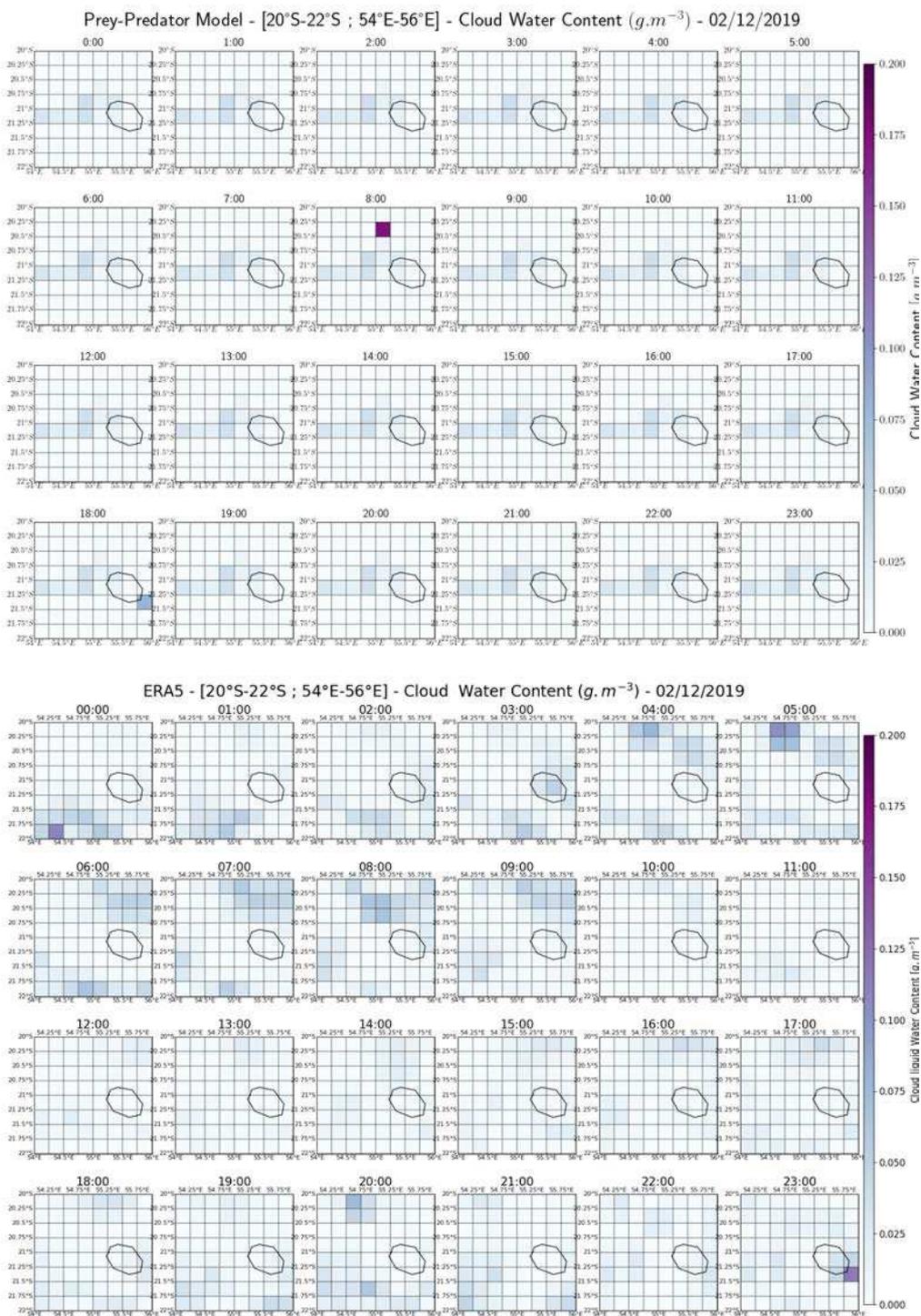


FIGURE A.4 – Identique à la Fig.A.1, pour le 12 février 2019

ANNEXE A. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses

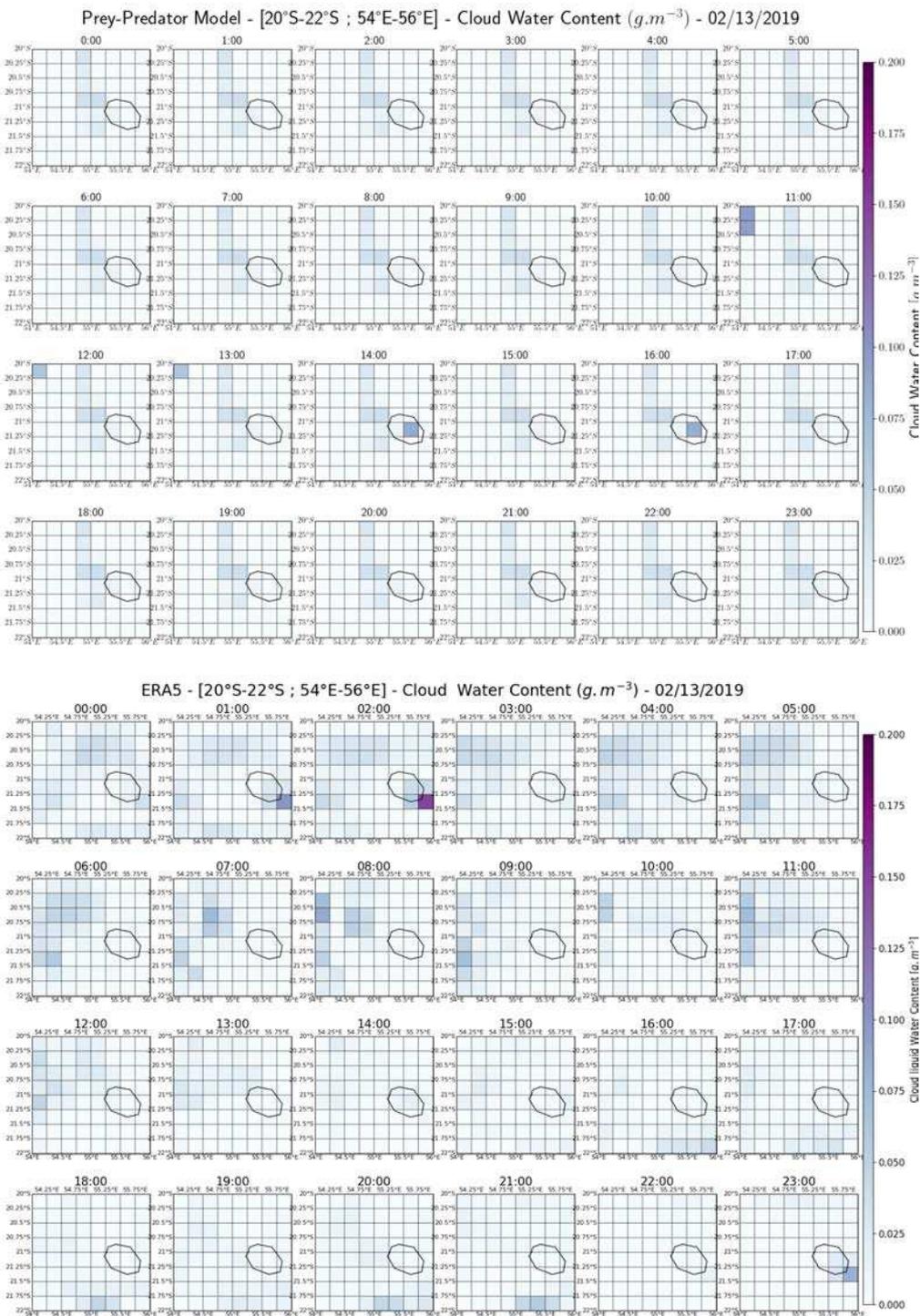


FIGURE A.5 – Identique à la Fig.A.1, pour le 13 février 2019

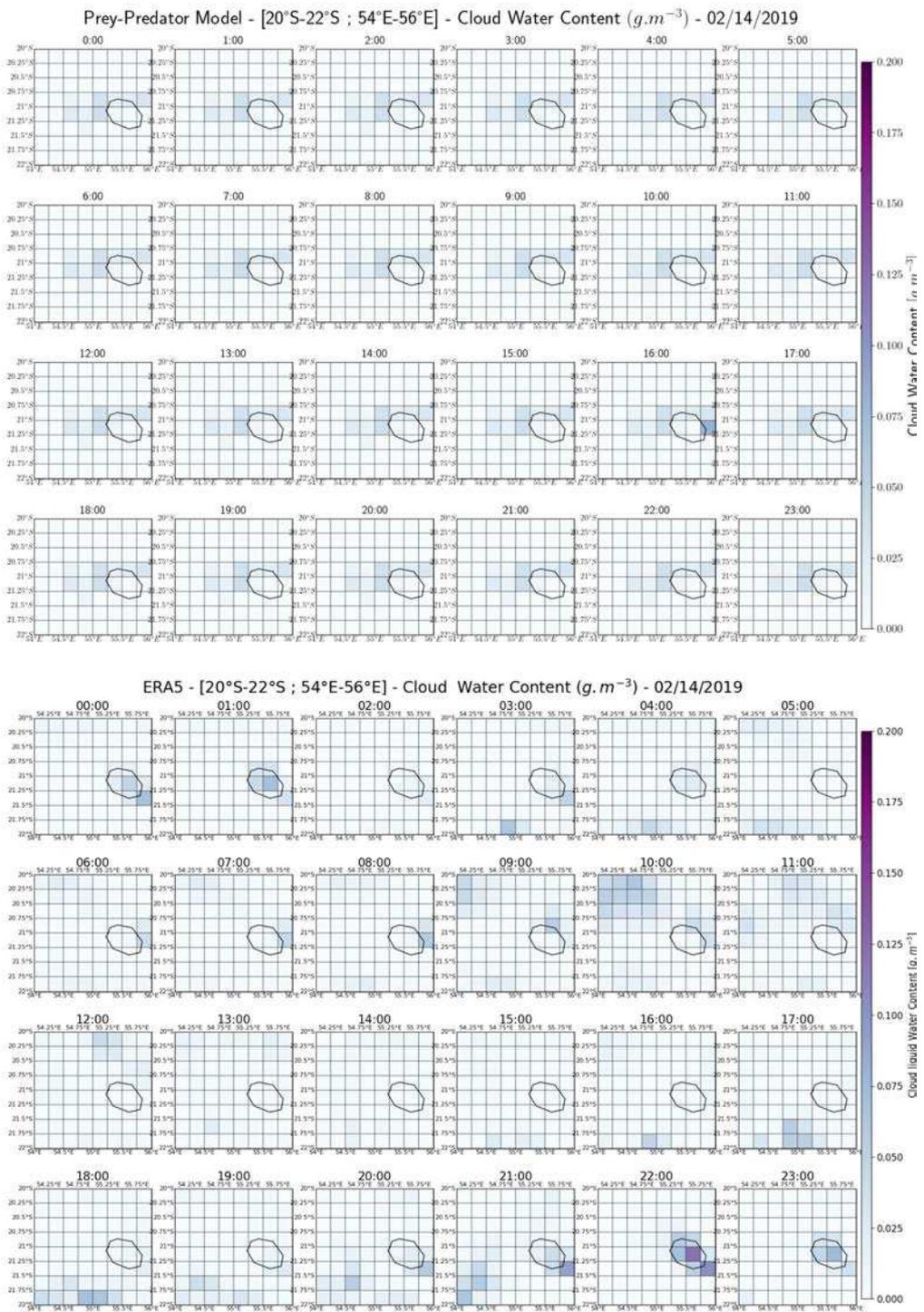


FIGURE A.6 – Identique à la Fig.A.1, pour le 14 février 2019

ANNEXE A. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses

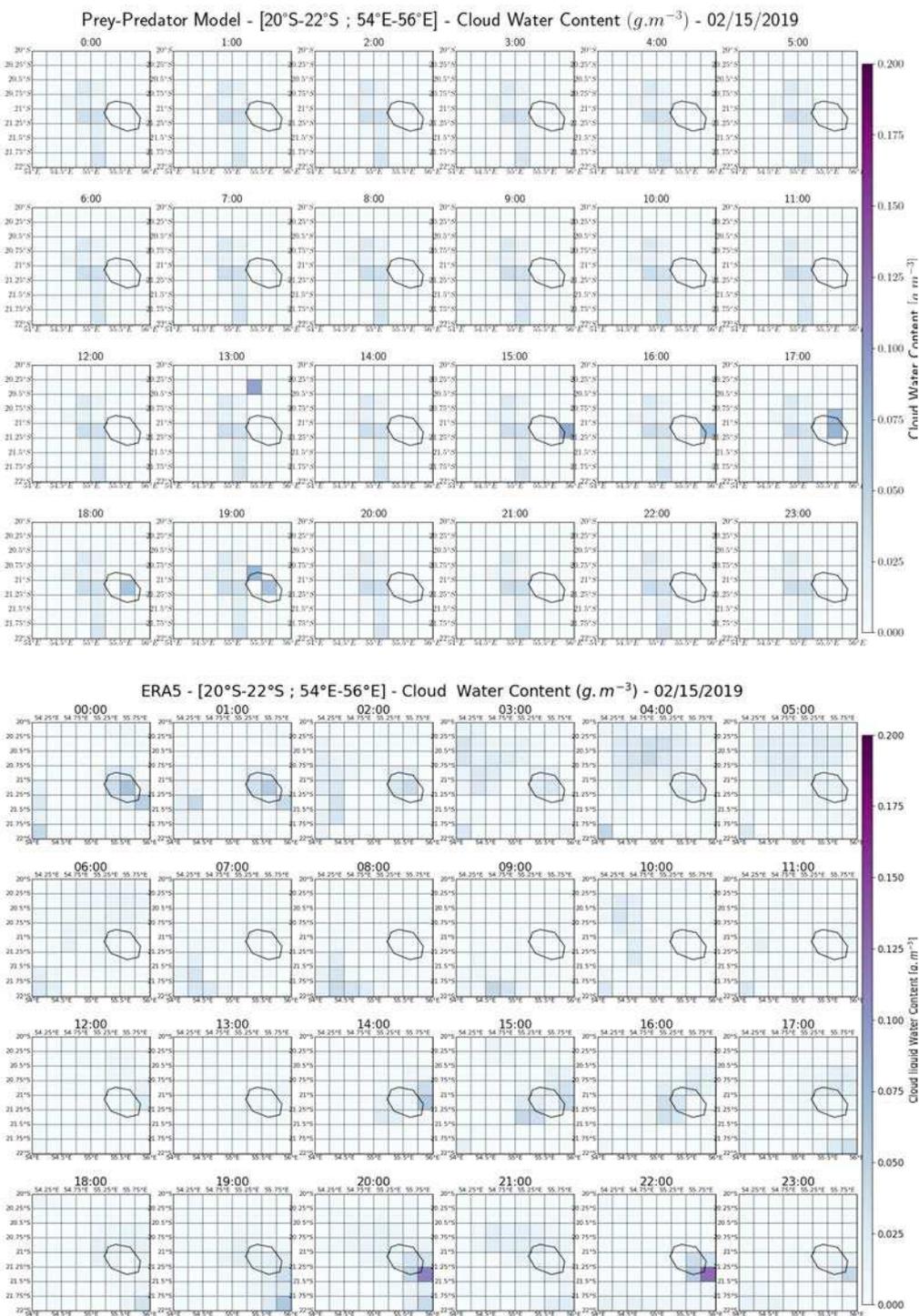


FIGURE A.7 – Identique à la Fig.A.1, pour le 15 février 2019

Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-dessus de l'océan Indien (Chap. 5)

Les figures suivantes montrent les contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua (pour les deux valeurs de h considérées), issus de notre système d'équations et issus des réanalyses ERA5.

Nous pouvons observer sur ces figures que notre système d'équations et les réanalyses ERA5 fournissent des contenus en eau du même ordre de grandeur pour chaque passage du satellite et il apparaît même que notre modèle semble parfois mieux reproduire la couverture nuageuse au dessus de l'île de La Réunion. C'est notamment le cas pour les passages du 10 et 11 février (Figs. B.1 et B.3). En revanche, pour les passages du 13 et 15 février (Figs. B.7 et B.11), les réanalyses ERA5 montrent des résultats plus proches des observations, et notre modèle sousestime l'étendue spatiale des nuages.

Cette annexe présente également les différences de contenus en eau des nuages moyennés sur les quatre quarts Nord-Ouest, Nord-Est, Sud-Ouest, et Sud-Est de la grille, pour chaque passage du satellite. Ces différences entre observations et modélisations nous montrent que les modèles (Éqs. 5.2 et ERA5)

fournissent les différences les plus faibles pour la plus grande valeur de hauteur des nuages. Nous pouvons également déduire de chacun des passages du satellite MODIS, que les deux modèles montrent des différences avec les contenus en eau des nuages déterminés à partir des observations très similaires (mais pas identiques). Notre système à trois équations montre des différences légèrement inférieures avec les observations pour trois passages du satellite (10, 11 et 14 février, Figs. B.2, B.4 et B.10). Il simule donc, dans ces trois cas, des contenu en eau de nuages plus proches de la réalité que les réanalyses ERA5. Au contraire, ERA5 s'approche au mieux des observations les 13 et 15 février (Figs. B.8 et B.12).

Notre modèle semble donc s'approcher, voire égaler, les réanalyses ERA5 dans ce contexte et pour cette simulation de sept jours.

