



HAL
open science

**Contenu et variabilité des aérosols de la stratosphère :
impact des éruptions volcaniques sur la période
2013-2019**

Mariam Tidiga

► **To cite this version:**

Mariam Tidiga. Contenu et variabilité des aérosols de la stratosphère : impact des éruptions volcaniques sur la période 2013-2019. Volcanologie. Université d'Orléans, 2021. Français. NNT : 2021ORLE2011 . tel-04264233

HAL Id: tel-04264233

<https://theses.hal.science/tel-04264233>

Submitted on 30 Oct 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 D'ORLÉANS

ÉCOLE DOCTORALE ÉNERGIE MATÉRIAUX SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS

LABORATOIRE : LPC2E

THÈSE présentée par :

Mariam TIDIGA

soutenue le : 13 Décembre 2021

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'Université d'Orléans**

Discipline/Spécialité : Sciences de l'Univers

Contenu et variabilité des aérosols de la stratosphère : impact des éruptions volcaniques sur la période 2013-2019

Thèse dirigée par :
Gwenaël BERTHET

HDR, Université d'Orléans, Laboratoire LPC2E

RAPPORTEURS :

Patrick RAIROUX
Slimane BEKKI

Professeur des Universités, Université Claude Bernard Lyon 1
Directeur de recherche CNRS, Laboratoire LATMOS

JURY :

Valéry CATOIRE
Slimane BEKKI
Gwenaël BERTHET
Fabrice JEGOU
Patrick RAIROUX
Solène TURQUETY
Jean-Paul VERNIER

Professeur des Universités, Université d'Orléans/LPC2E, Président
Directeur de recherche CNRS, Laboratoire LATMOS
Chargé de recherche, CNRS Orléans
Chercheur, CNRS Orléans
Professeur des Universités, Université Claude Bernard Lyon 1
Professeure des Universités, LMD/IPSL
Associate Professor, NASA

Remerciements

Un travail de thèse, bien qu'étant une aventure personnelle formidablement enrichissante, ne peut être mené sans le soutien et la confiance d'un grand nombre de personnes. C'est avec un profond sentiment de gratitude que j'exprime ici mes remerciements à toutes les personnes qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.

J'adresse toute ma gratitude à mon directeur de thèse, Gwenaël Berthet pour m'avoir accordé l'opportunité d'apprendre à ses côtés. Ses disponibilités presque instantanées, que ce soit sur des questions administratives, scientifiques à travers ses différentes propositions, les relectures et corrections des différentes publications, ont été un facteur essentiel de la réussite de ce travail. Je remercie Fabrice Jegou, mon co-encadrant, pour les conseils et astuces en modélisation, les relectures et corrections des différentes publications.

Je souhaite remercier les différents membres du jury de ma thèse de m'avoir consacré leur temps. Merci à Valéry Catoire d'avoir accepté d'être le président. Aux deux rapporteurs, Patrick Rairoux et Slimane Bekki pour leurs nombreuses remarques et conseils qui ont permis d'améliorer ce manuscrit. Aux autres membres du jury, Solène Turquety, Jean Paul Vernier, pour leurs remarques, suggestions et questions.

Les travaux de cette thèse ont été réalisés au sein du laboratoire LPC2E. J'utilise ce canal pour remercier toutes les personnes qui y travaillent pour leurs aides multiformes. Merci à la direction du laboratoire, son Directeur, Dominique Delcourt. Je remercie Gisèle et Christophe pour m'avoir fait confiance en me confiant des missions d'enseignement à l'Université d'Orléans et à l'OSUC. Merci à Claire et Xavier pour leur accompagnement et les précieux conseils comme membres du

comité de suivi de ma thèse. Merci à Nathalie pour les astuces informatiques et l'art de la diplomatie dans les mails. Je suis reconnaissante envers le Ministère de l'Enseignement et de la Recherche et au projet Voltaire pour le financement de ces travaux.

Je salue l'accompagnement de mes collègues de l'Agence pour la Sécurité de la Navigation Aérienne en Afrique et à Madagascar (ASECNA). Je voudrais particulièrement remercier le Directeur Général de l'ASECNA, Mohamed Moussa, pour m'avoir accordé la disponibilité. Je remercie sincèrement Emmanuel Compaoré et Louis Bakienon pour leur engagement et leur soutien sans faille. Je remercie tous mes collègues des Services Météo du Burkina Faso.

Je remercie Ulrich Diasso pour son amitié et son soutien à toute épreuve, merci d'être toujours là pour les autres. Merci au doyen Oumarou Ouédraogo pour ses conseils qui m'ont toujours été d'une grande utilité.

Je remercie également mes amis(es) et mes proches au Burkina Faso, au Niger et en France, Zara Ouedraogo, Balahaissa Zoungrana, Adama Ouedraogo, Assettou Ouattara, Aissata Bande, Sali Ouattara, Hyacinthe Naré, Sandrine Konkisre, Adama Nacanabo, Clementine Balma, Denise Sawadogo, Amos Compaoré, Adèle Sawadogo, Armelle Naré, Ami Djibo, Ky Delali, Ismael Dondassé. Votre amitié et votre soutien permanent m'ont procuré réconfort et courage dans les moments les plus éprouvants de ces dernières années. J'adresse ici toute ma gratitude à mon grand frère Issaka Ouattara et son épouse à Chateauneuf en Thymerais. Merci Issaka pour tes conseils et tout le soutien famille dont j'ai bénéficié.

A la famille Idjaton, Kouboura, Tunde, et leur mère Léa Catherine Agboton, j'adresse toute ma reconnaissance. Merci à Fabrice Atrevi et Kouboura pour la relecture de mon document et l'aide pour solutionner les bugs de compilation de Latex.

Durant ces longues années d'étude, j'ai pu m'appuyer sur le soutien sans faille de ma grande famille au Burkina qui a toujours su m'encourager. Je remercie plus particulièrement ma mère, mes sœurs et frères (Fati, Sali, Alima et Ramatou, Salif), ont toujours été d'un optimisme à toute épreuve. Enfin, je dédie ces derniers mots à mon père et mon grand frère qui, j'en suis sûr, sont fiers de moi.