ANNEXE B. Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-

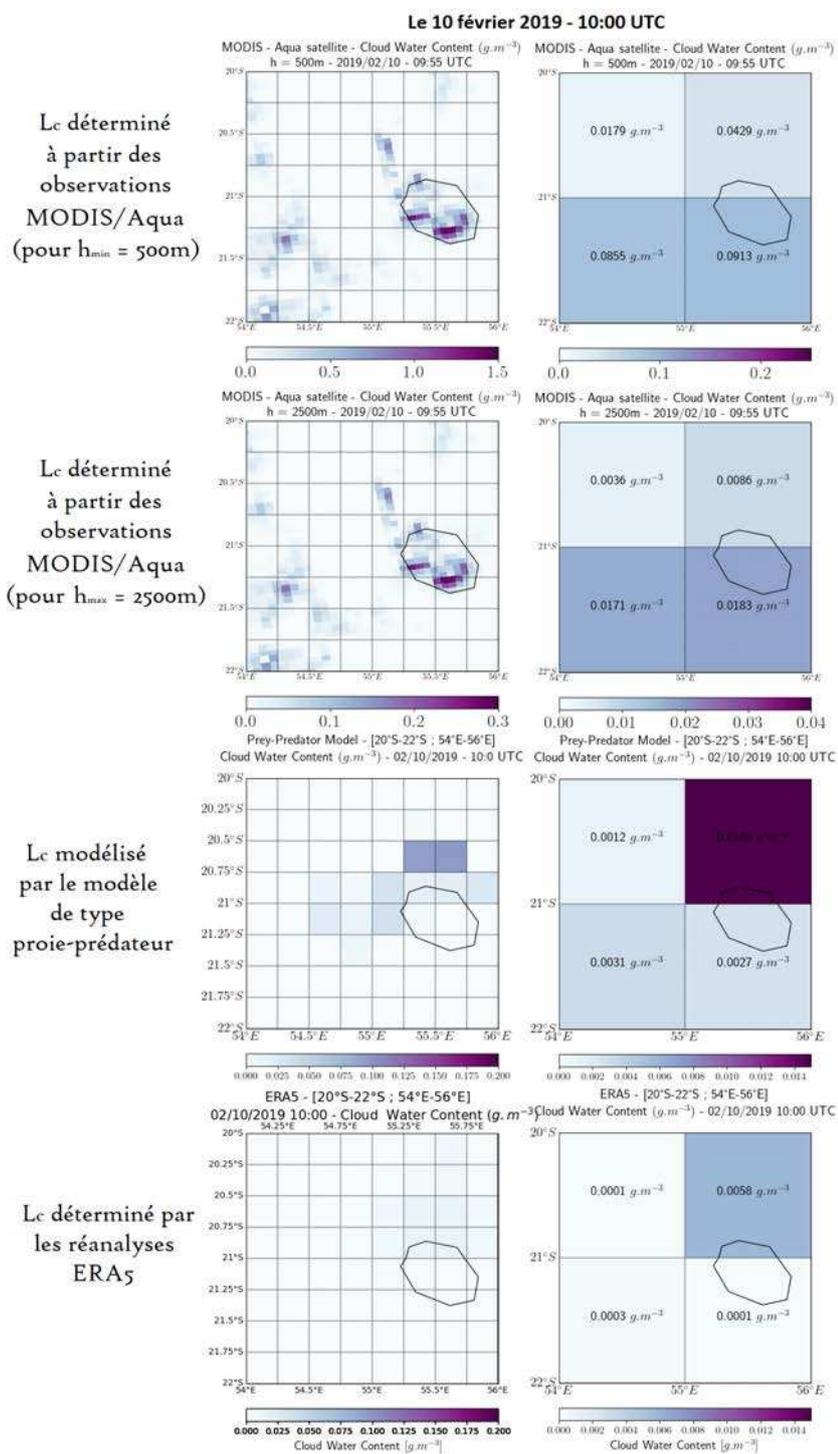


FIGURE B.1 – Le 10 février 2019 : Contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua, le modèle de type proie-prédateur et des réanalyses ERA5.

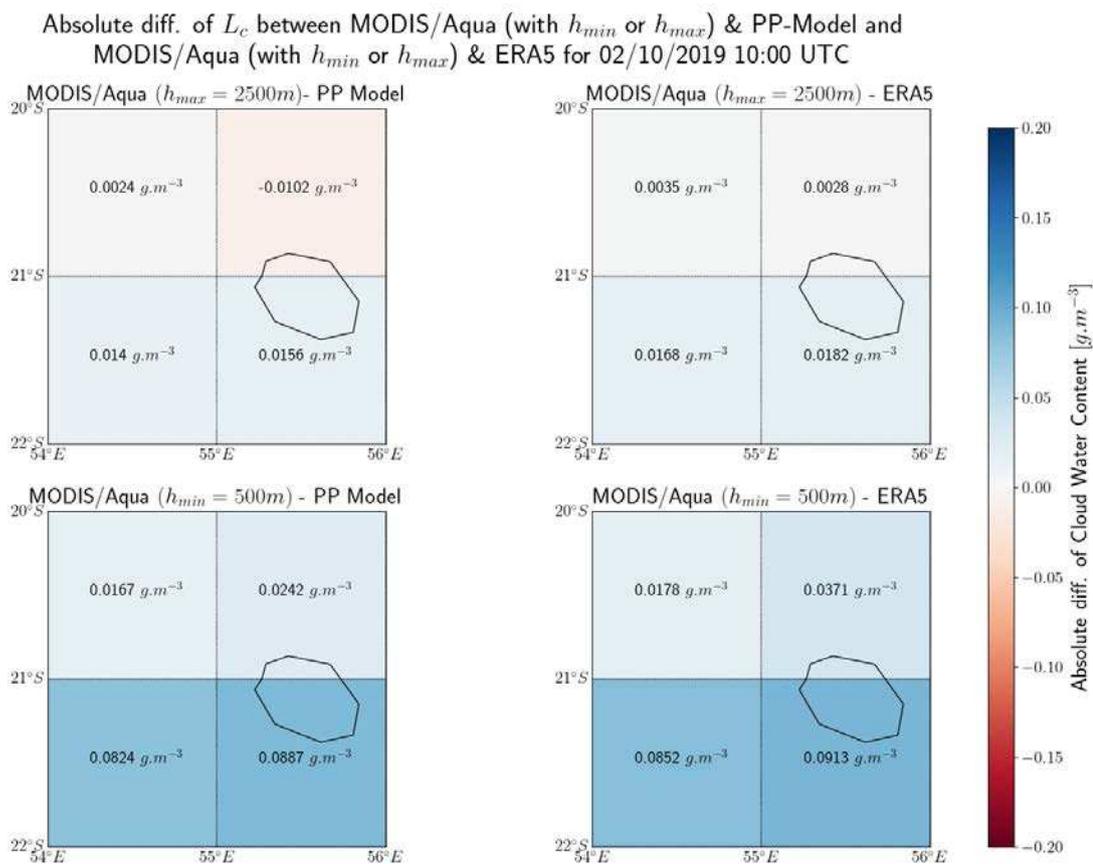


FIGURE B.2 – Le 10 février 2019 : Différences absolues MODIS/Aqua - Modèle & MODIS/Aqua - ERA5, pour h_{min} et h_{max} .

ANNEXE B. Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-

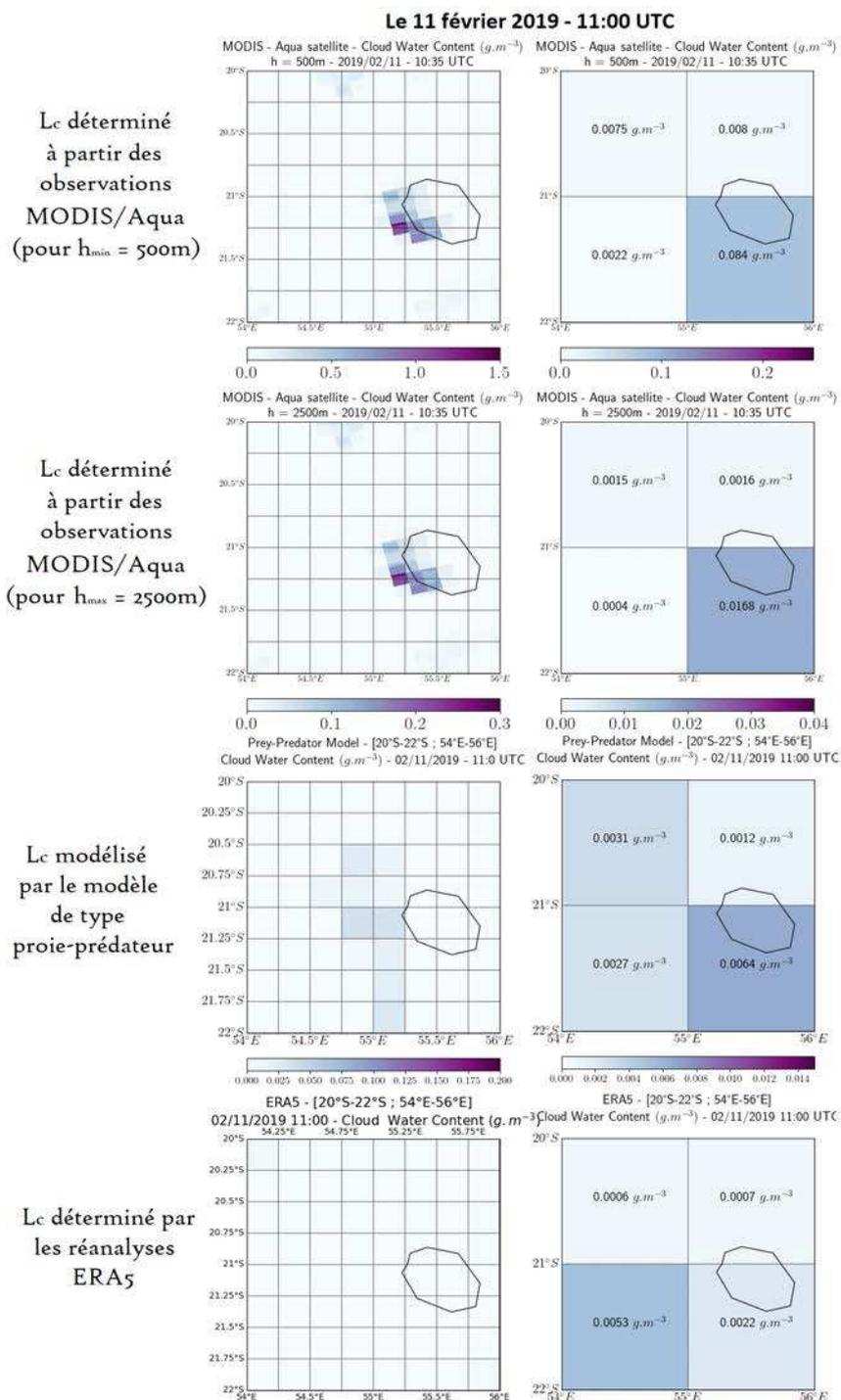
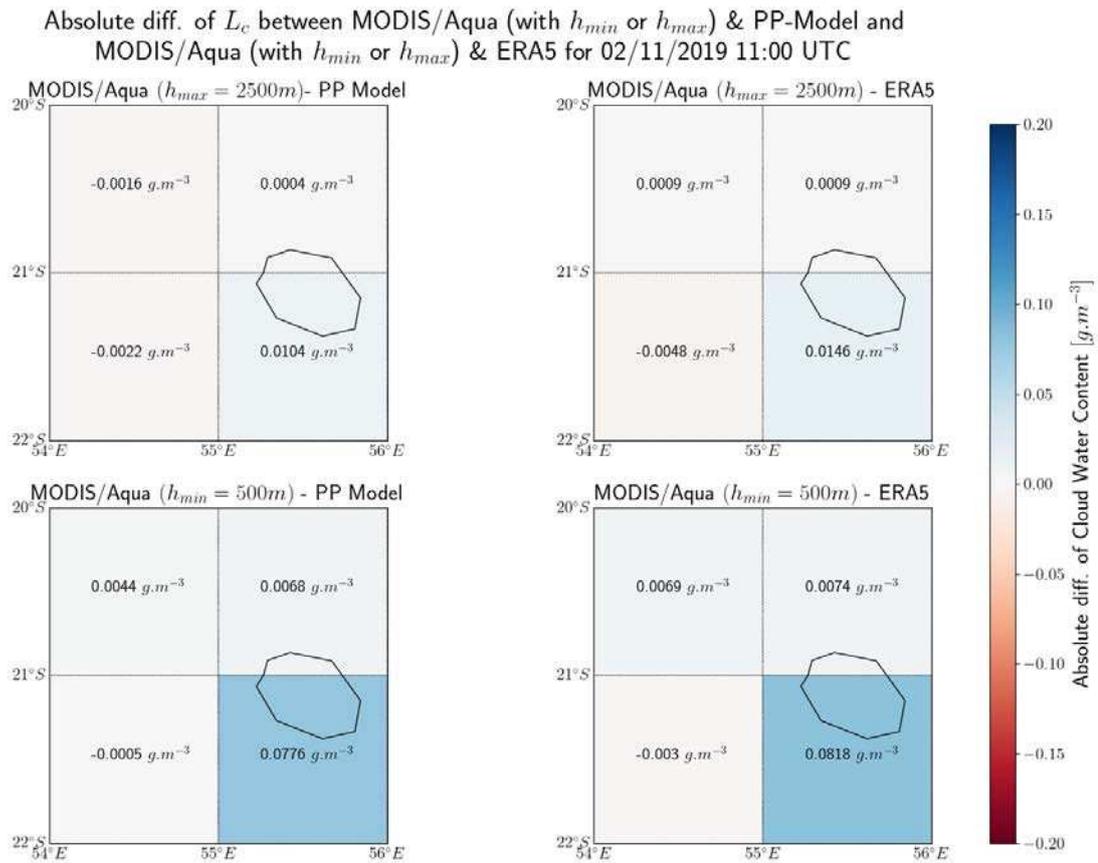


FIGURE B.3 – Identique à la Fig.B.1, pour le 11 février 2019



ANNEXE B. Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-

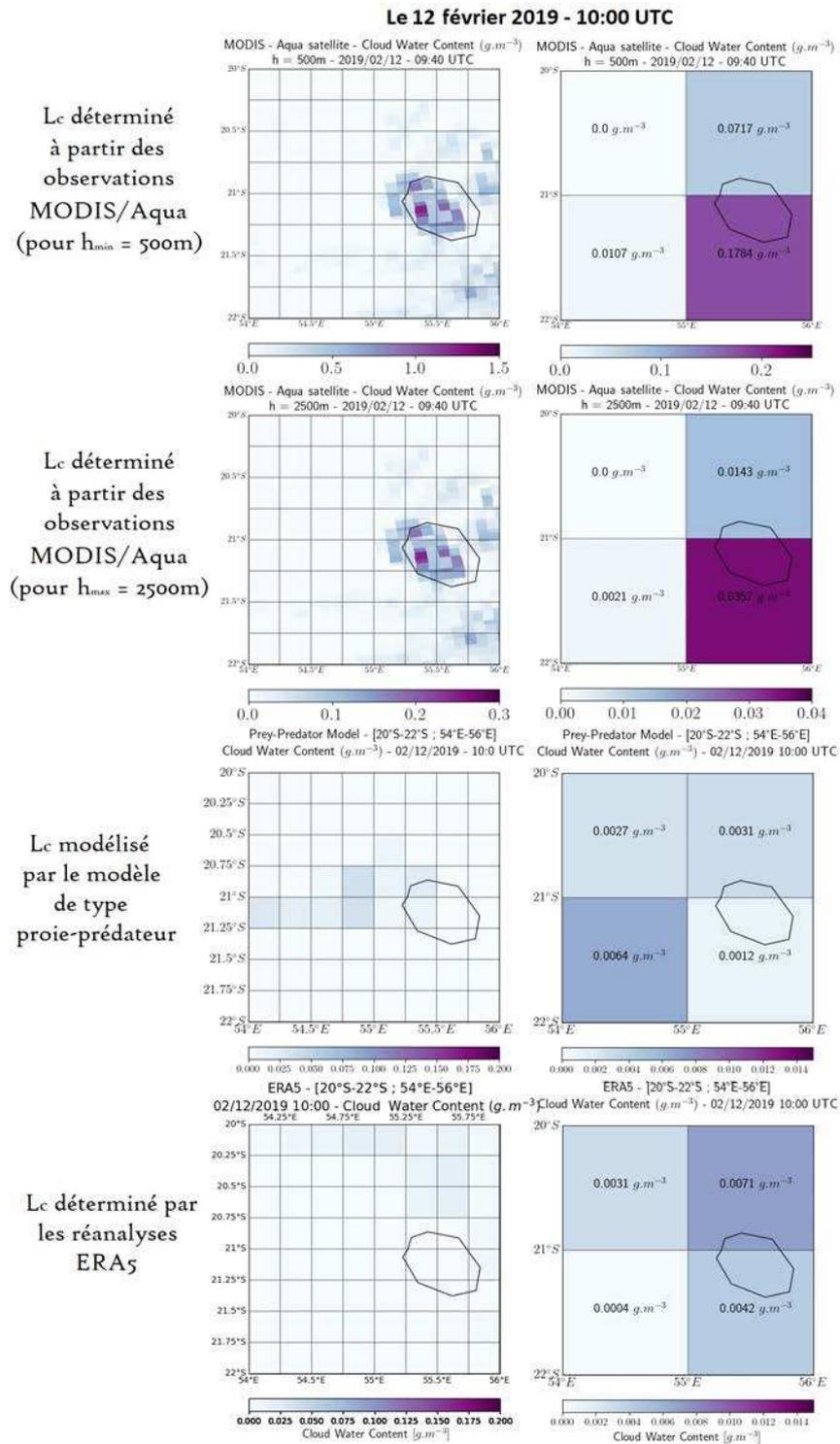


FIGURE B.5 – Identique à la Fig.B.1, pour le 12 février 2019

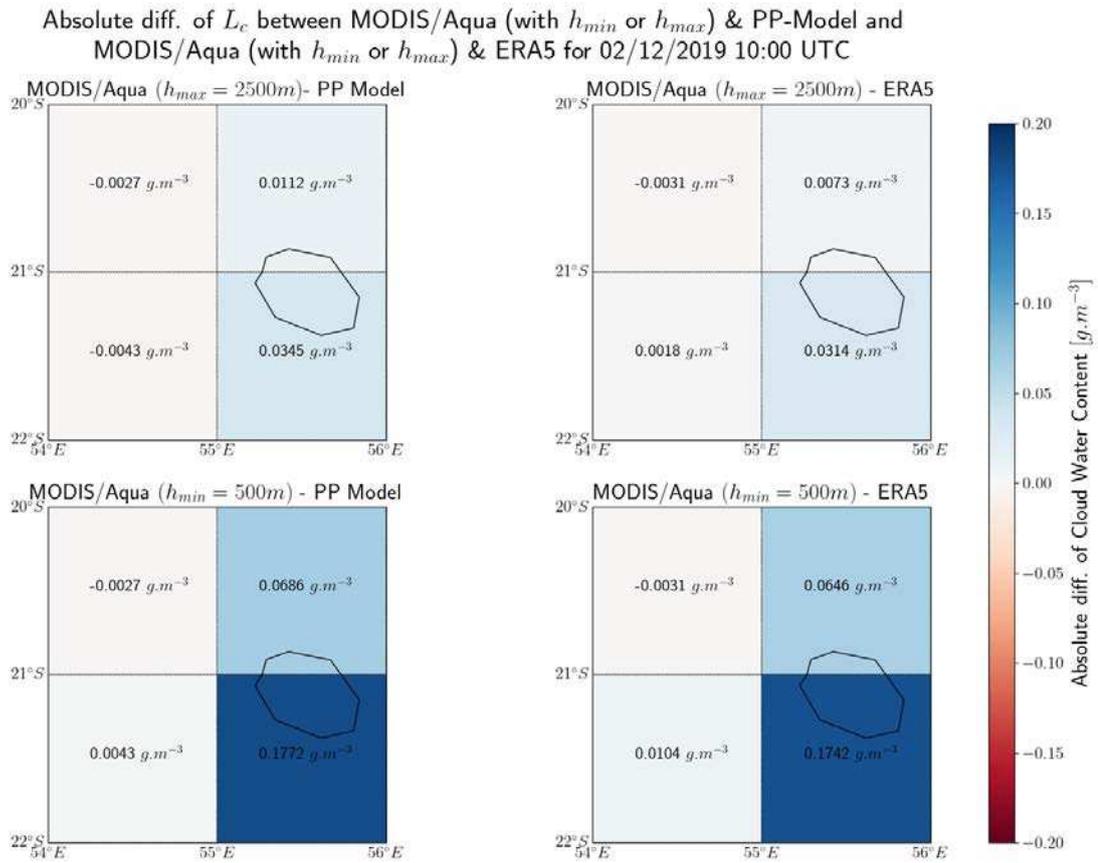


FIGURE B.6 – Identique à la Fig.B.2, pour le 12 février 2019

ANNEXE B. Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-

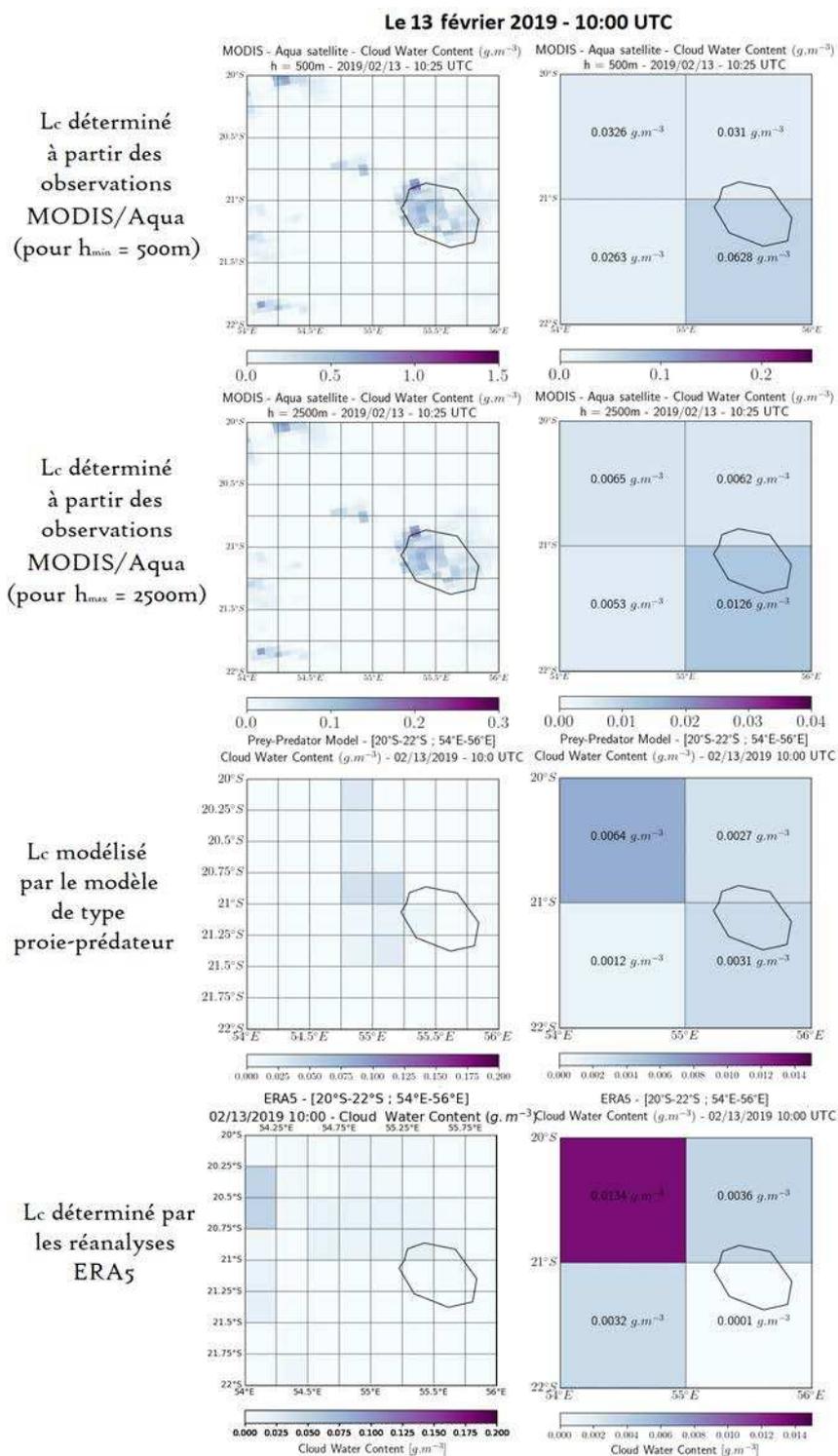


FIGURE B.7 – Identique à la Fig.B.1, pour le 13 février 2019

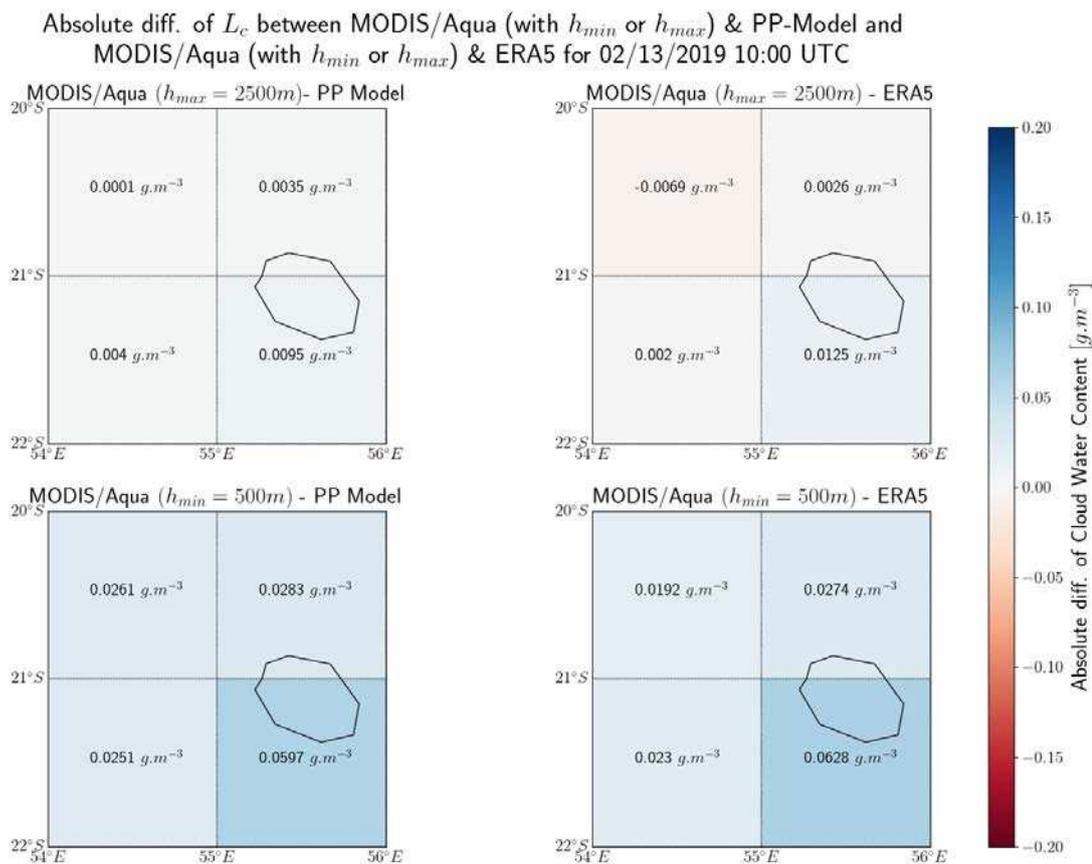


FIGURE B.8 – Identique à la Fig.B.2, pour le 13 février 2019

ANNEXE B. Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-

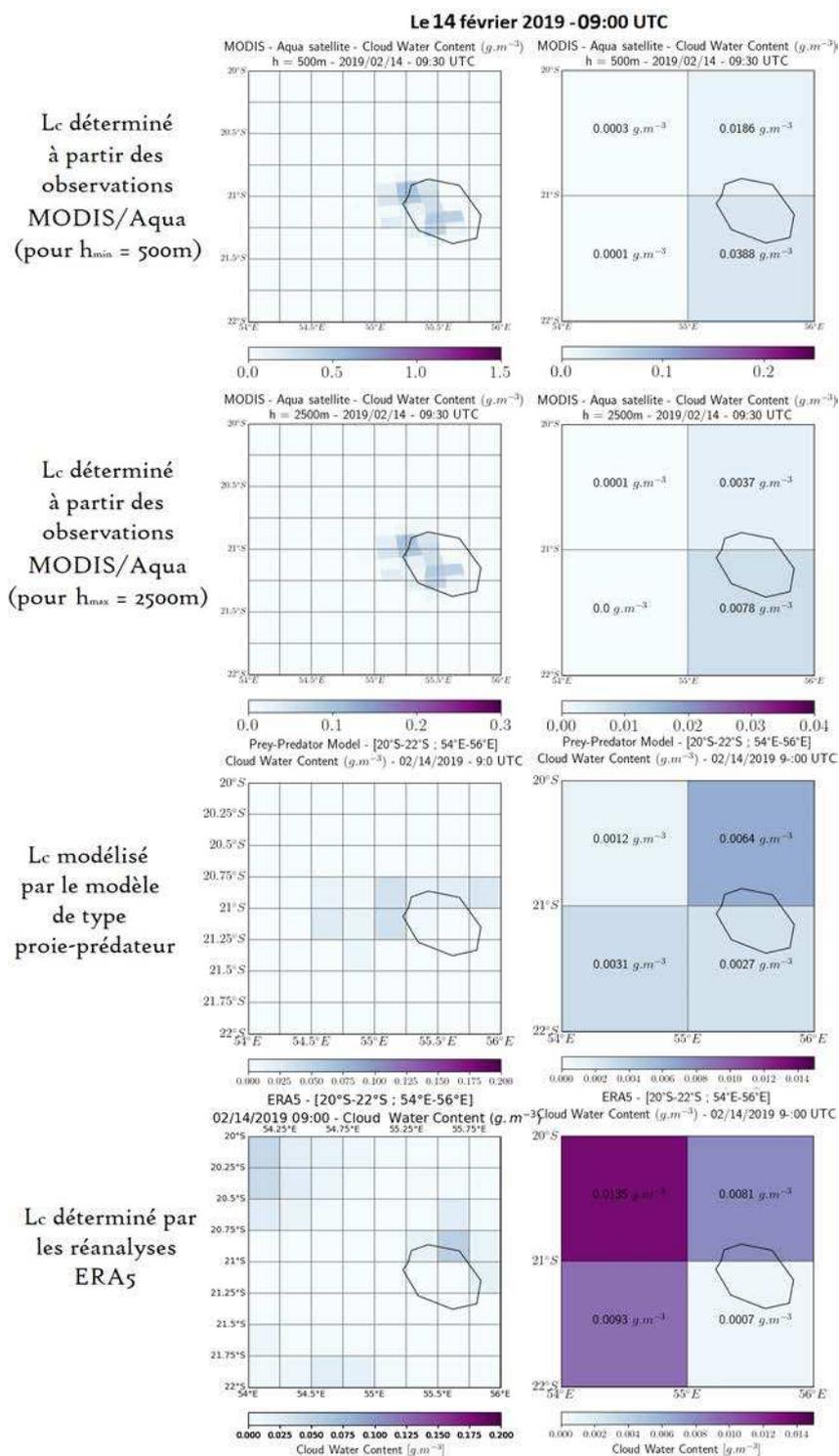


FIGURE B.9 – Identique à la Fig.B.1, pour le 14 février 2019

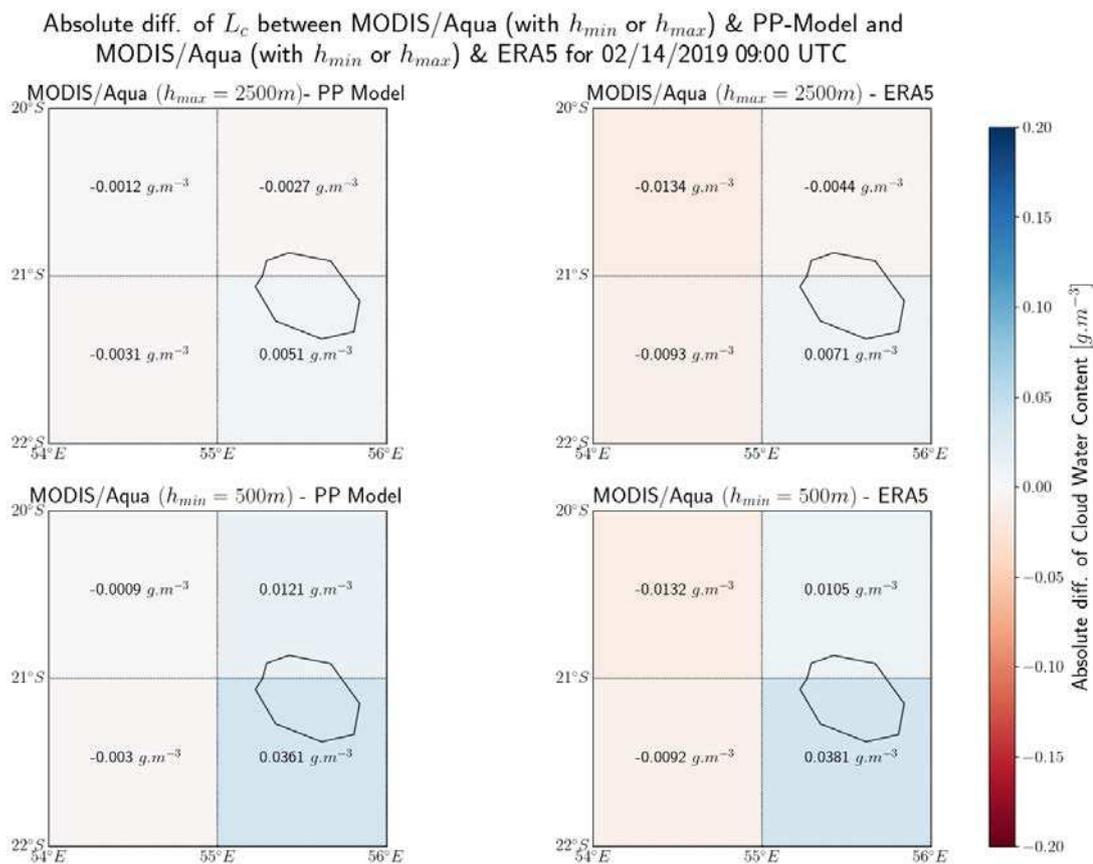


FIGURE B.10 – Identique à la Fig.B.2, pour le 14 février 2019

ANNEXE B. Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-

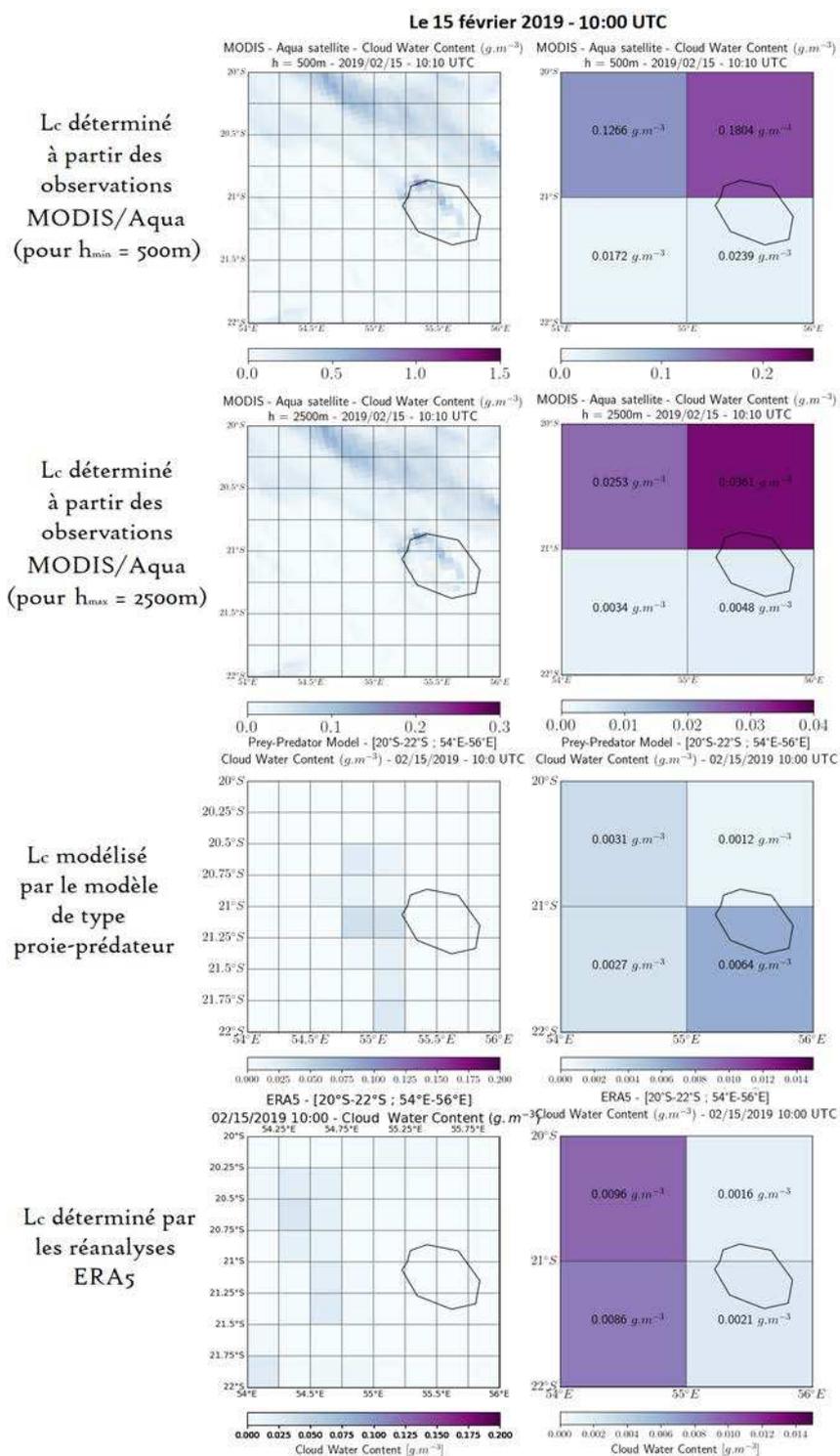


FIGURE B.11 – Identique à la Fig.B.1, pour le 15 février 2019

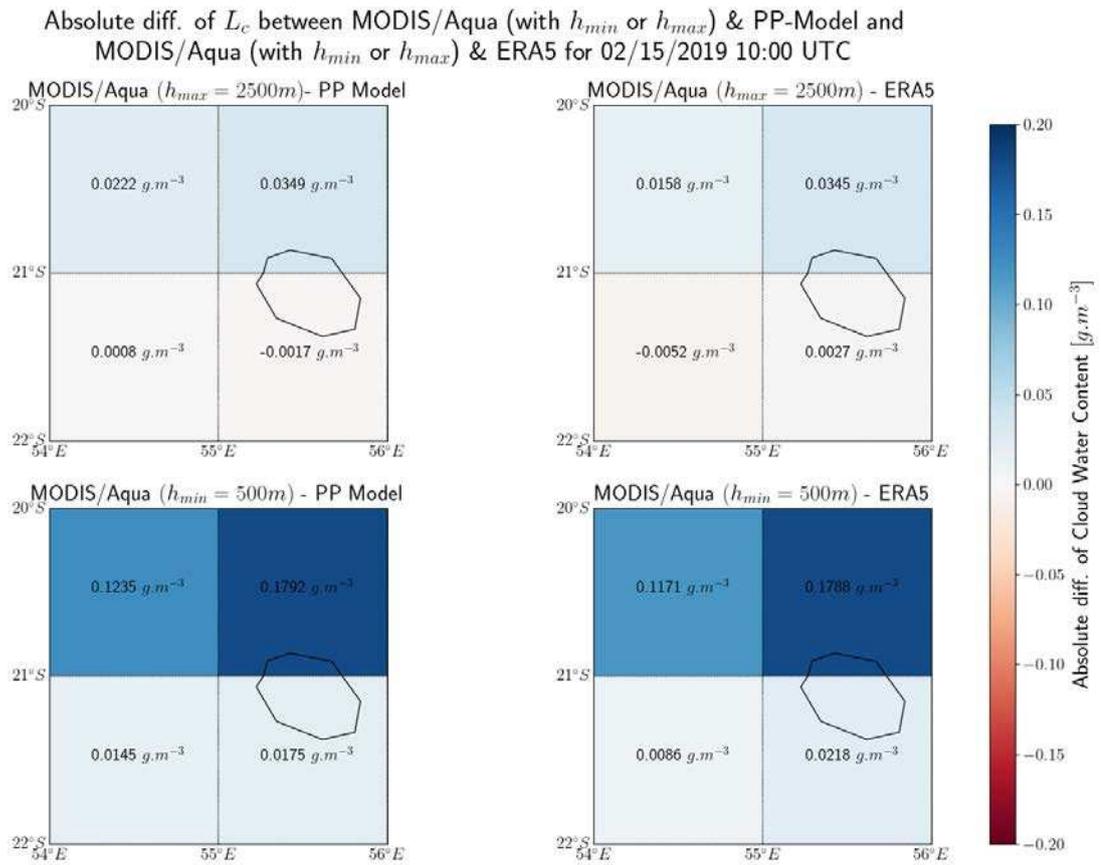


FIGURE B.12 – Identique à la Fig.B.2, pour le 15 février 2019

Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses ERA5 au-dessus de la région Hauts-de-France (Chap. 5)

Les figures qui suivent sont présentées de la même manière que l'Annexe A, mais pour la simulation sur sept jours au-dessus de la région Hauts-de-France, centrée autour de Lille, entre le 1^{er} et le 7 octobre 2020.