Résumé

Le réchauffement de la planète au début du XXI^{ème} siècle a été surestimé par presque toutes les simulations de l'évolution historique du climat dans la dernière phase du projet de comparaison des modèles couplés (Coupled Model Intercomparison Project (CMIP6)). Ces écarts entre les taux de réchauffement simulés et observés ont été attribués à plusieurs facteurs, dont les changements temporels des émissions naturelles et anthropiques, l'irradiation solaire et la variabilité de la charge en aérosols stratosphériques.

Les éruptions volcaniques induisent une "variabilité persistante" dans la couche d'aérosols stratosphériques. Le dioxyde de soufre (SO_2) provenant d'éruptions volcaniques explosives forme des particules de sulfate qui réfléchissent la lumière solaire vers l'espace, exerçant un effet de réchauffement dans la stratosphère et de refroidissement dans la troposphère. Depuis la dernière éruption majeure du Mont Pinatubo en 1991, les observations ont montré que la stratosphère a été régulièrement impactée par des éruptions volcaniques de magnitude modérée à l'échelle de l'hémisphère, mais ces événements ont été plus faiblement documentés dans les tropiques.

Les observations satellitaires sur la période 2013-2019 montrent une augmentation de l'épaisseur optique des aérosols dans la haute Troposphère et la basse Stratosphère (Upper Troposphere Lower Stratosphere (UTLS)) tropicale. Cette période a été impactée par des événements volcaniques importants (Kelud, Calbuco, Ambae, Raikoke et Ulawun). Les observations seules ne permettent pas de répartir de manière concluante la source de cette augmentation entre les émissions volcaniques et autres (naturelles et anthropiques). Ainsi, des simulations par le modèle global WACCM-CARMA incluant les cycles chimiques et microphysiques du soufre, ont été effectuées durant nos travaux de thèse pour étudier la variabilité de la teneur en aérosols stratosphériques dans les tropiques sur cette période.

Les simulations de base, utilisant les émissions anthropiques de SO_2 et naturelles d'oxysulfure de carbone (OCS), montrent le cycle annuel de la couche d'aérosol de fond. Les comparaisons des simulations de base, avec les observations satellitaires montrent une concordance dans les profils d'extinction dans l'UTLS tropicale pour des années 2013 et 2017, années presque non impactées par les éruptions.

Pour explorer les tendances décennales, les expériences du modèle sont guidées par les informations disponibles dans la littérature et par les observations des satellites. Le modèle reproduit l'occurrence et l'étendue verticale des panaches dérivés des observations satellitaires mais montre quelques divergences pour les valeurs absolues de l'extinction et de l'épaisseur optique des aérosols de la stratosphère (Stratospheric Aerosols Optical Depth (SAOD)), en particulier pour les éruptions d'Ambae, Raikoke et Ulawun. Des observations lidar au sol à l'Observatoire du Maïdo sur l'île de la Réunion (20.5°S , 55.5°E) et des instruments optiques lancés sous ballons depuis l'île de la Réunion et près de Darwin, au nord de l'Australie (12.4°S , 130.8°E) sont aussi utilisés pour évaluer les calculs du modèle en termes de contenu en aérosols, de distribution verticale, de propriétés optiques et microphysiques, de transport et de temps de résidence. Ces comparaisons montrent des résultats contrastés et illustrent notamment des problèmes de résolutions horizontales et verticales différentes entre les ensembles de données. Par exemple, un bon accord est obtenu avec les sondes de rétrodiffusion COBALD et le compteur de particules WOPC de l'Université du Wyoming pour cas du Kelud. Pour l'éruption du Calbuco, de fortes différences sont montrées entre les simulations et les mesures du compteur d'aérosols LOAC à un stade précoce de la propagation du panache (4 semaines après l'injection initiale) alors qu'un bon accord est observé à la période où le panache s'est répandu dans l'hémisphère sud (4 mois après). Les caractéristiques du transport méridional de panache extratropicale (Raikoke) sont simulées par le modèle mais pas de manière robuste en termes de valeurs absolues de SAOD.

Abstract

Global warming in the early 21st century was overestimated by almost all simulations of historical climate change in the latest phase of the Coupled Model Intercomparison Project (CMIP6). These discrepancies between simulated and observed warming rates have been attributed to several factors, including temporal changes in natural and anthropogenic emissions, solar irradiance and variability in stratospheric aerosol loading. Volcanic eruptions induce 'persistent variability' in the stratospheric aerosol layer. Sulphur dioxide from explosive volcanic eruptions forms sulphate particles that reflect sunlight back to space, exerting a warming effect in the stratosphere and a cooling effect in the troposphere. Since the last major eruption of Mount Pinatubo in 1991, observations have shown that the stratosphere has been regularly impacted by volcanic eruptions of moderate magnitude on a hemispheric scale, but these events have been less well documented in the tropics.

Satellite observations over the period 2013-2019 show an increase in aerosol optical depth in the tropical Upper Troposphere and Lower Stratosphere (UTLS). This period was impacted by major volcanic events (Kelud, Calbuco, Ambae, Raikoke and Ulawun). Observations alone are unable to conclusively partition the source of this increase between volcanic and other emissions (natural and anthropogenic). Thus, simulations by the global model WACCM-CARMA including chemical and microphysical cycles of sulphur were performed during our research to study the variability of stratospheric aerosol content in the tropics over this period. The baseline simulations, using anthropogenic SO₂ emissions and an OCS boundary layer, show the annual cycle of the Junge layer and its variability. Comparisons of the baseline simulations with satellite observations show agreement in

the extinction profiles of tropical UTLS for years such as 2013 and 2017, years almost unaffected by eruptions.