En comparant les contenus en eau des nuages simulés par notre système d'équations (panel du haut) et ceux issus des réanalyses ERA5 (panel du bas), nous constatons que l'évolution, l'organisation spatiale et les ordres de grandeur sont très proches tout au long de la simulation. Nous constatons tout de même que le modèle proie-prédateur affiche, ponctuellement, des valeurs de L_c plus importantes que ERA5, notamment entre 00:00 et 05:00 UTC pour cinq jours de cette simulation.

Ainsi, notre modèle semble être le plus proche possible des observations satellites en contexte continental à Lille, c'est-à-dire avec des concentrations d'aérosols plus élevées. Dans ce contexte, le modèle est comparable à ERA5.

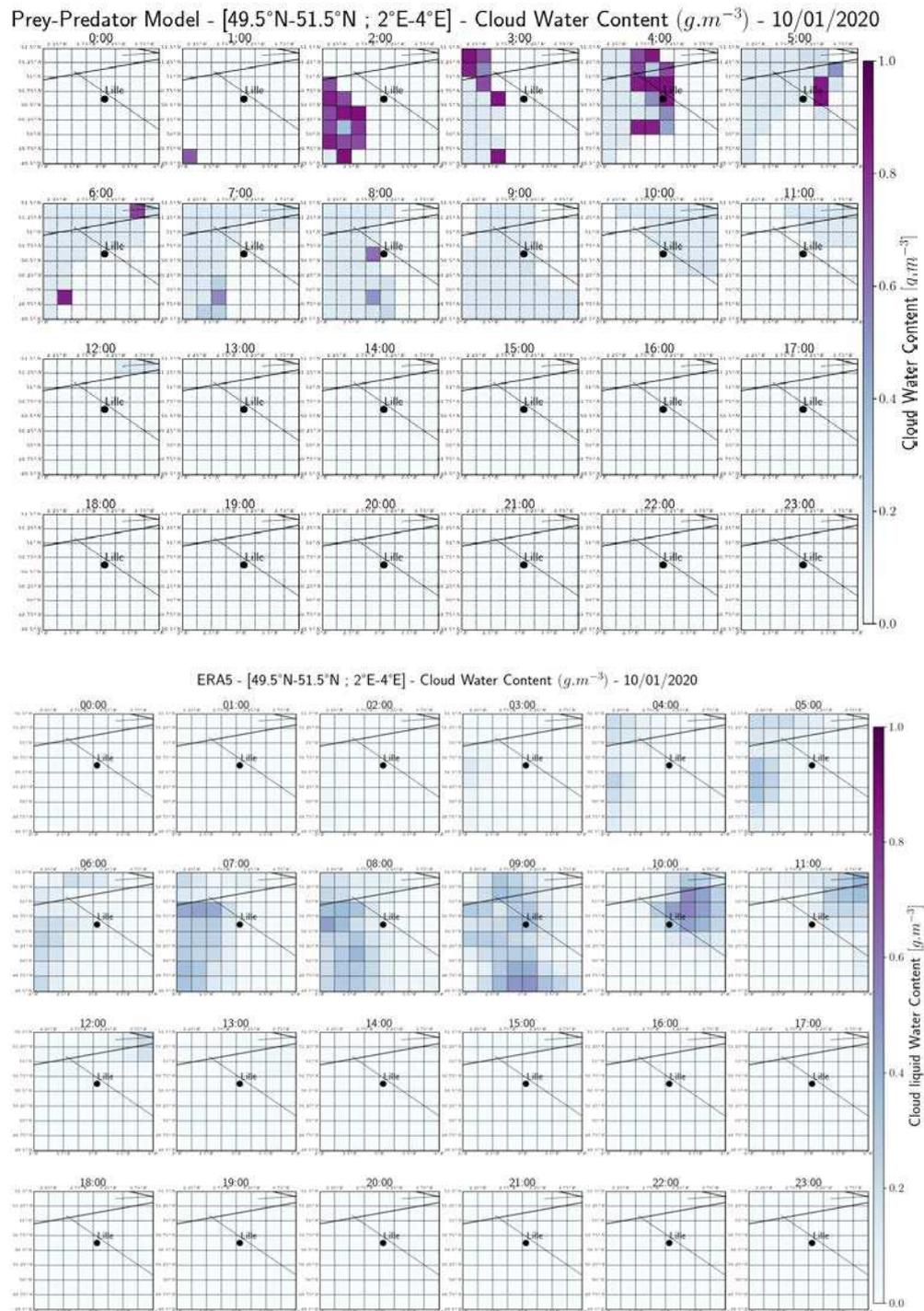


FIGURE C.1 – Le 1^{er} octobre 2020 : contenus en eau des nuages (L_c) issus de notre modèle (panel du haut) et des réanalyses ERA5 (panel du bas).

ANNEXE C. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses



FIGURE C.2 – Identique à la Fig. C.1, pour le 2 octobre 2020

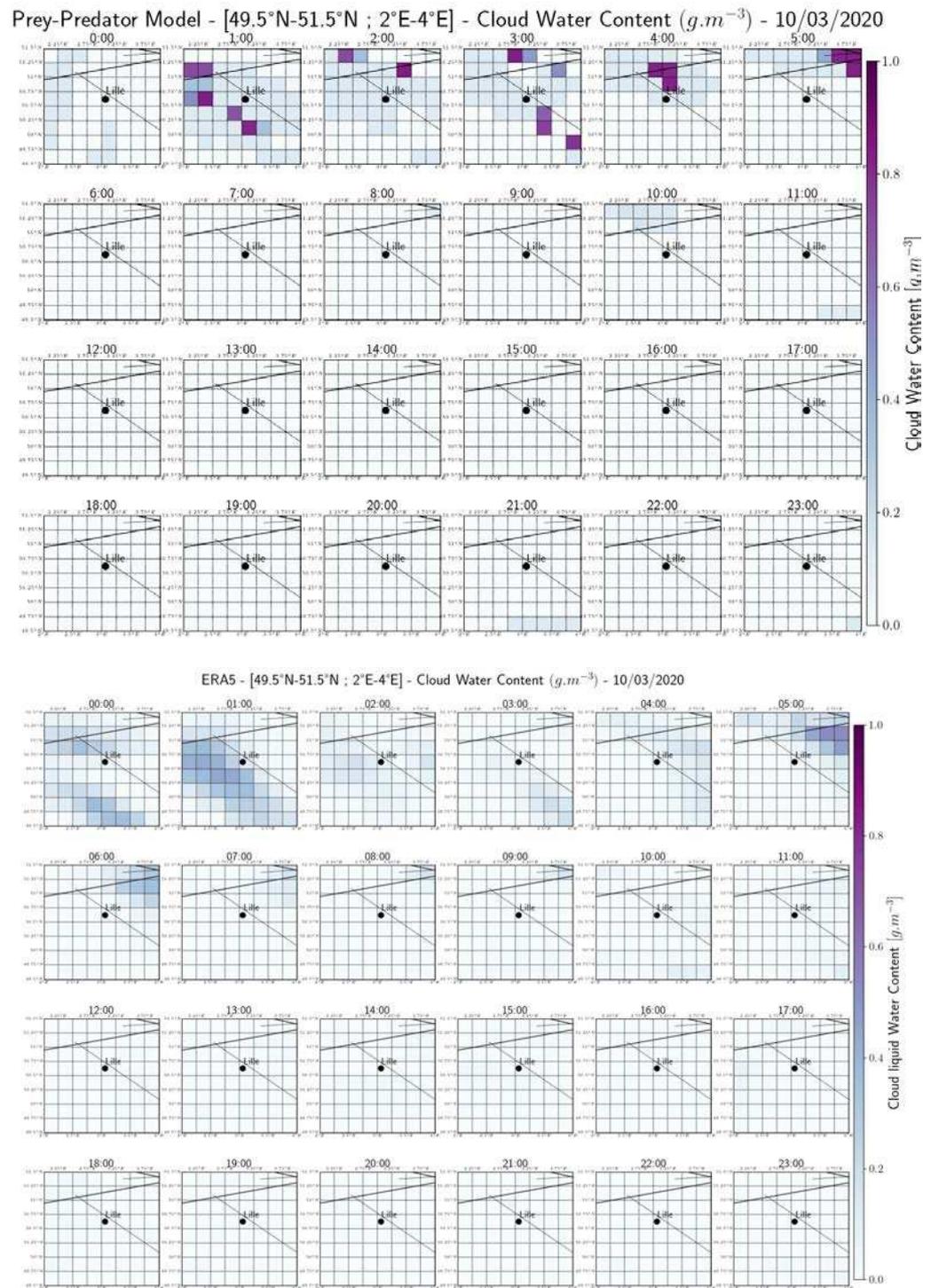


FIGURE C.3 – Identique à la Fig. C.1, pour le 3 octobre 2020

ANNEXE C. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses

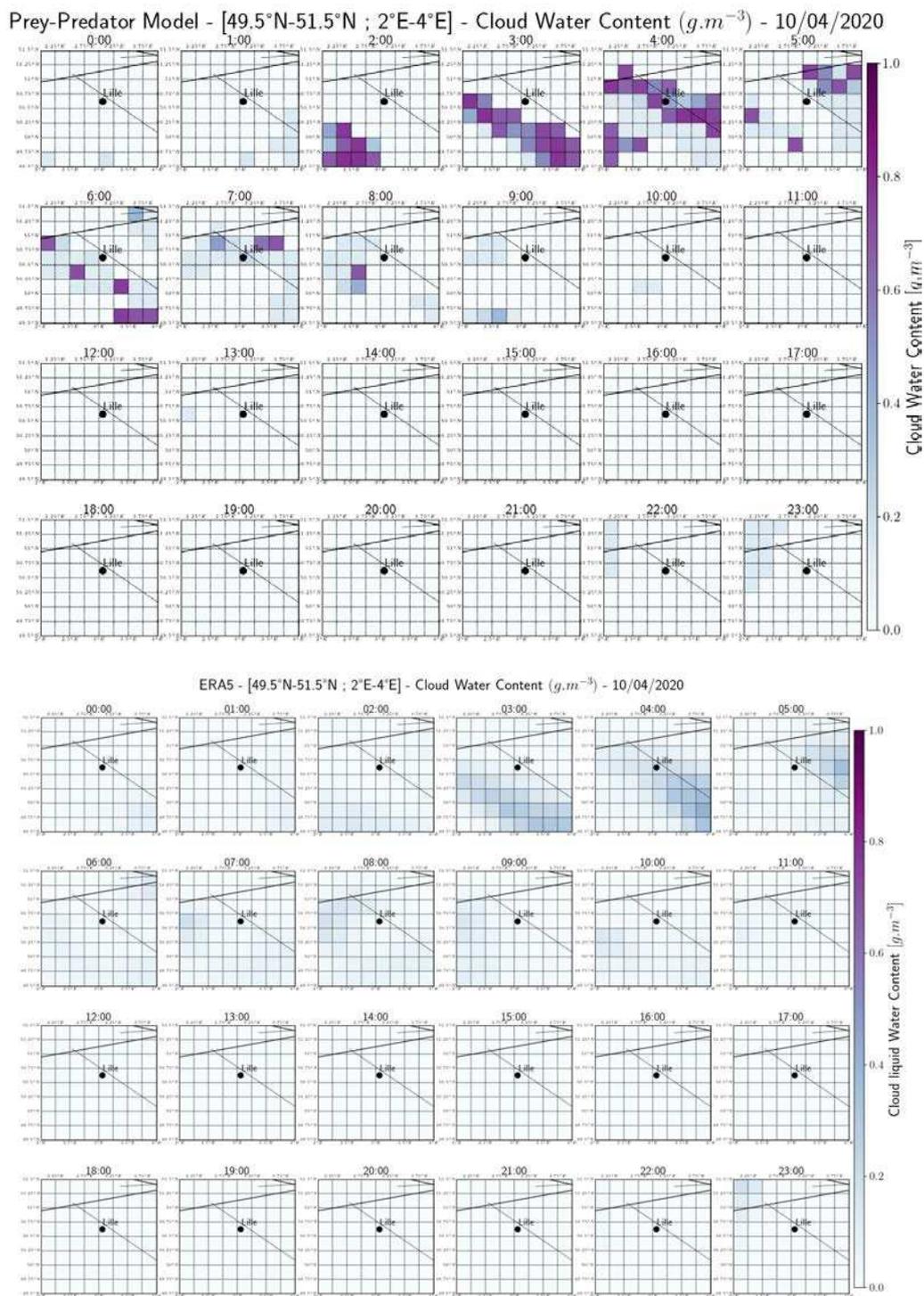


FIGURE C.4 – Identique à la Fig. C.1, pour le 4 octobre 2020

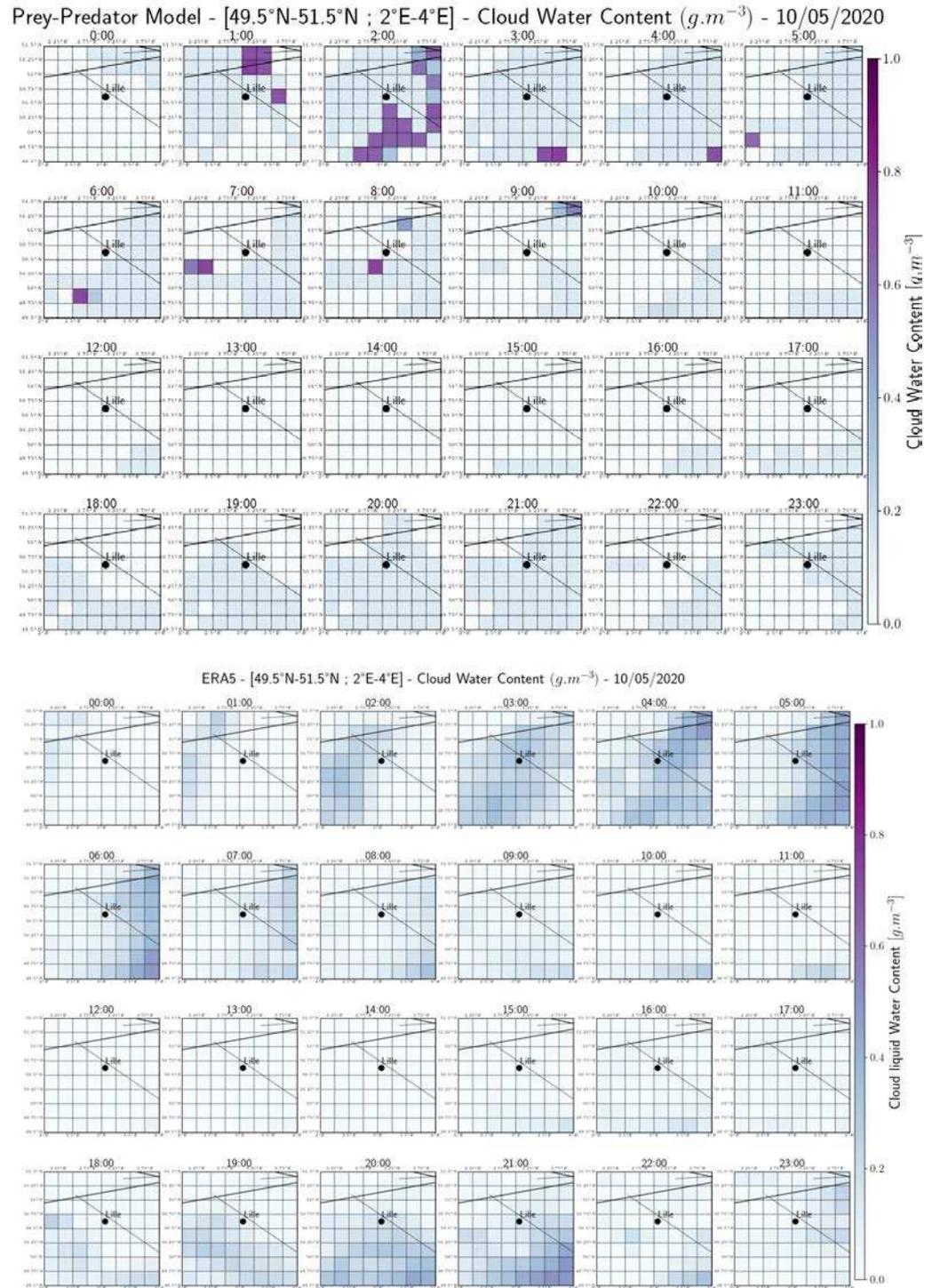


FIGURE C.5 – Identique à la Fig. C.1, pour le 5 octobre 2020

ANNEXE C. Contenus en eau des nuages simulés par le modèle proie-prédateur et par les réanalyses

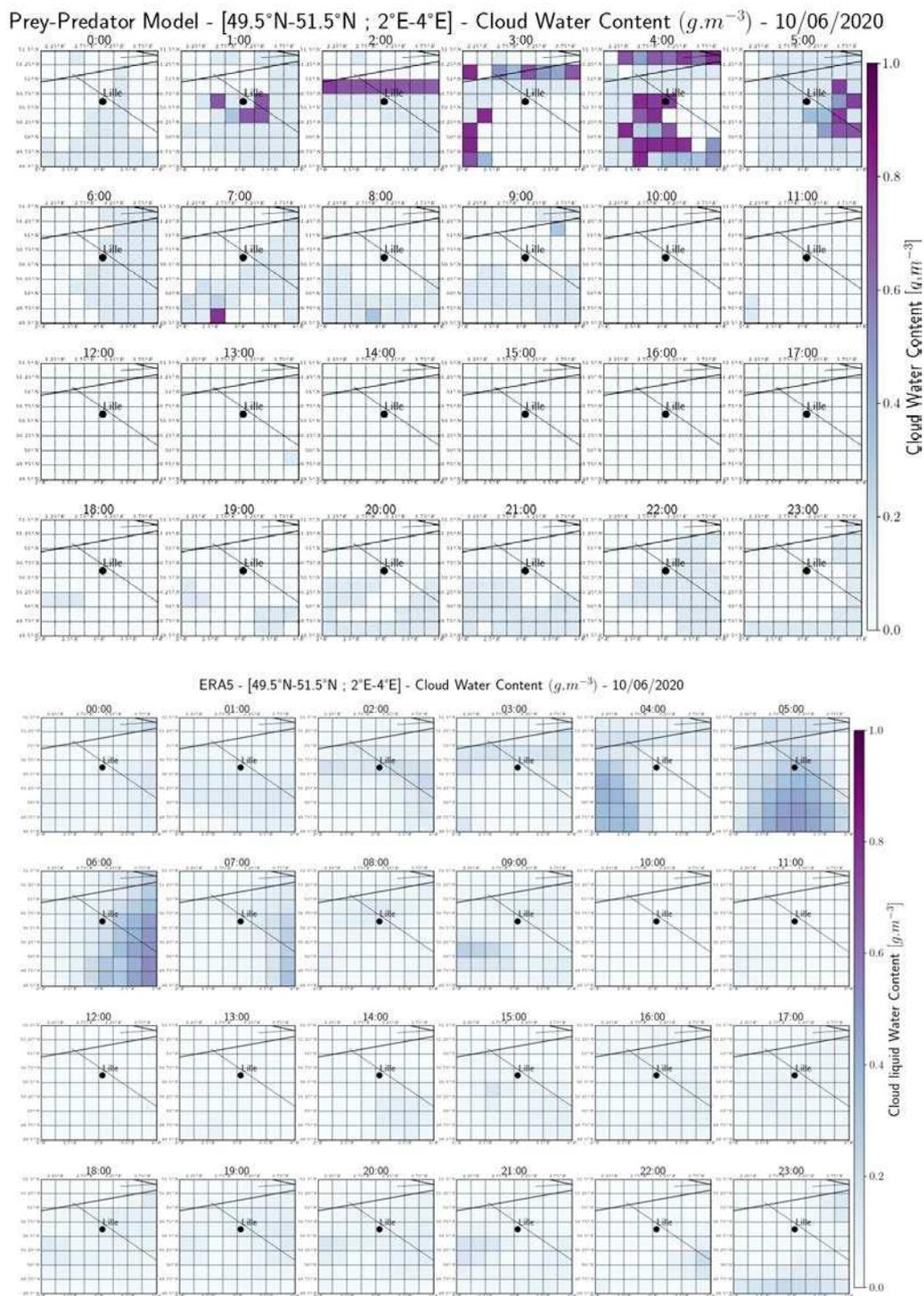


FIGURE C.6 – Identique à la Fig. C.1, pour le 6 octobre 2020

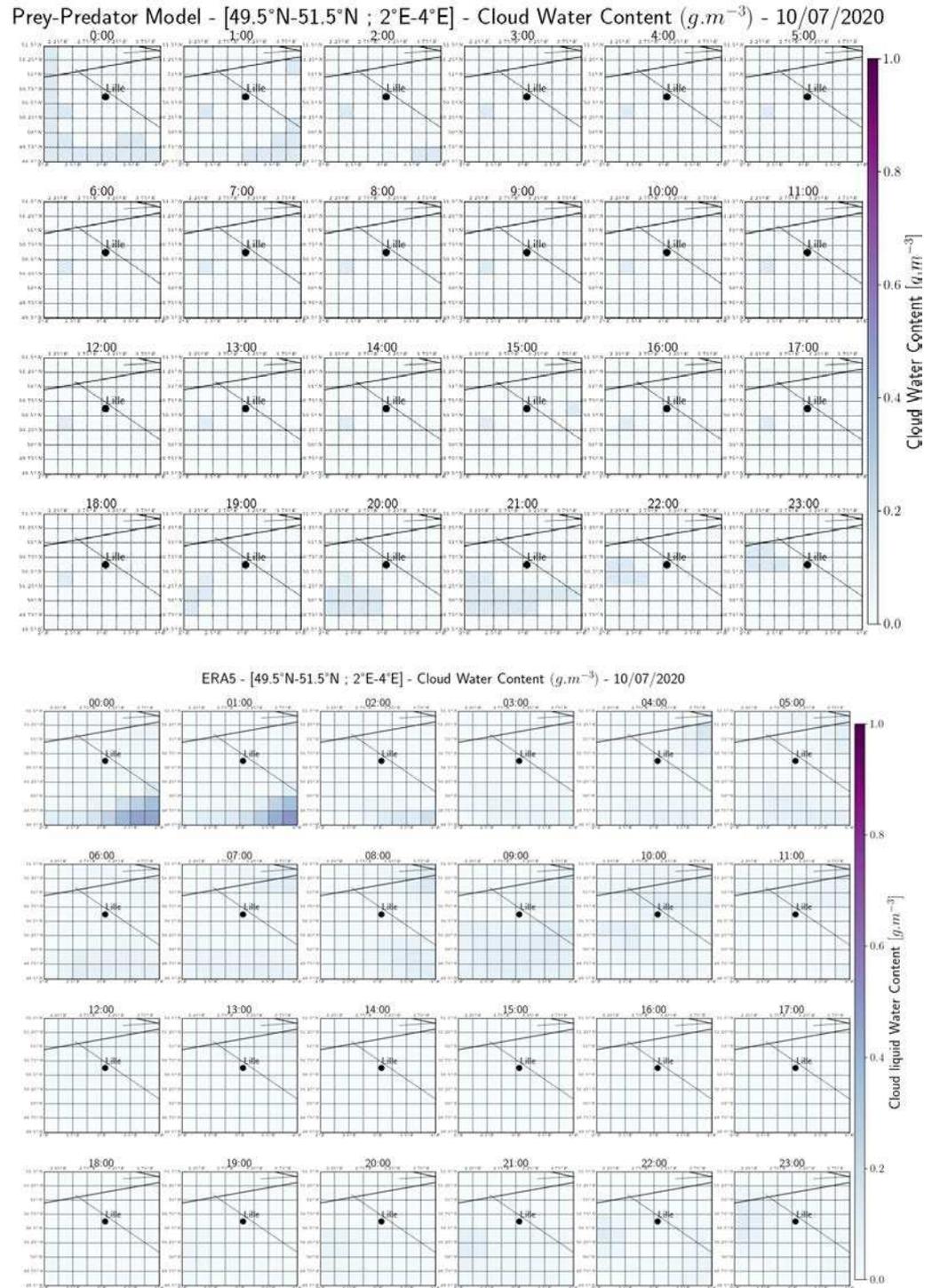


FIGURE C.7 – Identique à la Fig. C.1, pour le 7 octobre 2020

Comparaison des contenus en eau des nuages simulés et observés par MODIS/Aqua au-dessus de la région Hauts-de-France (Chap. 5)

Les figures de cette Annexe présentent les contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua (pour les deux valeurs de h considérées), issus de notre système d'équations et issus des réanalyses ERA5 (de la même façon que pour l'Annexe B). Nous pouvons observer sur ces figures que notre système d'équations et les réanalyses ERA5 fournissent des contenus en eau quasiment identiques pour chaque passage du satellite MODIS.

Cette annexe présente également les contenus en eau des nuages moyennés sur les quatre quarts Nord-Ouest, Nord-Est, Sud-Ouest, et Sud-Est de la grille, pour chaque passage du satellite. Cette comparaison entre observations et modélisations nous montre que les modèles (proie-prédateur et ERA5) fournissent les différences les plus faibles pour la plus grande valeur de hauteur des nuages ($h_{max} = 2500$ m), comme pour le cas d'étude précédent.

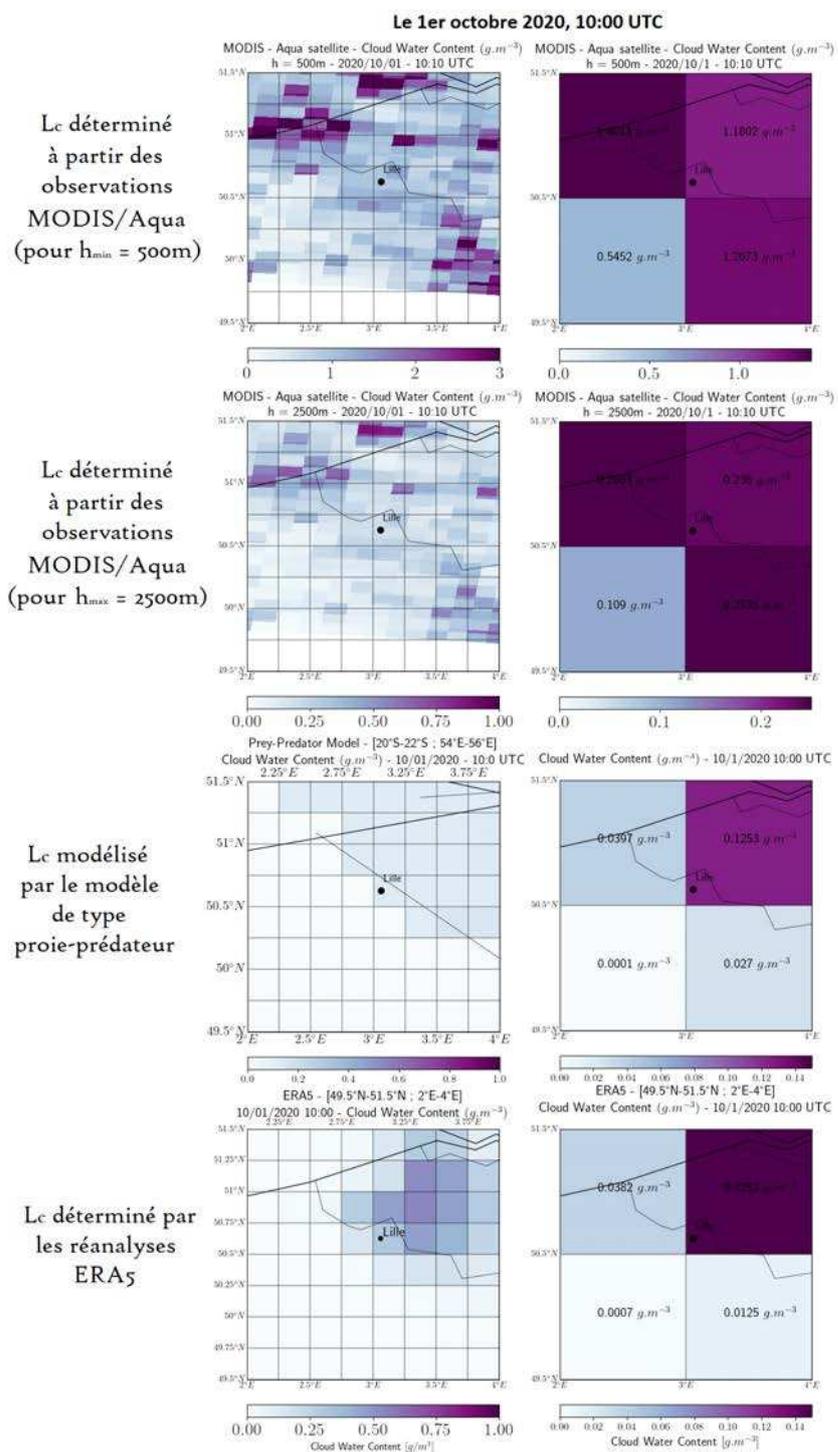


FIGURE D.1 – Le 1^{er} octobre 2020 (10:00 UTC) : Contenus en eau des nuages issus de MODIS/Aqua, le modèle de type proie-prédateur et des réanalyses ERA5.

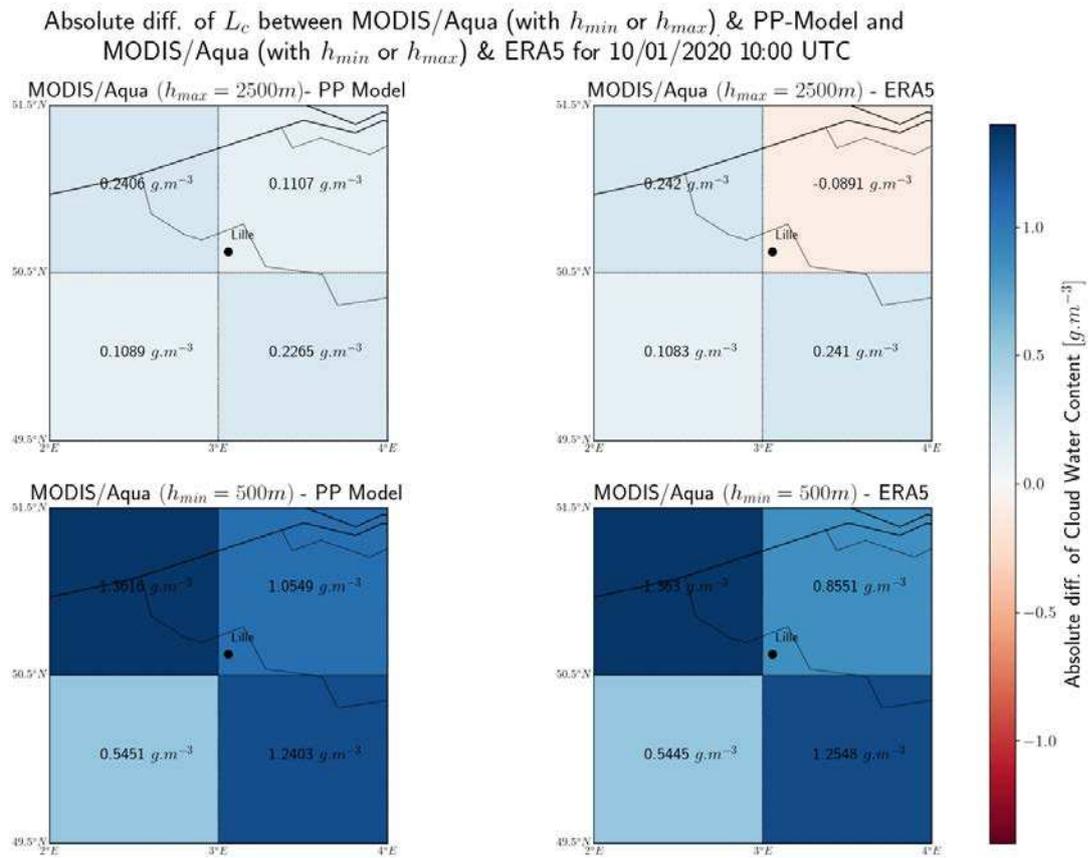


FIGURE D.2 – Le 1^{er} octobre 2020 (10:00 UTC) : Différences absolues MODIS/Aqua - Modèle & MODIS/Aqua - ERA5, pour h_{min} et h_{max} .

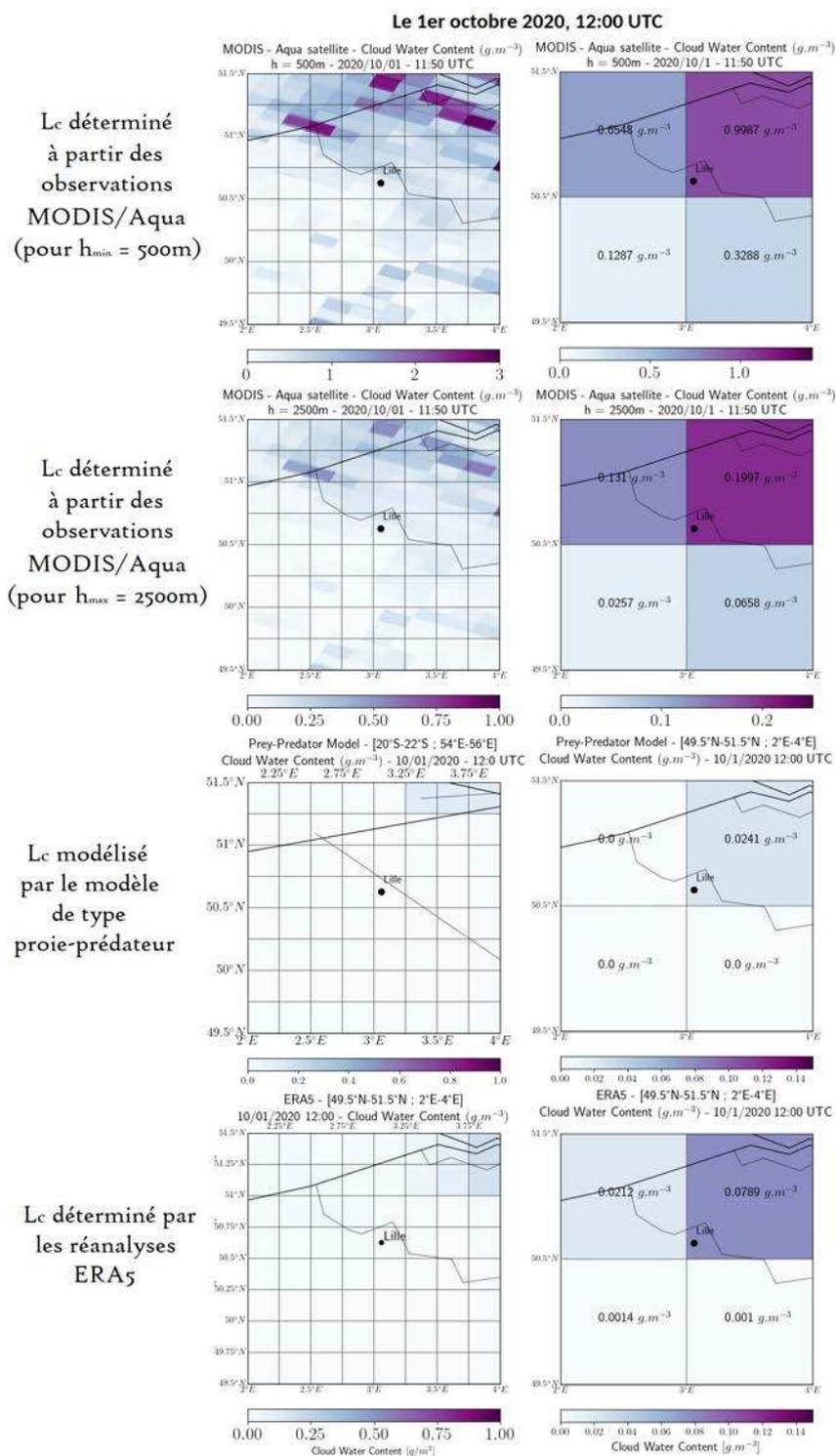


FIGURE D.3 – Identique à la Fig.D.1, pour le 1^{er} octobre 2020 (12:00 UTC)