To explore decadal trends, the model experiments are guided by information available in the literature and by satellite observations of the injected SO₂ load, altitude and time of injection. Zonally, the model reproduces the occurrence and vertical extent of the plumes derived from satellite observations but shows some discrepancies for the absolute values of stratospheric aerosol extinction and optical depth (SAOD), in particular for the Ambae, Raikoke and Ulawun cases. Ground-based lidar observations at the Maïdo Observatory on Reunion Island (20.5°S, 55.5°E) and optical instruments launched using balloons from Reunion Island and near Darwin, northern Australia (12.4°S, 130.8°E) are also used to assess the model accuracy in terms of aerosol content, vertical distribution, optical and microphysical properties, transport and residence time of the volcanic plumes. These comparisons show contrasting results and may in particular illustrate problems of different horizontal and vertical resolutions between the data sets. For instance, good agreement is obtained with the COBALD backscatter sonde and the WOPC (from University of Wyoming) particle counter for the Kelud case. For the Calbuco eruption, strong differences are shown between the simulations and the LOAC optical particle counter measurements at an early stage of the plume propagation (~ 4 weeks after the initial injection) while a good agreement is observed at the time when the plume has spread in the southern hemisphere (~ 4 months after). The meridional transport characteristics of plumes emitted from extra-tropical latitudes (Raikoke case) are captured by the model but not robustly in terms of absolute SAOD.

Sommaire

Sommaire	v
Liste des tableaux	ix
Liste des figures	x
Introduction	1
1 Les aérosols et la dynamique de la haute troposphère et de la basse stratosphère	7
1.1 Les Aérosols atmosphériques	9
1.1.1 Classification des aérosols	9
1.1.2 Caractérisation des aérosols	11
1.1.2.1 caractérisation des aérosols : leur forme	11
1.1.2.2 La distribution en taille des aérosols	12
1.1.2.3 caractérisation des aérosols : leur composition chimique	15
1.1.3 Les propriétés optiques	17
1.1.3.1 Épaisseur optique et coefficient d'Ångström	19
1.1.4 Les différents types de modèles d'aérosols	19
1.1.5 Effets des aérosols sur le climat	20
1.1.5.1 Effets directs	20
1.1.5.2 Effets indirects	21
1.2 La dynamique dans la haute troposphère et la basse stratosphère . .	22
1.2.1 Troposphère et Stratosphère : deux régions différentes	23
1.2.2 Tropopause thermique et tropopause dynamique	24
1.2.3 La tropopause vue comme une couche de transition : la TTL	27

1.2.4	La circulation de Brewer Dobson	28
1.2.5	L'oscillation quasi-biennale (QBO) et l'oscillation semi-annuelle	29
1.2.6	Le vortex polaire	31
1.2.7	Les ondes de Rossby et de gravité	31
1.2.8	Les réchauffements stratosphériques soudains	32
2	Les aérosols stratosphériques : processus pertinents et méthodes d'observation	35
2.1	Les aérosols stratosphériques	36
2.1.1	Les aérosols sulfatés de la stratosphère	36
2.1.1.1	Généralités	36
2.1.1.2	La couche de Junge	38
2.1.1.3	Les précurseurs gazeux	39
2.1.1.4	Eruptions volcaniques	42
2.1.2	Autres sources de particules stratosphériques	44
2.1.2.1	Les nuages stratosphériques polaires	44
2.1.2.2	Les cendres volcaniques	46
2.1.2.3	Détection de poussières interplanétaires dans la strato- sphère	47
2.1.2.4	Détection des aérosols carbonés dans la stratosphère	48
2.1.3	Les propriétés microphysiques des aérosols sulfatés	51
2.1.3.1	Nucléation, condensation et Coagulation	51
2.1.3.2	Evaporation et Sédimentation	52
2.1.3.3	Distribution en taille	53
2.2	Instruments et techniques de mesure des aérosols	54
2.2.1	Les mesures in situ	55
2.2.1.1	Compteurs optiques de particules utilisés au LPC2E	55
2.2.1.2	Sondes à rétrodiffusion	57
2.2.2	Les mesures par télédétection	57
2.2.2.1	La télédétection au sol	57

2.2.2.2	Téledétection spatiale du dioxyde de soufre et d'aé- rosols	58
3	Modélisation des aérosols stratosphériques	65
3.1	Description du modèle	66
3.1.1	Fonctionnement général de CESM1	66
3.1.2	Le modèle couplé WACCM-CARMA	67
3.2	La configuration du modèle et le post traitement	71
3.2.1	Configuration du modèle	71
3.2.2	Le post-traitement	73
4	Analyse du cycle annuel et des tendances des aérosols strato- sphériques	77
4.1	Climatologie des aérosols	78
4.1.1	Aérosols de fond	78
4.1.2	Éruptions répertoriées sur la période 2013-2019	83
4.1.2.1	Kelud	83
4.1.2.2	Calbuco	84
4.1.2.3	Ambae	85
4.1.2.4	Raikoke et Ulawun	88
4.2	Étude des panaches volcaniques avec WACCM-CARMA, observa- tions satellites, lidar et ballons	90
4.2.1	Injections volcaniques dans WACCM-CARMA	90
4.2.2	Évolution du contenu en dioxyde de soufre et de l'épaisseur optique hémisphérique	92
4.2.2.1	Évolution du contenu en dioxyde de soufre	92
4.2.2.2	Évolution de l'épaisseur optique stratosphérique SAOD par bandes de latitude	96
4.2.3	Variabilité spatio-temporelle des panaches d'aérosols sulfatés .	97
4.2.3.1	Variation latitudinale du signal des aérosols	97
4.2.3.2	Variation du contenu en aérosols aux latitudes tro- picales	99

4.2.3.3	Cas du Kelud	101
4.2.3.4	Cas du Calbuco	105
4.2.3.5	Cas du Ambae	113
4.2.3.6	Cas du Raikoke et du Ulawun	116
4.2.4	Bilan du chapitre	120
	Discussion générale et conclusion	121
	Publications	127
	Bibliographie	129