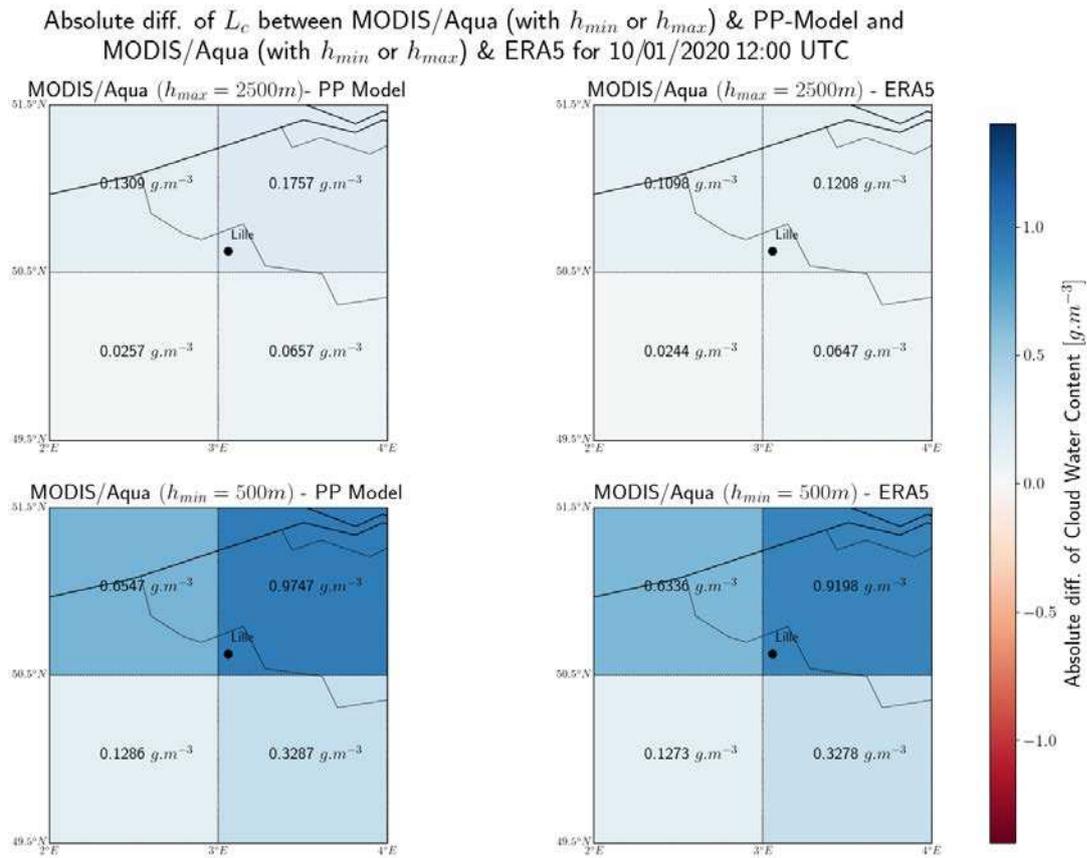


FIGURE D.4 – Identique à la Fig.D.2, pour le 1^{er} octobre 2020 (12:00 UTC)

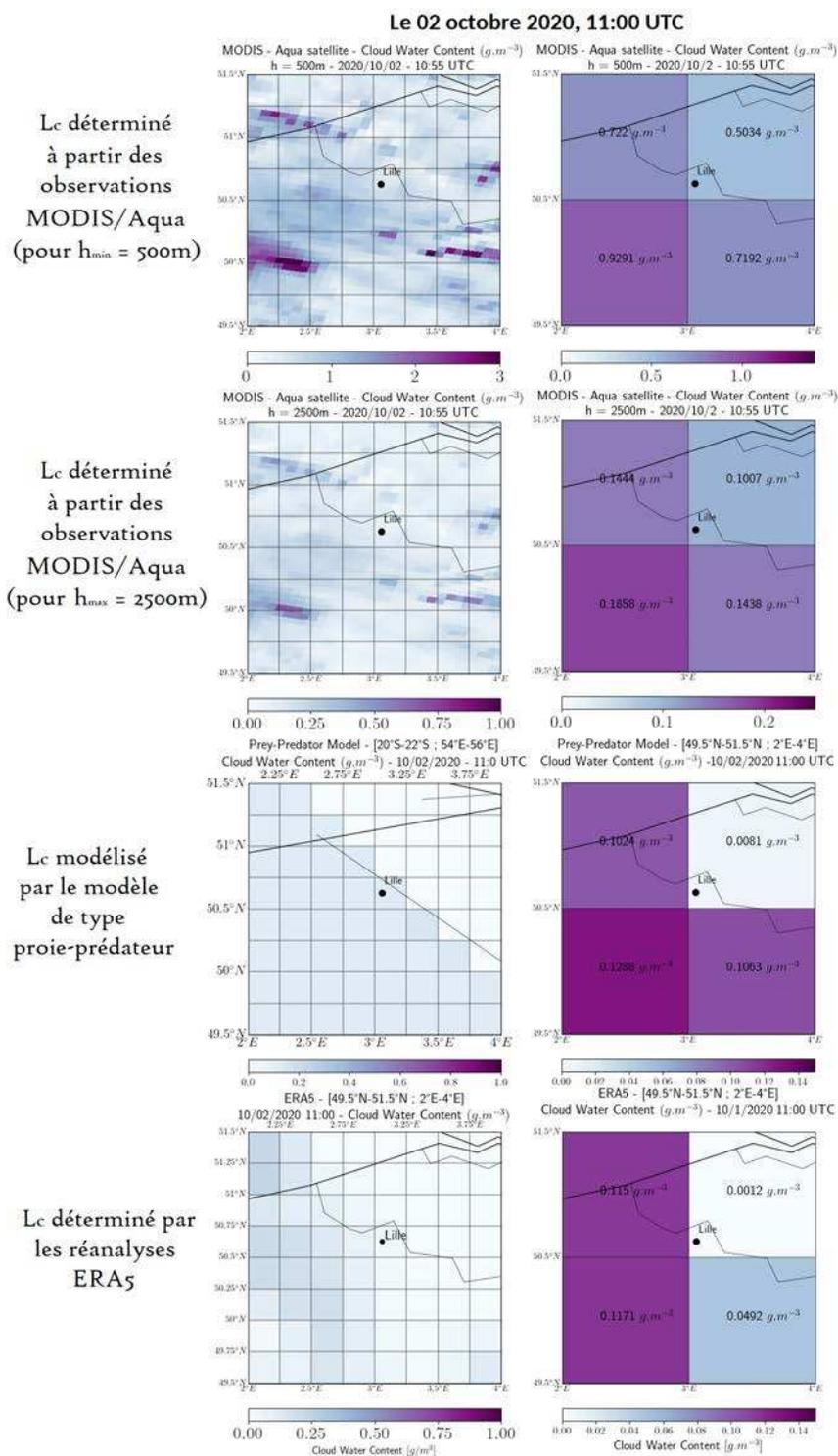


FIGURE D.5 – Identique à la Fig.D.1, pour le 02 octobre 2020 (11:00 UTC)

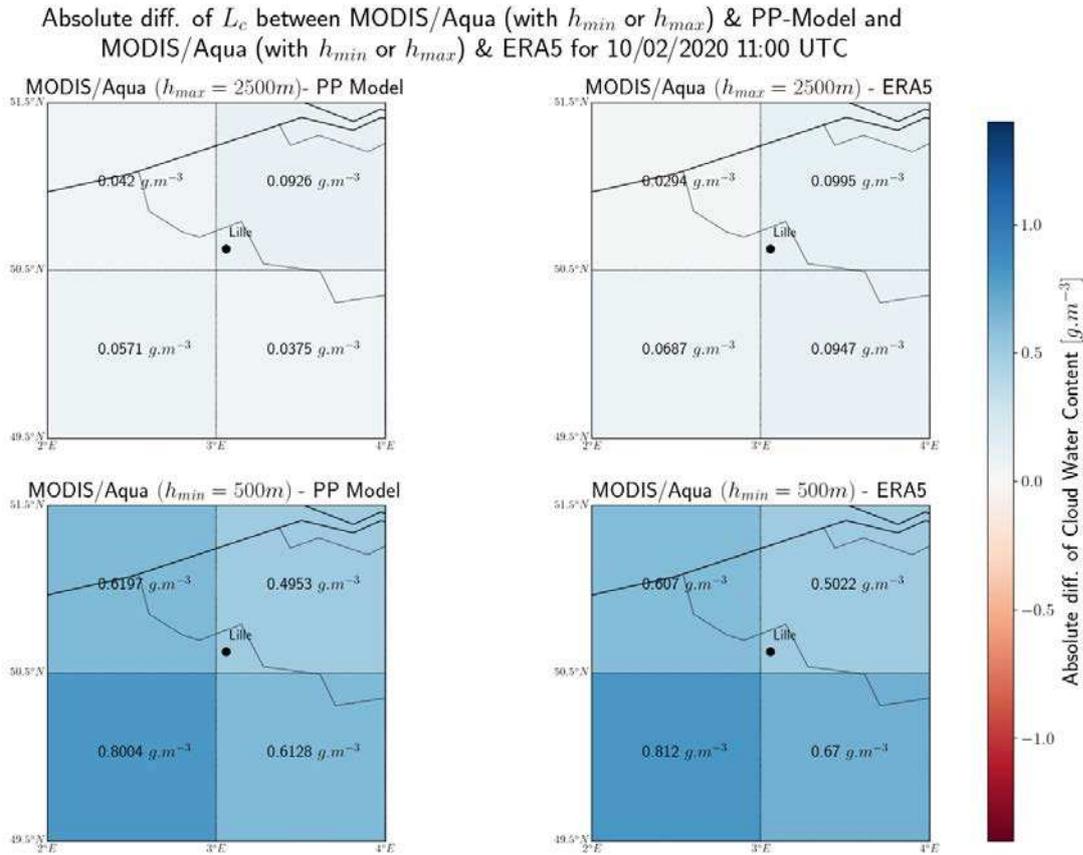


FIGURE D.6 – Identique à la Fig.D.2, pour le 02 octobre 2020 (11:00 UTC)

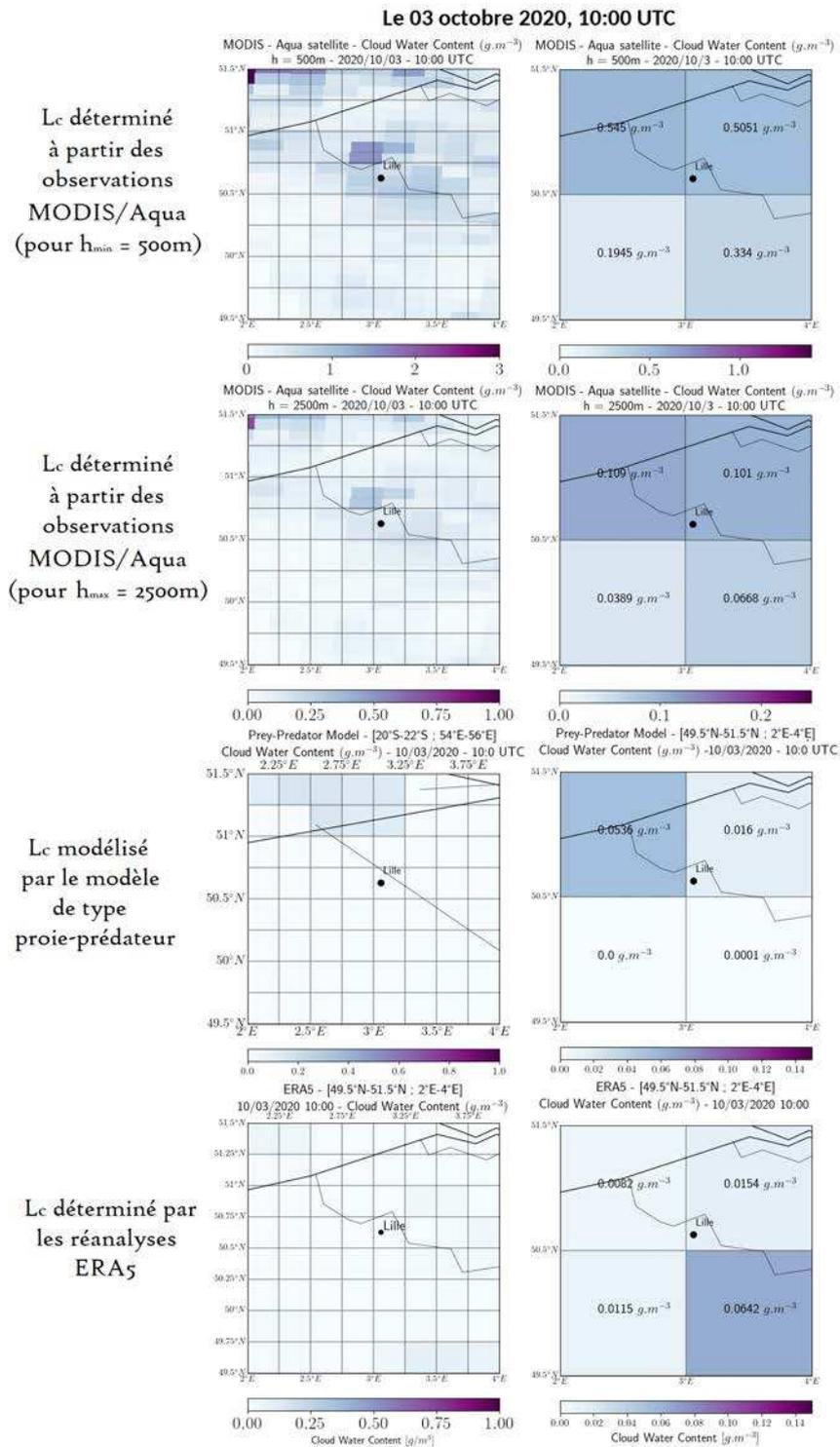


FIGURE D.7 – Identique à la Fig.D.1, pour le 03 octobre 2020 (10:00 UTC)

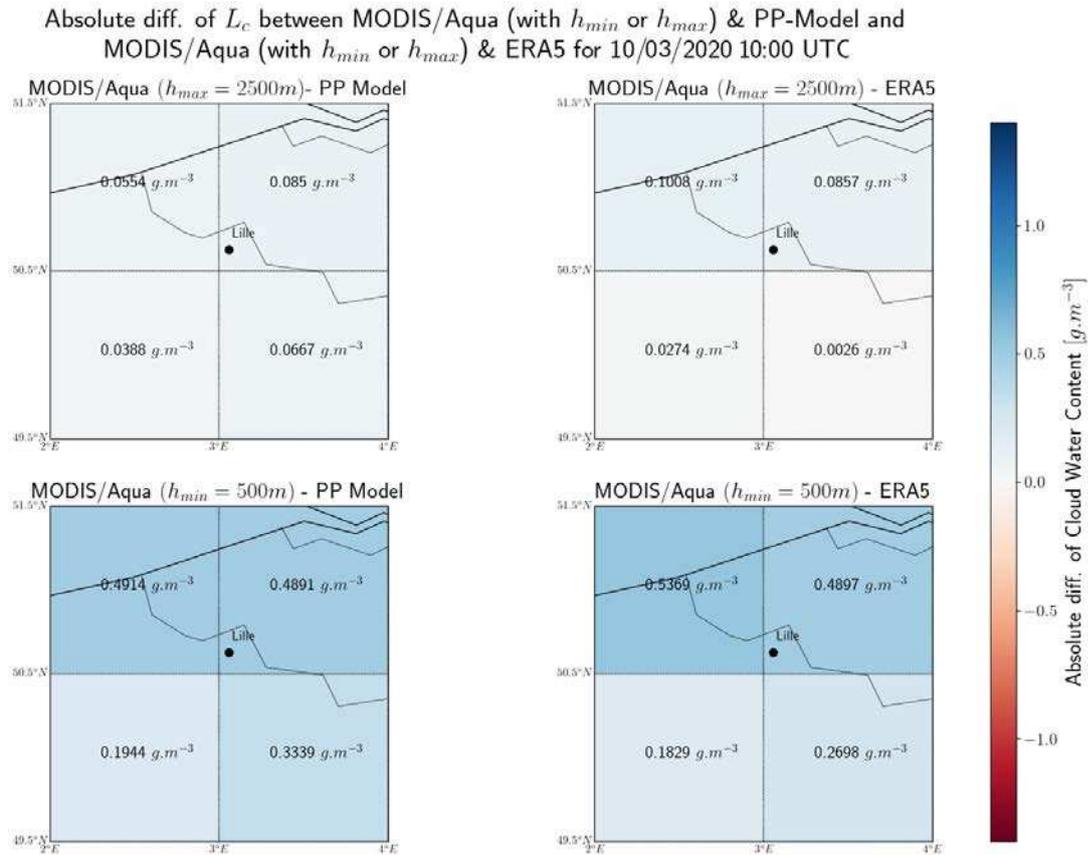


FIGURE D.8 – Identique à la Fig.D.2, pour le 03 octobre 2020 (10:00 UTC)