Liste des tableaux

1.1	Exemple de distribution en taille des aérosols [Seinfeld and Pandis, 2016]	12
1.2	Concentration moyenne de l'aérosol inorganique à Karlsruhe (Allemagne)	15
2.1	Liste des éruptions de $VEI \geq 4$ ayant eu lieu aux latitudes tropicales et latitudes moyennes de l'hémisphère nord répertoriées par le Smithsonian Institution Global Volcanism Program (https://volcano.si.edu) sur la période 1991-2015.	45
2.2	Instruments satellitaires de mesure des aérosols sulfatés	63
3.1	Composante CESM et Machine utilisés pour nos simulations	67
4.1	caractéristiques d'injection des principales éruptions volcaniques dans le modèle WACCM-CARMA. D'autres éruptions plus mineures sont également prises en compte dans la simulation en suivant la base mise à jour des événements volcaniques de [Mills et al., 2016]	91
4.2	Temps de résidence pour le SO_2 dérivés des simulations WACCM-CARMA et des observations IASI. Par souci de comparaison avec les données satellitaires, des limites de détection de 0,3 et 0,1DU sont appliquées	95

Liste des figures

1.1	Évolution des particules depuis la nucléation jusqu'à la formation de noyaux de condensation	10
1.2	Exemple d'histogramme des concentrations en nombre de particules d'aérosols en fonction de la gamme de tailles pour la distribution du tableau 1.1 [Seinfeld and Pandis, 2016]	13
1.3	Résumé de l'évolution des forçages radiatifs moyens des interactions aérosol-rayonnement à partir des rapports du GIEC, lorsqu'ils sont disponibles, de FAR (1765-1990), SAR (1750-1992), TAR (1750-1998), AR4 (1750-2005) et AR5 (1750-2011).	21
1.4	Profil de température montrant la structure en couches de l'atmosphère	23
1.5	Coupe latitude-altitude pour janvier 1993 montrant la moyenne zonale de la température potentielle et de la température	26
1.6	Diagramme schématique des processus de transport et de mélange dans la stratosphère de l'hémisphère d'hiver	28
1.7	Distribution de la moyenne mensuelle désaisonnalisée du vent zonal en fonction de l'altitude, observée au-dessus de la région équatoriale entre 1964 et 1990.	30
2.1	schématisation des particules stratosphériques, de leur transport, des flux et des principales sources	36
2.2	Coefficient de rétrodiffusion intégré à 694.3 nm mesuré par lidar à Garmish (Allemagne) depuis 1 km au-dessus de la tropopause jusqu'au sommet de la couche. La position dans le temps des principales éruptions est indiquée par des flèches	39
2.3	Bilan global du soufre atmosphérique selon [Sheng et al., 2015]	40

- 2.4 Evolution de la moyenne mensuelle du rapport d’extinction (défini par le rapport entre extinction particulaire et moléculaire) mesuré à 525 *nm* par le spectromètre à occultation solaire SAGEII (période 1985-2005) et le lidar spatial CALIOP/Calipso (période 2006-2010) entre 20°S et 20°N. Les signaux des panaches des volcans Nevado del Ruiz (Ne ; 5°S) et Pinatubo (Pi ; 15°N) sont particulièrement visibles à partir respectivement de 1985 et 1991 43
- 2.5 Série temporelle de la moyenne mensuelle de l’épaisseur optique SAOD entre 17 et 30 *km* calculée à partir la moyenne des mesures des 2 lidars de l’observatoire de Haute Provence (OHP ; 43.9°N, 5.7°E ; 670 *m* a.s.l(average sea level ou niveau moyen de la mer).) et de différentes données satellites $\pm 5^\circ$ autour du site de l’OHP. Les éruptions dont le VEI est ≥ 4 sont indiquées le long de l’axe des x. Les éruptions ayant eu lieu aux latitudes moyennes de l’hémisphère nord sont marquées en rouge. La ligne pointillée horizontale et l’ombrage gris indiquent la valeur moyenne de SAOD sur la période de référence sans influence volcanique (« de fond »). Les périodes considérées comme perturbées par le volcanisme sont indiquées en bleu clair 44
- 2.6 Schématisation simplifiée des différentes réactions chimiques menant à la production de l’acide sulfurique en stratosphère. La couleur des flèches grises ou noires indique le lieu des réactions, respectivement en troposphère ou en stratosphère. Les couleurs bleu à rouge représentent le degré d’oxydation du soufre (adapté d’après Kremser et al., 2016) . . . 51
- 2.7 Distribution des concentrations de particules à 20 km selon leurs rayons et pour différentes périodes de temps après l’éruption du Pinatubo en 1991 54
- 2.8 Géométries d’observation verticale (nadir) et horizontale (limb et occultation) du satellite. Le nadir est le point qui se trouve directement en dessous de la trajectoire du satellite. La géométrie au limbe présente un chemin beaucoup plus long dans l’atmosphère (Lee et al., 2009) . . . 59

2.9	Mode d'observation IASI : l'instrument mesure le spectre du rayonnement infrarouge émis par la Terre et l'atmosphère, depuis une orbite héliosynchrone de basse altitude, sur une largeur de fauchée de 2200 km, tous les 50 km au nadir (avec 4 empreintes de 12 km de diamètre).	60
3.1	Description globale du fonctionnement du modèle CESM	67
3.2	Description globale du fonctionnement du modèle WACCM-CARMA .	69
3.3	Description de l'algorithme de post-traitement des données du modèle CESM	75
4.1	Variation annuelle de l'épaisseur optique des aérosols de fond à 675 nm issue de la simulation WACCM-CARMA de référence (= sans injections volcaniques) : (a) à (g) de 2013 à 2019, (h) la moyenne de la période 2013-2019, et (i) observations OMPS pour l'année 2013.	79
4.2	Vents moyens zonaux issus des champs météorologiques MERRA-2 et indiquant les phases de la QBO	80
4.3	Variation du coefficient d'extinction à 675 nm des aérosols de fond (simulation de référence WACCM-CARMA) : (a) à (g) de 2013 à 2019, (h) la moyenne de la période 2013-2019, et (i) observations OMPS pour l'année 2013.	82
4.4	(a) Température de brillance (11 μm) de MODIS/Aqua avec le 13 Février 2014 (b) Rétrodiffusion atténuée totale de CALIOP/CALIPSO à 532 nm à partir de la trace orbitale du 24 février 2014 à 1800 UTC [Vernier et al., 2016]	84
4.5	Coupe transversale CALIOP du signal rétrodiffusé atténué à 532 nm le 24 avril 2015 sur l'Amérique du Sud de 28 à 75° de latitude S. Les deux lignes pointillées rouges délimitent la région géographique où le panache de Calbuco est observé par CALIOP le 24 avril 2015.	84
4.6	Moyenne sur 15 jours du ratio de diffusion mesuré par le lidar spatial CALIOP/Calipso. En haut : période 16-31 mai 2015 soit 3-4 semaines après l'éruption ; en bas : période 16-31 août 2015.	85

4.7 (a) Images heure par heure de la température de brillance (BT) observée par le satellite géostationnaire Himawari-8 autour de la position du volcan Ambae (triangle blanc) le 27 juillet 2018 de 00H à 14H (heure locale). (b) BT zoomée le 27 juillet à 02H. (c) Profil de température (ligne bleue) issu des reanalyses ERA5 d’ECMWF à la position du minimum de BT de la Figure (b) ; la ligne orange verticale fait référence à la température 205 K. 87

4.8 Images RGB entre le 21 juin à 19 :00 TU et le 22 juin 2019 à 16 :00 TU du satellite Himawari-8 sur la région de Raikoke. Les cendres sont en couleur rouge, en vert clair le SO_2 ; en jaune, le mélange de SO_2 et de cendres fines ; en couleur verdâtre des nuages de moyenne altitude épais et minces ou cirrus ; en brun : nuages de glace épais et hauts ; bleu : air humide de basse altitude ; rose à violet : air sec de basse altitude. 89

4.9 Evolution temporelle de l’anomalie de la colonne totale de SO_2 (en Tg) moyennée sur la zone d’émission, c’est-à-dire les tropiques pour Kelud(a), Ambae(c) et Ulawun(d), SH pour Calbuco(b), NH pour Raikoke(e) telle qu’observée par IASI (lignes rouges pleines) et simulée par WACCM-CARMA (ligne pleine violette). L’anomalie du modèle désigne une simulation d’activation de volcan à partir de laquelle la course de contrôle d’activation de volcan a été soustraite. Des seuils de détection de 0,3 DU (traits pointillés) et 0,1 DU (traits pointillés) ont été appliqués au modèle (voir texte). Certains pics dans la colonne de SO_2 détectés par IASI peuvent être attribués à des émissions volcaniques dans la troposphère qui ne sont pas nécessairement prises en compte dans la simulation. 94

- 4.10 Séries temporelles de SAOD pour les différentes éruptions volcaniques dérivées des observations OMPS (lignes pointillées) et de la simulation WACCM-CARMA avec éruptions volcaniques (lignes pleines). Les évolutions de la SAOD sont dérivées sur les bandes latitudinales en fonction de la latitude d'émission, c'est-à-dire NH pour Raikoke, SH pour Calbuco (avec une limite à 80°N et 80°S car OMPS n'observe pas au-delà) et sont montrées dans les tropiques pour toutes les éruptions. Les lignes noires représentent les résultats de la simulation de référence (sans éruption). La SAOD a été calculée de 1 *km* au-dessus de la tropopause à 30 *km*. 98
- 4.11 Comparaisons de l'évolution temporelle moyenne journalière et zonale de la SAOD à différentes latitudes telle que mesurée par OMPS (a) et simulée par WACCM-CARMA (c). La SAOD a été calculée de 1 *km* au-dessus de la tropopause à 30 *km*. Les anomalies sont présentées sur le panneau de droite (b) OMPS et (d) WACCM-CARMA). 99
- 4.12 Comparaisons de l'évolution temporelle moyenne journalière et zonale de la SAOD à différentes latitudes telle que mesurée par OMPS (a) et simulée par WACCM-CARMA (c). La SAOD a été calculée de 1 *km* au-dessus de la tropopause à 30 *km*. Les anomalies sont présentées sur le panneau de droite (b) OMPS et (d) WACCM-CARMA). 100
- 4.13 Profils d'extinction à 532 nm observés par l'instrument COBALD lors de la campagne K1Ash de mai 2014 (traits pleins) et comparés aux sorties WACCM-CARMA de la simulation avec injection volcanique (tirets) au point de grille le plus proche. Les incertitudes de COBALD (zones ombrées) sont obtenues en tenant compte d'un rapport lidar de $45sr \pm 10$ tel qu'utilisé dans Vernier et al.,(2016). 103

4.14 (a) et(b) profils de concentration totale (c'est-à-dire au-dessus de la taille minimale mesurable par l'instrument) en nombre de particules obtenus lors du vol en ballon UWOPC près de Darwin le 20 mai 2014 (bleu) et simulé par le modèle WACCM-CARMA (rouge trait plein pour avec volcan et rouge pointillé pour sans volcan) au point de grille le plus proche. Les concentrations sont indiquées pour les particules avec des rayons $r > 0,01 \mu m$ (CN) et $r > 0,15 \mu m$. Les barres d'incertitudes des mesures ne sont pas incluses pour plus de clarté sur la Figure (échelle log). (c) et (d) profils d'extinction (532 nm) et de concentration totale (c'est-à-dire au-dessus de la taille minimale mesurable par l'instrument) en nombre de particules obtenus lors du vol sous ballon de LOAC à l'île de la Réunion le 26 novembre 2014 (bleu) et simulés par le modèle WACCM-CARMA (rouge trait plein pour la simulation avec volcan et rouge pointillé pour la simulation sans volcan) au point de grille le plus proche. Les mesures de LOAC sont intégrées sur 10 minutes pour augmenter le rapport signal-sur-bruit. L'extinction du modèle est calculée pour les mêmes gammes de taille que l'instrument ballon, à savoir pour des diamètres $\geq 0,2 \mu m$ 105