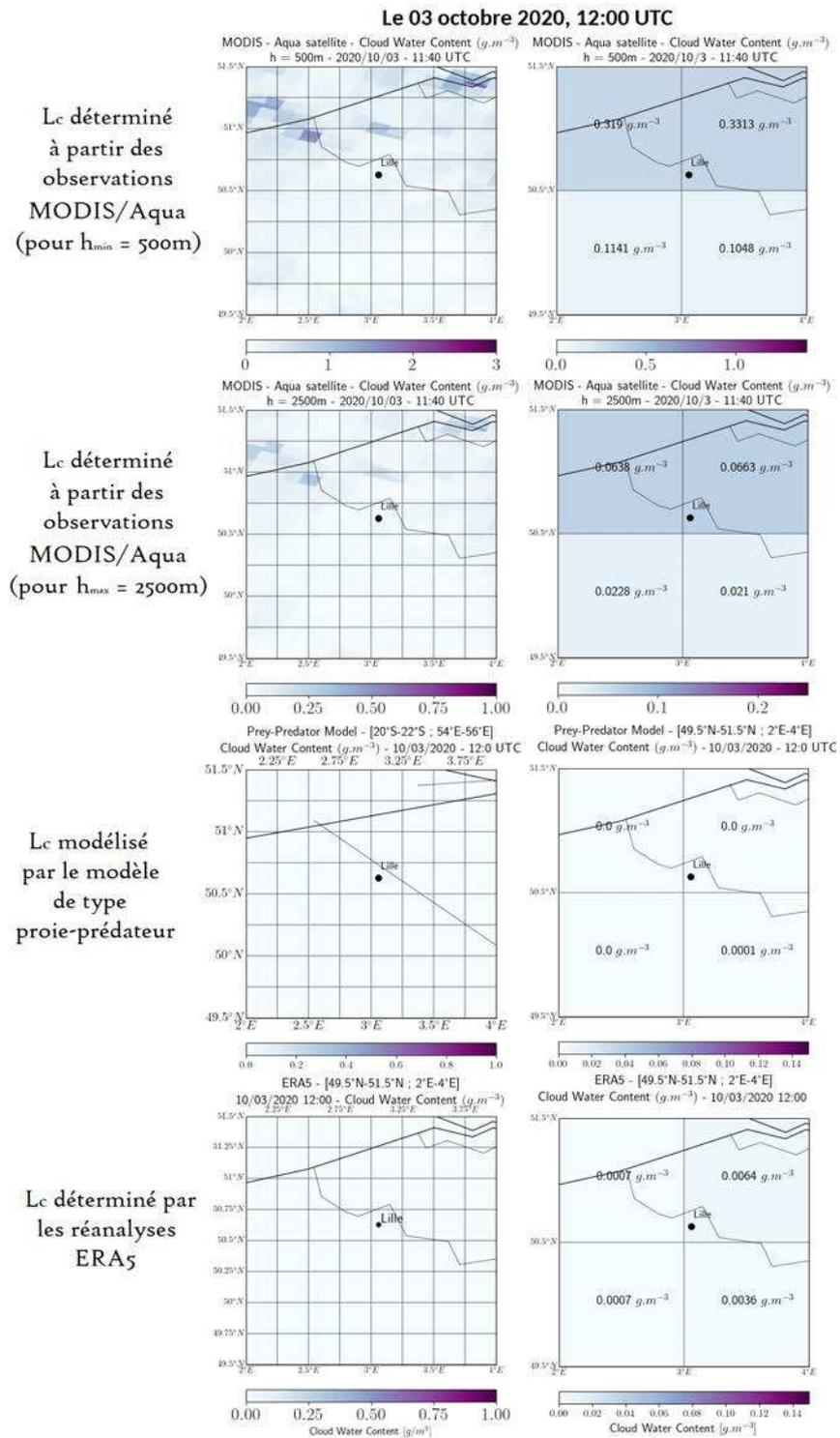


FIGURE D.9 – Identique à la Fig.D.1, pour le 03 octobre 2020 (12:00 UTC)

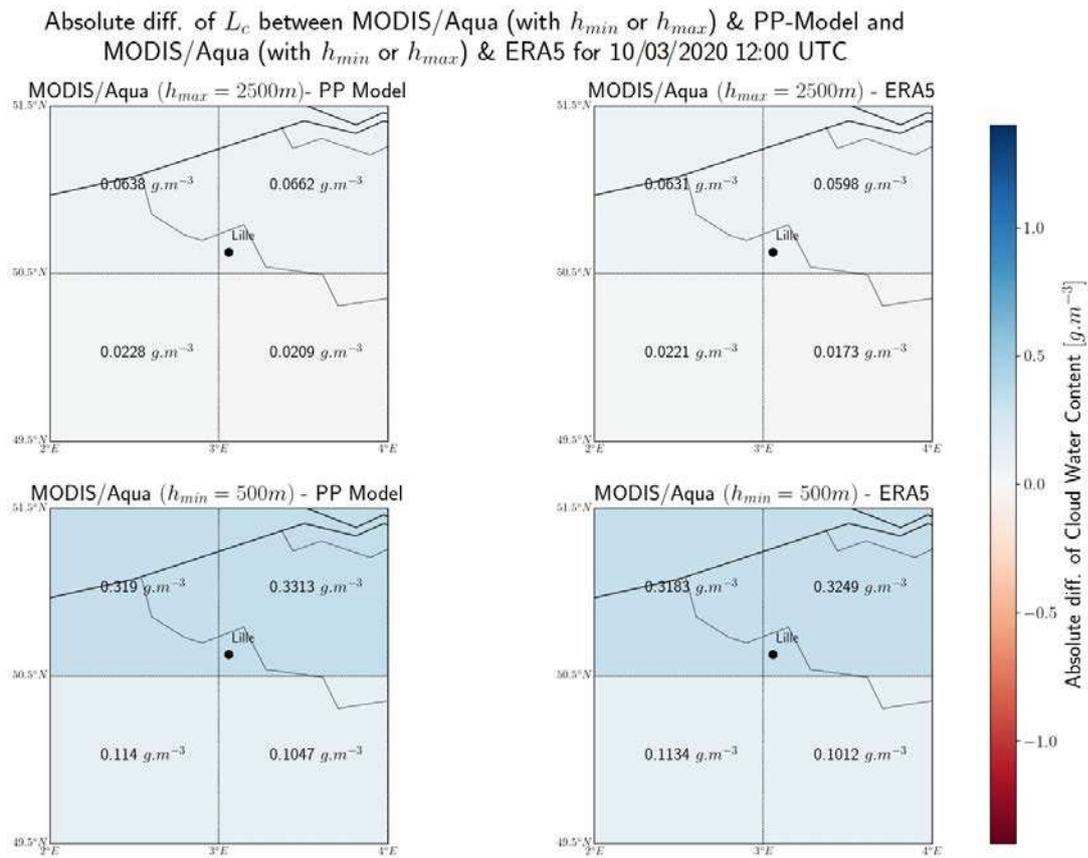


FIGURE D.10 – Identique à la Fig.D.2, pour le 03 octobre 2020 (12:00 UTC)

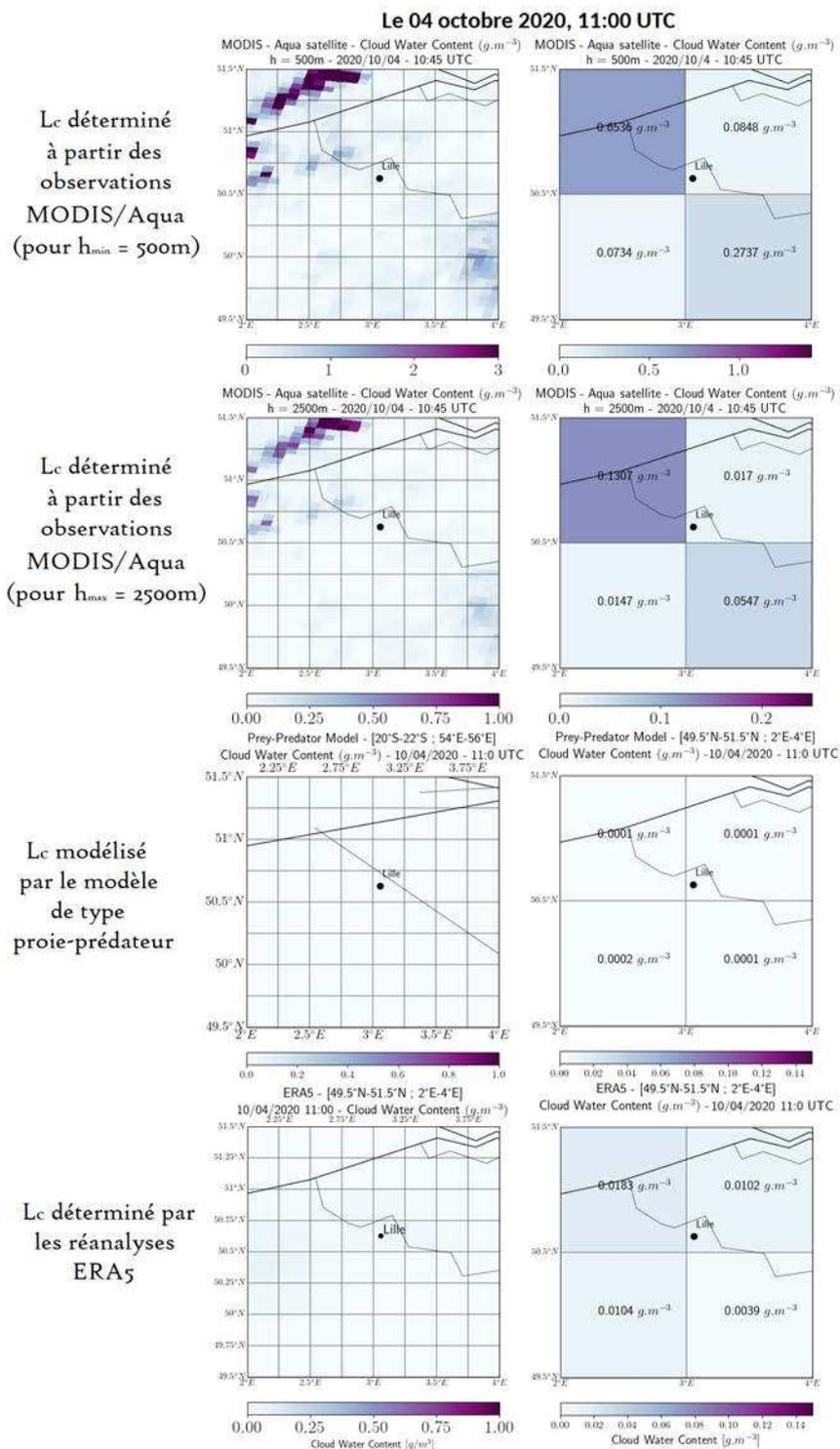


FIGURE D.11 – Identique à la Fig.D.1, pour le 04 octobre 2020 (11:00 UTC)

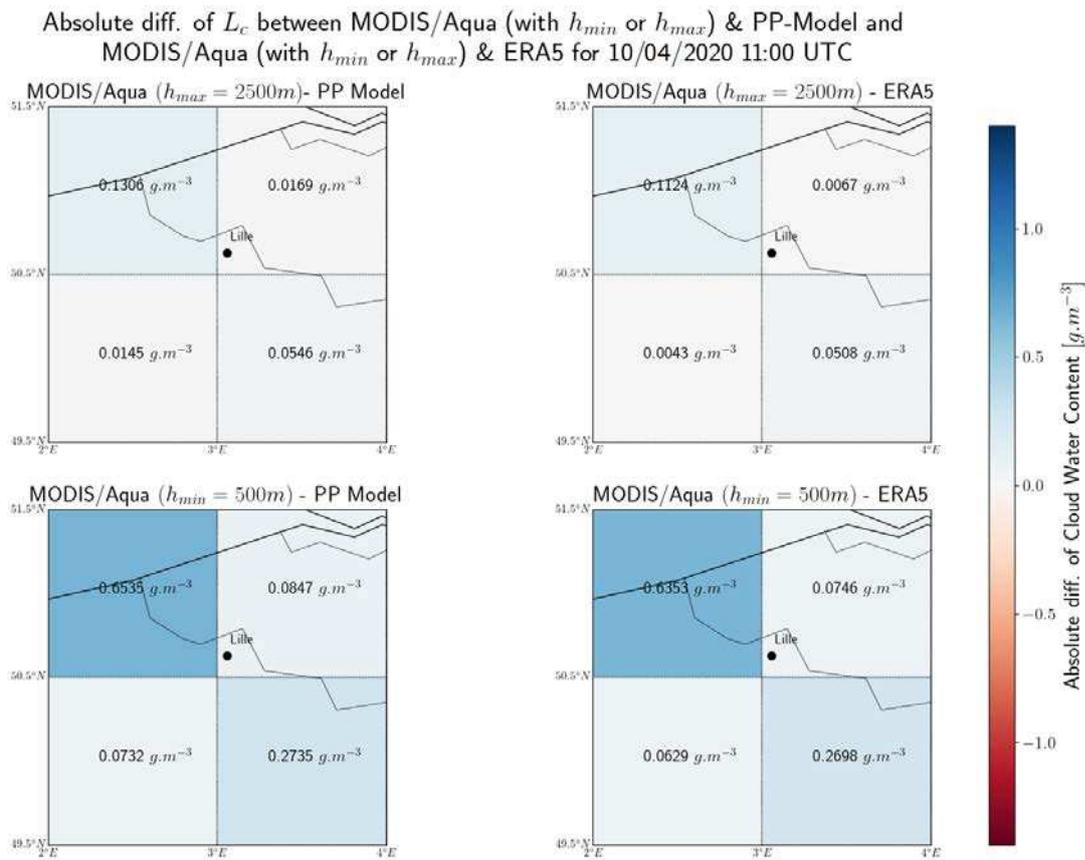


FIGURE D.12 – Identique à la Fig.D.2, pour le 04 octobre 2020 (11:00 UTC)

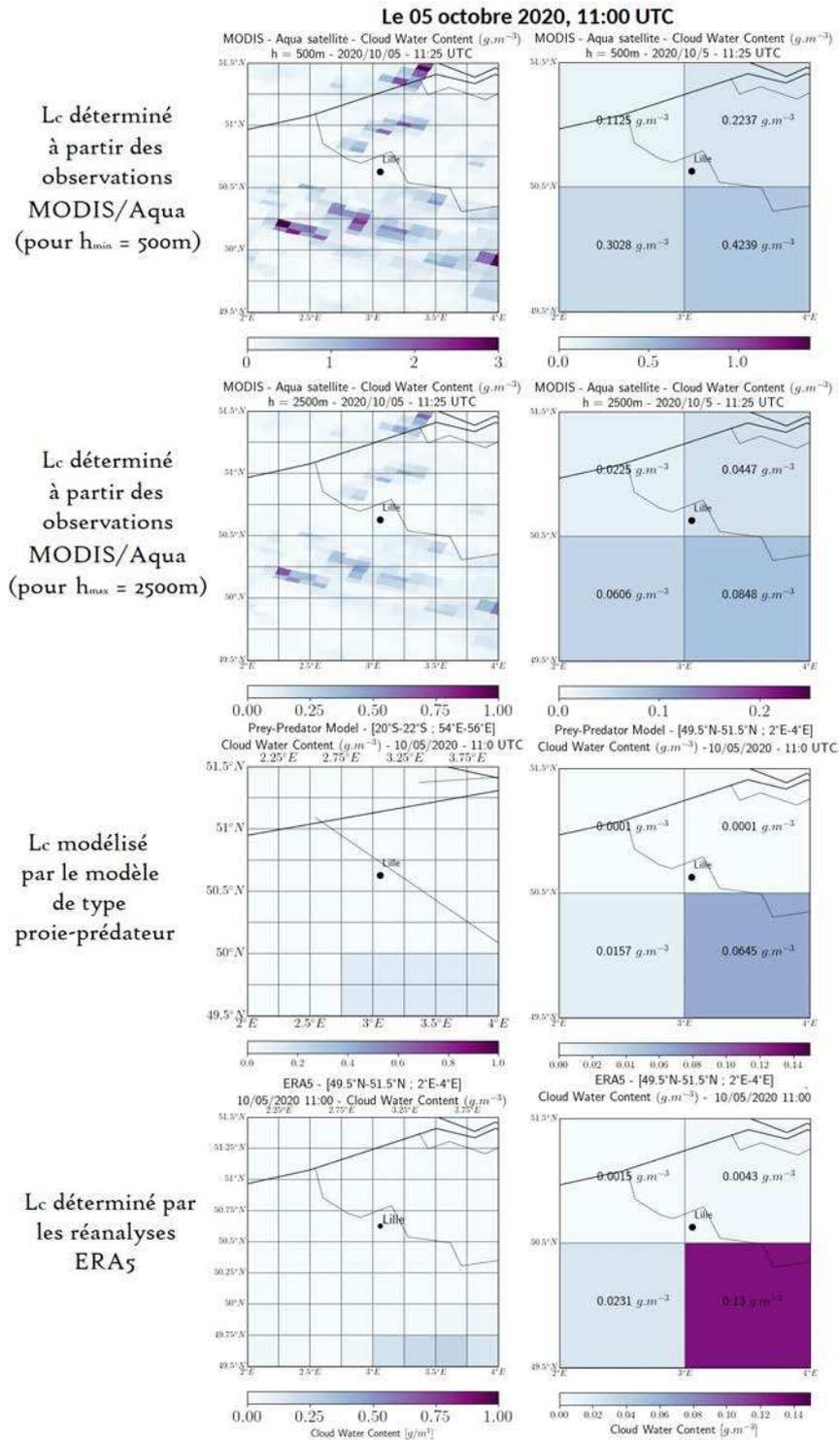


FIGURE D.13 – Identique à la Fig.D.1, pour le 05 octobre 2020 (11:00 UTC)

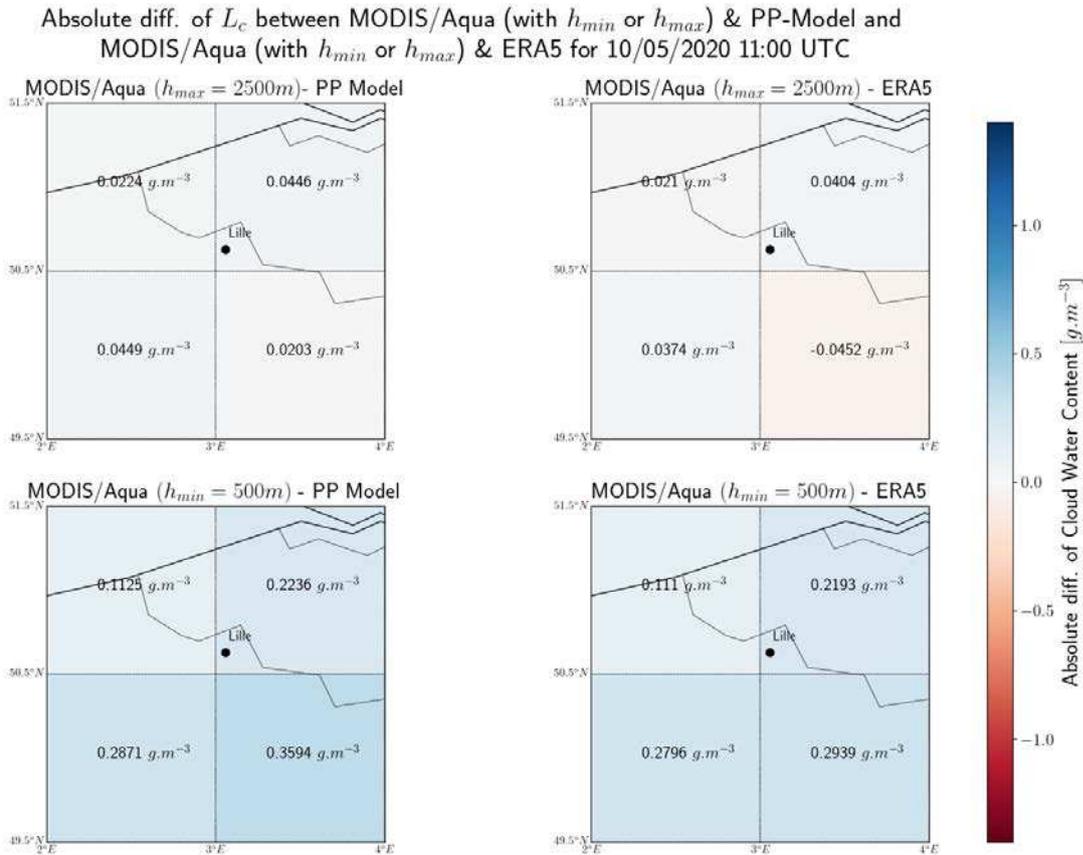


FIGURE D.14 – Identique à la Fig.D.2, pour le 05 octobre 2020 (11:00 UTC)