- 4.15 (a) et (b) profils de concentration en nombre de particules obtenus lors d'un vol en ballon depuis La Réunion les 19 mai et 19 août 2015 par l'instrument LOAC (bleu) et simulés par le modèle WACCM-CARMA au point de grille le plus proche (rouge). Les profils issus des simulations avec et sans aérosols volcaniques sont présentées respectivement en traits pleins et tirets. Les concentrations sont indiquées pour les particules avec des rayons $r > 0,10 \mu m$. L'altitude de la tropopause locale dérivée de la température observée est d'environ $15,5 km$ et d'environ $16,5 km$ le 19 mai 2015 et le 19 août 2015 respectivement. (c) et (d) distributions en taille des particules (points noirs pour LOAC et histogrammes pour WACCM-CARMA) à des altitudes correspondant aux pics de concentrations pour les profils du 19 mai et du 19 août 2015. Les gammes de tailles sur les histogrammes du modèle sont calculées de manière dynamique par le modèle à mesure que les aérosols grossissent par condensation de l'eau après application du post-traitement utilisant le formalisme de [Tabazadeh et al., 1997]. 108
- 4.16 Distributions en taille simulées par [Zhu et al., 2018] avec WACCM-CARMA (histogramme bleu) le 19 août 2015 au point de grille $21^{\circ}S-55^{\circ}E$ à $20 km$ et comparées aux observations LOAC le même jour depuis la Réunion (cercles noirs). Les distributions en trait plein correspondent aux a priori utilisés dans le traitement des données spatiales OMPS (rouge) et OSIRIS (vert). 110
- 4.17 Evolution temporelle de SAOD entre 17 et $30 km$ à $532 nm$ entre le 1er avril 2014 et le 1er janvier 2017 au-dessus de l'île de la Réunion en (a) moyenne journalière et (b) moyenne mensuelle. Les observations moyennées quotidiennement par le lidar au sol de l'Observatoire du Maïdo (rouge), OMPS (vert) et LOAC (bleu) sont comparées à la simulation WACCM-CARMA (noir) à 12 TU prise au point de grille le plus proche du site lidar. Les données OMPS ont été moyennées dans une grille de $\pm 10^{\circ}$ de latitude et de longitude autour de La Réunion. 112

- 4.18 Mesures de l'extinction des aérosols par OMPS (à 675 nm), moyennées sur la région $17\text{-}21^\circ\text{N}$; $76\text{-}82^\circ\text{E}$ (autour du site de Hyderabad en Inde) et sur 5 jours. Les lignes verticales en pointillés noirs représentent les dates de campagnes de mesures in situ sous ballons depuis Hyderabad en février 2018 et juillet 2019 dans le cadre du projet BATAL. Les signes plus blancs représentent l'altitude moyenne de la tropopause pour les moyennes des profils. D'après Kloss et al.,(2020). 114
- 4.19 Profils de concentration totale en nombre de particules (pour des tailles $\geq 0,15\ \mu\text{m}$) obtenus lors de vols en ballon depuis Hyderabad les 09, 13 et 18 juillet 2019. Les résultats de simulation par le modèle WACCM-CARMA au point de grille le plus proche (rouge) issus des simulations avec et sans aérosols volcaniques sont présentés respectivement en traits pleins et tirets. La tropopause se situe entre 16 et 17 km 115
- 4.20 Epaisseur optique en fonction du temps et de la latitude observée par OMPS à 675 nm (a) et simulée par WACCM-CARMA à 550 nm (b). La simulation est présentée ici en terme d'aérosols « secs » c'est-à-dire sans calcul de la condensation de l'eau sur les gouttelettes d'acide sulfurique afin de s'affranchir du signal des PSC du vortex antarctique. La SAOD est ici calculée entre 1 km au-dessus de la tropopause et jusqu'à 30 km . Les croix désignent la position et la date des éruptions du Raikoke (en blanc) et du Ulawun (en noir). Issu de [Kloss et al., 2021]. 117
- 4.21 Profils de concentration en nombre de particules obtenus par LOAC lors de vols ballon depuis le site de la société MeteoModem à Ury ($48,3^\circ\text{N}$; $2,6^\circ\text{E}$) près de Fontainebleau les 22 mars, 29 août, 11 octobre et 3 décembre 2019 (bleu). Les profils simulés par le modèle WACCM-CARMA au point de grille le plus proche avec et sans aérosols volcaniques sont présentés respectivement en traits pleins et tirets rouges. Les concentrations sont indiquées pour les particules avec des rayons $r > 0,10\ \mu\text{m}$. La tropopause se situe en général entre 12 et 14 km 119

Liste des sigles et Abréviations

ACE : Advanced Composition Explorer

ATAL : Asian Tropopause Layer

BDC : Brewer Dobson Circulation

BC : Black Carbon

BKS : Backscatter

BSO : Ballons Stratosphériques Ouverts

CALIOP : Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization

CMIP : Coupled Model Intercomparison Project

CNES : Centre National d'Etudes Spatiales

COBALD : Compact Optical Backscatter Aerosol Detector

IASI : Infrared Atmospheric Sounding Interferometer

INSU : Institut National des Sciences de l'Univers

Klash : Kelud-Ash

LATMOS : Laboratoire ATmosphères, Observations Spatiales

LIDAR : Light Detection And Ranging

LOA : Laboratoire d'Optique Atmosphérique

LOAC : Light Optical Aerosol Counter

LPC2E : Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Environnement et de l'Espace

Metop-B : Meteorological Operational-B

NASA : National Aeronautics and Space Administration

MORGANE : Maïdo ObservatoRy Gas Aerosols NDACC Experiment

OMPS : Ozone Mapping Profiler Suite Limb Profiler

PEM : Pacific Exploratory Missions

POPS : Printed Optical Particle Spectrometer

PSC : Polar Stratospheric Clouds

PV : Potential Vorticity

PVU : Potential Vorticity Unit

QBO : L'oscillation quasi-biennal

SAGE : Stratospheric Aerosol and Gas Experiment

SAM : Stratospheric Aerosol Measurement

SAO : Semi Annual Oscillation

SPARC : Stratosphere-troposphere And their Role in Climate

SSWs : Sudden Stratospheric Warmings

Suomi NPP : Suomi National Polar-orbiting Partnership

TROPOMI : TROPospheric Monitoring Instrument

TTL : Tropopause Tropical Layer

UTLS : Upper Troposphere Lower Stratosphere

VEI : Volcanic Eruption Index

VOC : Volatil Organic Compounds

Introduction

Les aérosols stratosphériques sont un acteur majeur du système climatique soit directement au travers de leur interaction avec le rayonnement, soit indirectement via leur impact sur la chimie de l’ozone stratosphérique [Kremser et al., 2016]. [Junge et al., 1961] ont publié les premières mesures in situ confirmant la présence d’aérosols dans la stratosphère. Il a été démontré par des expériences d’évaporation que les particules étaient des solutions acides d’acide sulfurique (H_2SO_4) et d’eau (H_2O) [Rosen, 1971]. Ces résultats ont particulièrement stimulé les recherches sur les sources générant les aérosols stratosphériques.

Les injections sporadiques de SO_2 gazeux directement dans la stratosphère par les éruptions volcaniques majeures (comme celle du Pinatubo en 1991) sont susceptibles de générer des quantités importantes d’aérosols sulfatés pouvant séjourner pendant plusieurs années [McCormick et al., 1995] dans la stratosphère, augmentant l’épaisseur optique des aérosols de la stratosphère(ou Stratospheric Aerosol Optical Depth en anglais (SAOD)) de plusieurs ordres de magnitude par rapport à la situation non perturbée communément dite «de fond». Ces événements sont associés à une baisse de la température de surface de quelques dixièmes de degrés [Canty et al., 2013] et à une réduction importante de la couche d’ozone [Solomon, 1999].

Les éruptions volcaniques de magnitude modérée (typiquement avec une injection de SO_2 de 1 à 2 ordres de grandeur moindre que pour le cas du Pinatubo) ont généralement un effet beaucoup plus réduit sur le climat et sur la chimie de l’ozone stratosphérique par rapport aux éruptions de grande magnitude [Oman et al., 2005, Kravitz et al., 2010, Berthet et al., 2017, Zhu et al., 2018]. Ces éruptions ont contribué à l’augmentation générale des niveaux d’aérosols strato-

sphériques entre 2002 et 2010, comme l'ont montré les mesures effectuées par satellite [Vernier et al., 2011b], les lidars au sol [Hofmann et al., 2009, Trickl et al., 2013] et les photomètres solaires, les lidars et les ballons au sol [Ridley et al., 2014]. Néanmoins, les effets cumulatifs des fréquentes éruptions de magnitude modérée sur le contenu en aérosols stratosphériques peuvent être importants et ont été identifiés comme un facteur possible des tendances climatiques décennales récentes [Solomon et al., 2011, Ridley et al., 2014] et sur l'âge stratosphérique de l'air [Diallo et al., 2017]. La petite taille des aérosols générés (typiquement sub-micrométrique) combinée à la dynamique de la circulation de Brewer-Dobson permet aux particules de rester en altitude dans la stratosphère sur des périodes de plusieurs mois, voire plus, suivant la latitude et l'altitude d'injection du SO_2 [Vernier et al., 2011a]. Les perturbations radiatives induites dans la stratosphère sont d'autant plus importantes lorsque les aérosols volcaniques sont confinés dans les tropiques. Ce qui tend à être le cas pour les éruptions qui ont été suivies par plusieurs mois de la phase est de l'oscillation quasi-biennale (QBO) [Pitari et al., 2016], reflétant l'intérêt de surveiller la variabilité de la charge d'aérosols dans cette région.

Au vu de l'ampleur des événements extrêmes d'injection de soufre sur la variabilité du contenu en aérosols de la stratosphère, la communauté internationale se mobilise pour surveiller les éruptions volcaniques au travers de l'initiative SSiRC (Stratospheric Sulfur and its Role in Climate; <http://www.sparc-ssirc.org/>), soutenue par le programme SPARC (Stratosphere-troposphere And their Role in Climate; <https://www.sparc-climate.org/>), à laquelle notamment le LPC2E (Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Environnement et de l'Espace) et le LATMOS (Laboratoire Atmosphères Observations Spatiales) participent. SSiRC est aussi connecté à l'activité VolMIP/CMIP6 (Model Intercomparison Project on the climatic response to Volcanic forcing). Les éruptions volcaniques étant imprévisibles en terme d'occurrence, leur étude in situ nécessite une très forte réactivité opérationnelle devant se prolonger sur plusieurs mois lorsqu'elles se produisent. Les campagnes aéroportées sous avions (INSU) et Ballons Stratosphériques Ouverts (BSO du CNES) s'organisent très longtemps à l'avance (au mieux 1 an pour

les ballons) de par la logistique lourde à mettre en œuvre et ne peuvent répondre à l'urgence de l'observations de phénomènes soudains. Le laboratoire LPC2E à Orléans participe depuis une vingtaine d'années à l'étude des aérosols de la stratosphère. Des mesures de leurs concentrations et de la dépendance spectrale de leur coefficient d'extinction sont effectuées régulièrement par des instruments embarqués sous ballons atteignant la stratosphère. Après le lancement en 2002 du satellite européen ENVISAT, le LPC2E a fortement participé à la validation des mesures chimiques et particulaires de différents instruments. Depuis 2008, le LPC2E a intensifié le nombre de mesures in situ dans le cadre de projets nationaux (STRAPOLETE, AEROWAVE), afin d'étudier les propriétés physiques et la nature des aérosols et de mieux documenter leur variabilité spatio-temporelle. Ces mesures très ponctuelles nécessitent d'être complétées par une climatologie globale, qui ne peut être réalisée que par des instruments à bord de satellites mais aussi par des travaux de modélisation. En effet, les observations à elles seules ne suffisent pas à mettre en évidence de manière concluante la source de la variabilité des aérosols dans l'UTLS entre les injections volcaniques et les émissions anthropiques [Hofmann et al., 2009, Vernier et al., 2011a, Vernier et al., 2011b].