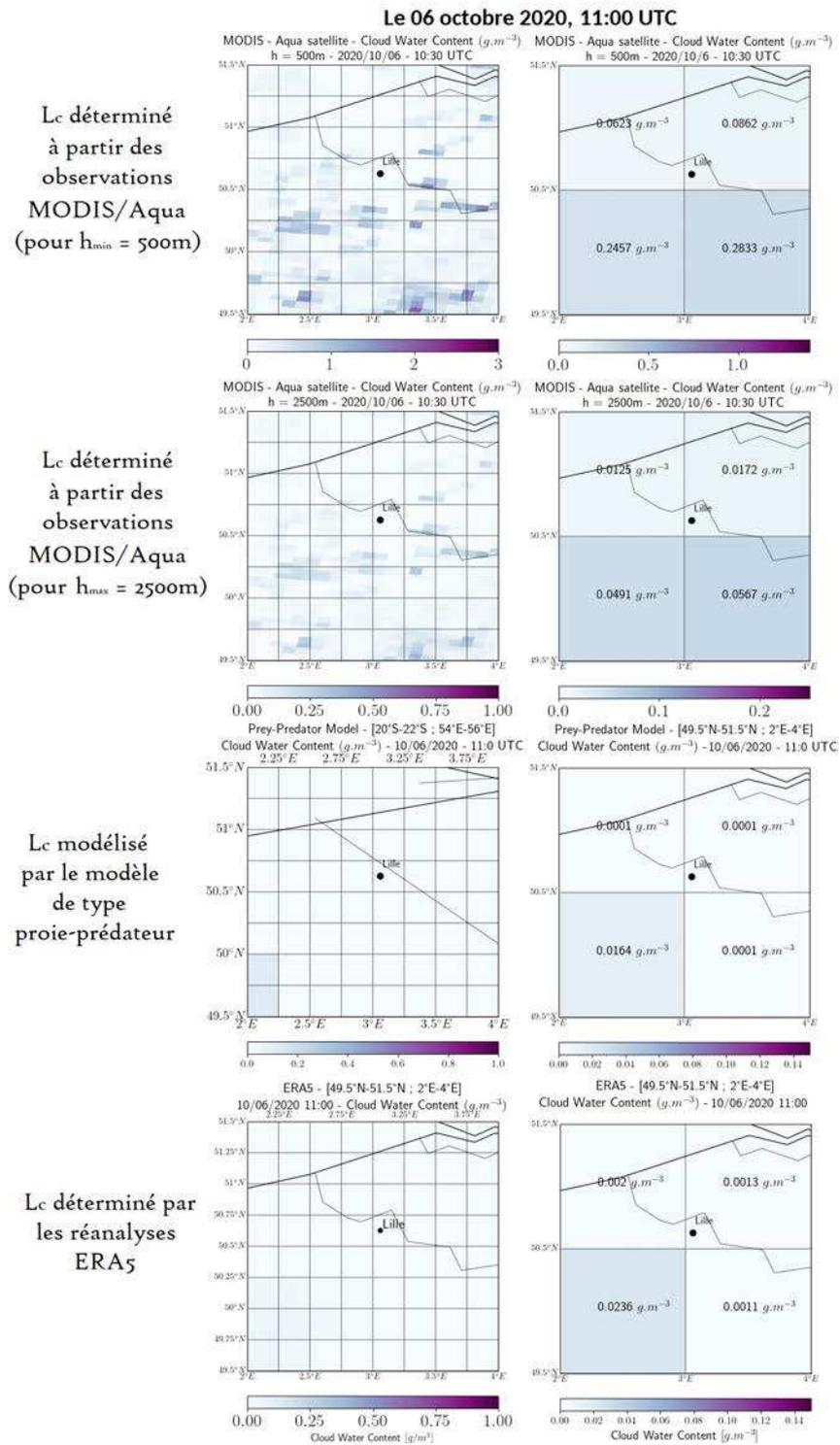


FIGURE D.15 – Identique à la Fig.D.1, pour le 06 octobre 2020 (11:00 UTC)

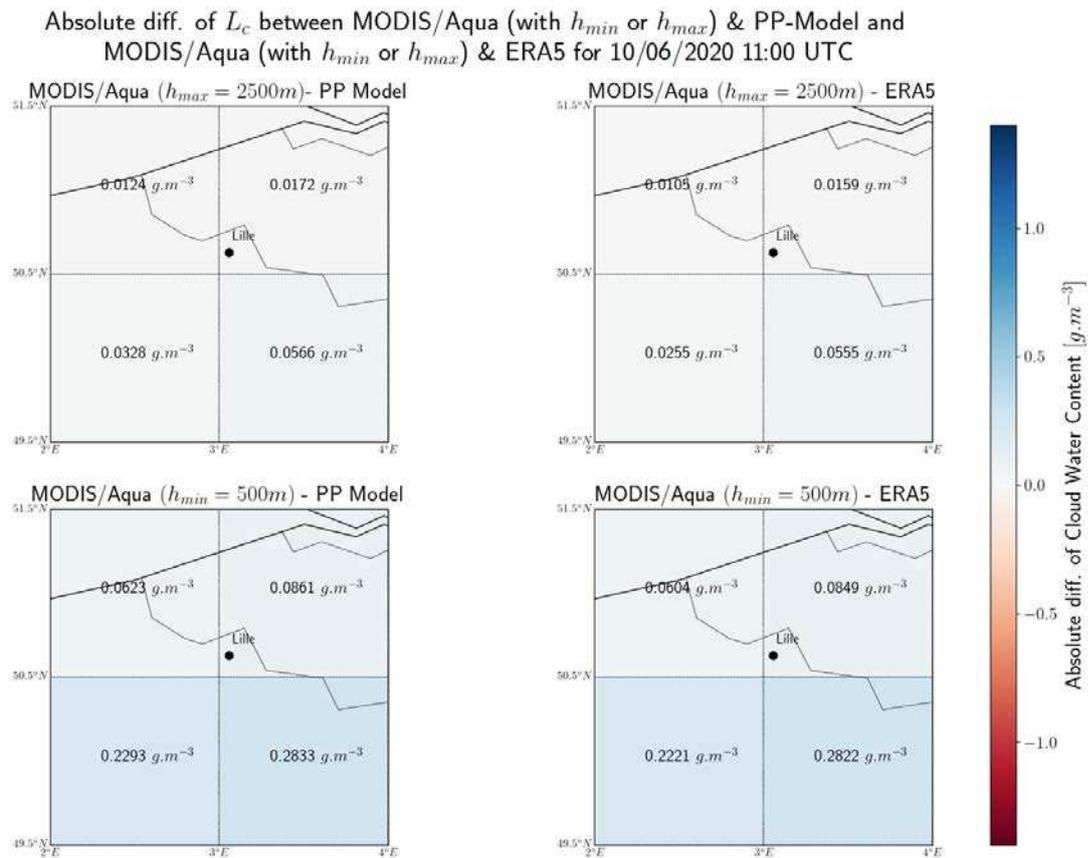


FIGURE D.16 – Identique à la Fig.D.2, pour le 06 octobre 2020 (11:00 UTC)

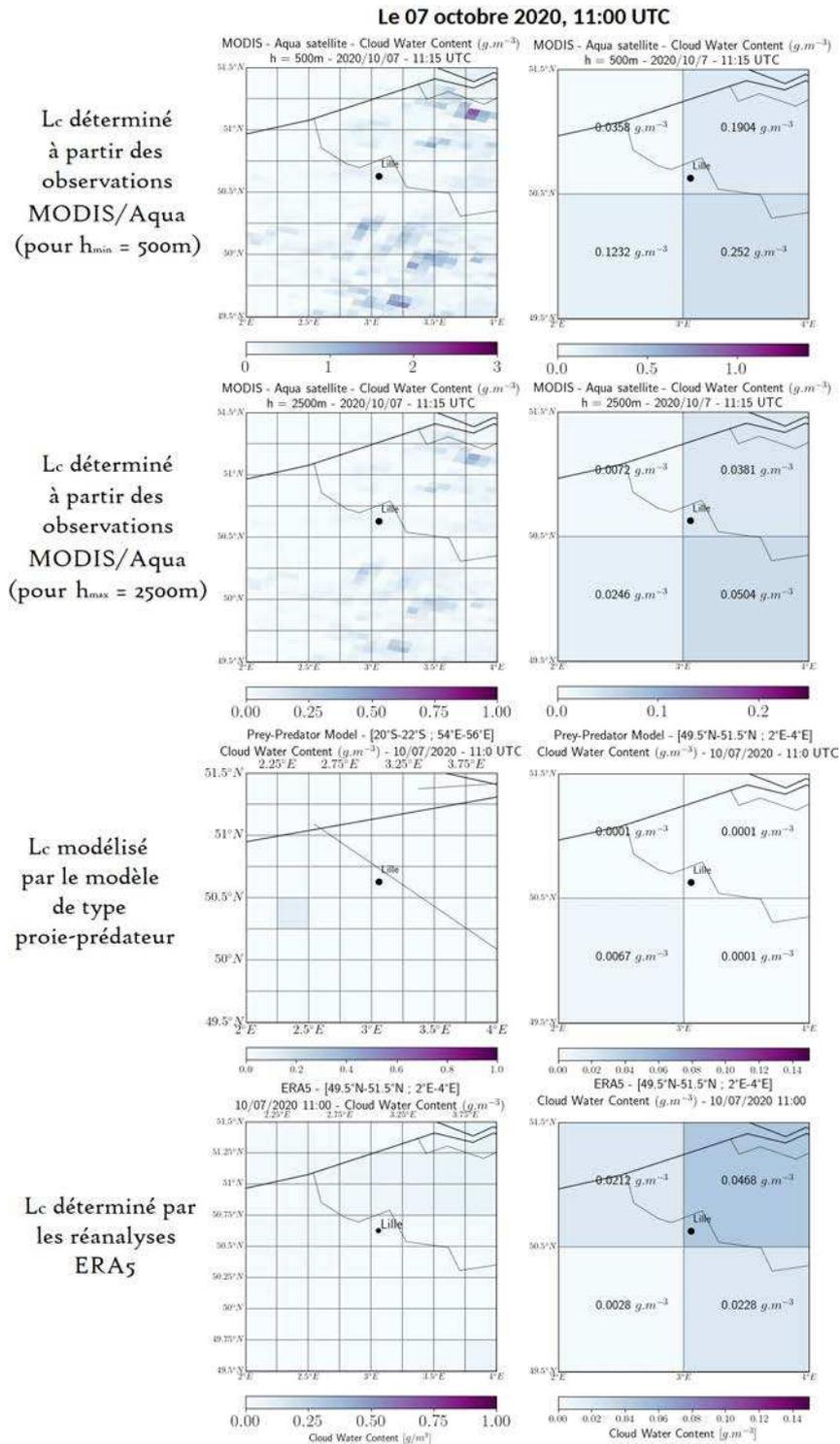


FIGURE D.17 – Identique à la Fig.D.1, pour le 07 octobre 2020 (11:00 UTC)

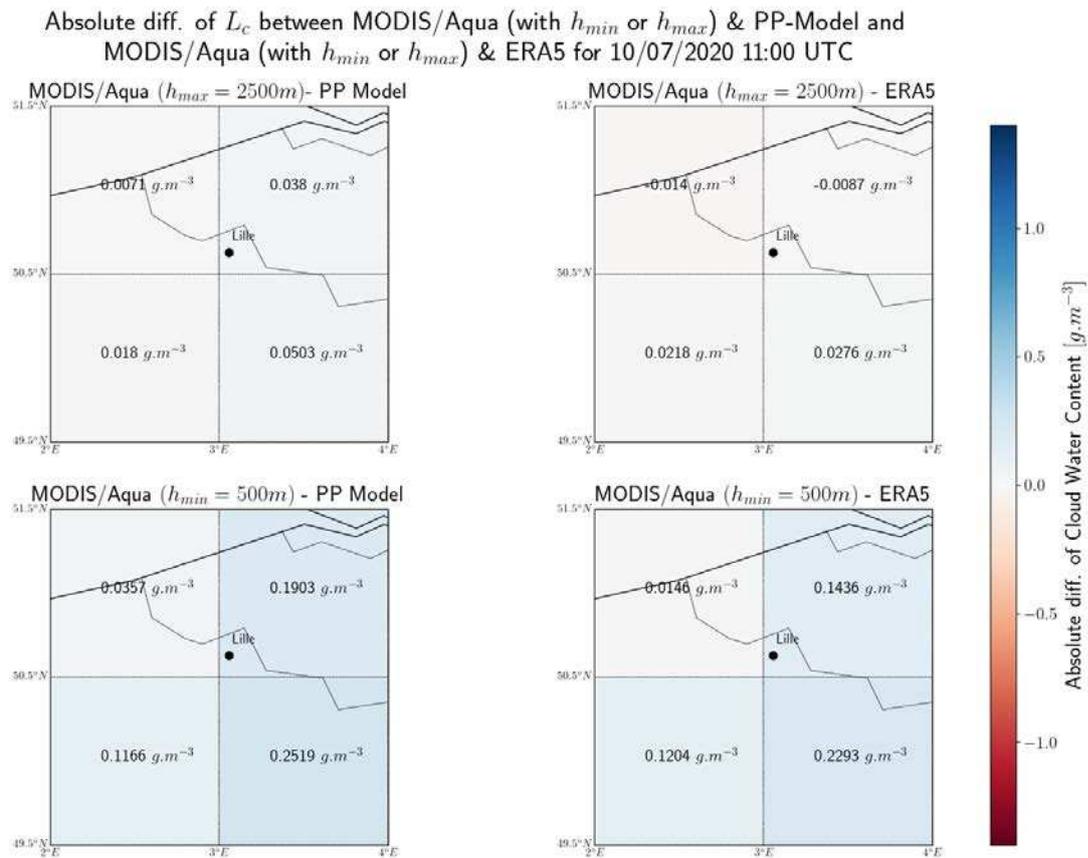


FIGURE D.18 – Identique à la Fig.D.2, pour le 07 octobre 2020 (11:00 UTC)

Résumé

Les régions ultrapropres en termes de contenu en aérosols (« pristines ») présentent un intérêt de premier plan dans l'étude du changement climatique car elles sont grandement épargnées par les pollutions d'origines anthropiques. Caractérisées par des épaisseurs optiques d'aérosols (AOD) inférieures à 0.1, elles sont des indicateurs précieux pour la composante naturelle du climat, laquelle reste toujours mal comprise car masquée par des contributions anthropiques. En raison de ces faibles AOD, les interactions aérosols-nuages peuvent présenter une sensibilité exacerbée : de petites variations de l'AOD ou de la quantité de vapeur d'eau peuvent avoir des conséquences importantes (non linéaires) sur la formation des nuages et leurs propriétés.

Le Sud de l'océan Indien, identifié comme région océanique pristine, a fait l'objet d'une campagne de mesures (campagne AEROMARINE) de plusieurs mois visant à collecter des données sur les aérosols marins (propriétés optiques, distribution verticale, ...) et les paramètres thermodynamiques (température, vapeur d'eau, ...) au large des côtes de l'île de La Réunion. L'analyse des données acquises durant cette campagne, notamment les AOD et l'humidité ambiante, permet de mieux comprendre l'évolution de ces paramètres dans un environnement « pristin ».

Les résultats obtenus et présentés dans cette thèse ont permis de caractériser la distribution verticale des aérosols naturels (marins). Ces données *in-situ* sont utiles pour l'élaboration de deux nouveaux modèles qui pourraient aider à mieux comprendre le système aérosols-vapeur d'eau-nuages. Le premier modèle que nous présentons est une modélisation simplifiée, à trois équations (trois degrés de liberté), fondée sur la dynamique de la compétition entre espèces (modèle de type proie-prédateur). Il permet de décrire les propriétés macroscopiques des interactions entre aérosols, vapeur d'eau et nuages chauds, sans considérer toute la complexité du système. Il est confronté à des mesures *in-situ*, les réanalyses ERA5 ou encore des observations satellites dans différentes situations météorologiques.

En outre, nous présentons un second modèle pour l'étude des champs de nuages à méso-échelle. Baptisé IOCIM (Indian Ocean Cloud Ising Model), ce modèle est de type *Ising*; il s'appuie sur la physique statistique dont on connaît l'efficacité pour l'étude des comportements collectifs dans la matière condensée.

Mots clés : AÉROSOLS MARINS, RÉGION OCÉANIQUE, OCÉAN INDIEN, VAPEUR D'EAU, NUAGES, INTERACTIONS AÉROSOLS-NUAGES, MODÉLISATION, MODÈLE PROIE-PRÉDATEUR, MODÈLE ISING (IOCIM), CAMPAGNE DE TERRAIN AEROMARINE

Abstract

Ultra-clean regions in terms of aerosol content (“pristine”) are of prime interest in the study of climate change because they are largely spared from anthropogenic pollution. Characterized by aerosol optical thicknesses (AOD) lower than 0.1, they are valuable indicators for the natural component of the climate, which is still poorly understood because it is masked by anthropogenic contributions. Due to these weak AODs, aerosol-cloud interactions can present a high sensitivity: small variations in the AOD or the amount of water vapour can have large (non-linear) consequences on the formation of clouds and their properties.

The Southern Indian Ocean, identified as a pristine ocean region, was the subject of a field campaign (AEROMARINE campaign) during several months aimed at collecting data on marine aerosols (optical properties, vertical distribution, etc...) and thermodynamic parameters (temperature, water vapour, etc.) off the coast of Reunion Island. The analysis of the data acquired during this campaign, in particular the AOD and the ambient humidity, makes it possible to better understand the evolution of these parameters in a “pristine” environment.

The results obtained, and presented in this thesis, have made it possible to characterize the vertical distribution of natural (marine) aerosols. These *in-situ* data are useful for the development of two new models that could help to better understand the aerosol-water vapour-cloud system. The first model we present is a simplified one, with three equations (three degrees of freedom), based on the dynamics of species competition (prey-predator like model). It makes it possible to describe the macroscopic properties of the interactions between aerosols, water vapour and warm clouds, without considering the whole complexity of the system. It is confronted with *in-situ* measurements, ERA5 reanalyses or even satellite observations in different meteorological situations.

In addition, we present a second model for the study of mesoscale cloud fields. Called IOCIM (Indian Ocean Cloud Ising Model), this model is of the *Ising* type; it is based on statistical physics, the effectiveness of which is known for the study of collective behavior in condensed matter.

Keywords: MARINE AEROSOLS, OCEAN REGION, INDIAN OCEAN, WATER VAPOR, CLOUDS, AEROSOL-CLOUD INTERACTIONS, MODELING, PREY-PREDATOR MODEL, ISING MODEL, AEROMARINE FIELD CAMPAIGN