Questions scientifiques et objectifs

L'objectif général de ce travail de thèse est de comprendre les mécanismes à l'origine de la variabilité des aérosols stratosphériques vue par les observations satellitaire et in situ. Deux causes possibles à cette variabilité ont été discutées dans la communauté scientifique :

1) Les injections volcaniques issues d'éruptions volcaniques modérées et régulières. L'analyse des données satellitaires a montré que ce type d'éruptions volcaniques pouvait expliquer la tendance à l'augmentation du contenu en aérosols de la stratosphère, aux tropiques et aux latitudes moyennes sur la décennie 2000 [Vernier et al., 2011b].

2) L'augmentation des émissions anthropiques de soufre dans la troposphère [Hofmann et al., 2009, Niwano et al., 2009, Vernier et al., 2009, Vernier et al., 2011a]. Certaines analyses antérieures ont suggéré qu'une forte augmentation de la combustion du charbon depuis 2002, principalement en Chine et en Inde, constitue une

source probable de dioxyde de soufre qui se retrouve finalement sous forme d'aérosol sulfaté dans la stratosphère [Hofmann et al., 2009]. Cette idée a également été soutenue par les travaux de [Randel et al., 2010] qui ont examiné le transport de la pollution dans la stratosphère sous l'effet de la convection dans la mousson asiatique. Cependant, les travaux de [Neely III et al., 2013] ont indiqué que l'effet de la tendance à l'augmentation des émissions de SO_2 par les activités anthropiques asiatiques était faible par rapport aux contributions volcaniques, d'autant que les émissions chinoises se seraient réduites significativement sur la décennie 2010.

Ce travail de thèse utilise une stratégie de synergie entre observations spatiales, sol et in situ sous ballons et simulations numériques à l'échelle globale afin de mettre en lumière les sources volcaniques contrôlant la variabilité du contenu en aérosols stratosphériques, en se focalisant sur la période 2013-2019 au cours de laquelle ce type de mesures est particulièrement disponible. Les latitudes tropicales constituent un point central de cette étude vu qu'elles ont été jusqu'ici plus difficilement documentées par les observations sol et in situ. Nous capitalisons en particulier sur des sites uniques de lâchers de ballons dans ces régions et des mesures nouvelles qui y ont été menées.

Organisation du manuscrit :

1. Le premier chapitre présente des généralités sur les aérosols atmosphériques et leur impact sur le climat. Nous décrivons aussi les processus dynamiques inhérents à la haute troposphère et à la basse stratosphère.
2. Dans le deuxième chapitre, nous nous intéressons aux aérosols stratosphériques et aux mécanismes qui gouvernent leur cycle de vie. Nous évoquons aussi des méthodes d'observations disponibles concernant les aérosols stratosphériques d'une manière générale.
3. Le troisième chapitre contient une description du modèle global de chimie-climat CESM1(WACCM)-CARMA qui est l'outil numérique au cœur de ce travail de thèse et des différentes configurations utilisées pour notre étude.
4. Le quatrième chapitre traite de l'utilisation du modèle CESM1(WACCM)-CARMA pour explorer la variabilité de la couche d'aérosols stratosphériques en examinant à la fois conditions de fond et impactées par les éruptions

volcaniques sur la période 2013-2019. Cette partie montre aussi une série de comparaisons avec des jeux de données satellitaires et in situ disponibles, principalement aux latitudes tropicales, afin d'évaluer l'aptitude du modèle à simuler les panaches et leurs propriétés physiques.

5. Enfin nous discutons les résultats obtenus, émettons des recommandations pour des études à venir sur ce sujet scientifique et évoquons les difficultés rencontrées au cours de ce travail de thèse.

Chapitre 1

Les aérosols et la dynamique de la haute troposphère et de la basse stratosphère

Je suis de ceux qui pensent que la science est d'une grande beauté. Un scientifique dans son laboratoire est non seulement un technicien : il est aussi un enfant placé devant des phénomènes naturels qui l'impressionnent comme des contes de fées.

Marie Curie

Depuis les années 1950, d'importantes avancées scientifiques ont contribué à la compréhension de la moyenne atmosphère (10 à 90 *km*). Des enjeux humains très importants liés à la problématique de la couche d'ozone stratosphérique, du réchauffement climatique ont conduit à des avancées majeures dans la compréhension des processus chimiques et dynamiques de la haute troposphère et de basse stratosphère (en anglais : Upper Troposphere and Lower Stratosphere ou UTLs). Aujourd'hui, la plupart des phénomènes peuvent être modélisés avec un degré de fiabilité raisonnable. Cependant, les aérosols, utilisés dans l'étude de la chimie et de la dynamique atmosphérique, et très étudiés après des éruptions volcaniques, demeurent des éléments dont l'incertitude des estimations est ample.

Depuis le 1^{er} congrès européen de Mayence en 1961 où ils étaient qu'une trentaine de participants, la science des aérosols a pris un formidable essor en Europe. La science des aérosols est devenue une composante importante et dynamique du domaine scientifique et technique mondial et elle continue de se développer de façon spectaculaire [Flagan, 2001]. En effet, vecteurs principaux de la pollution et de la radioactivité de l'air, les aérosols interviennent dans de nombreux phénomènes naturels. Citons le bilan radiatif de l'atmosphère, les échanges océan atmosphère, la radioactivité atmosphérique naturelle, la formation des nuages et des précipitations, leur influence sur la visibilité... Mais leurs interventions dans le monde industriel sont aussi importantes, que ce soit dans la climatisation, la ventilation, la filtration et l'épuration de l'air ou encore dans l'industrie des salles blanches. Ils interviennent également dans la sûreté des réacteurs nucléaires. L'intérêt scientifique grandissant pour les aérosols est motivé avant tout par leurs effets sur la santé publique et le climat terrestre, mis en évidence lors de nombreuses études scientifiques.

Ce chapitre vise à rappeler tout d'abord, les notions fondamentales permettant de caractériser les particules d'aérosols ainsi que leurs impacts sur le climat. Nous nous attacherons en particulier à décrire les propriétés optiques extensives des aérosols (coefficients d'absorption et de diffusion) et intrinsèques des aérosols (coefficient d'Ångström, l'albédo de simple diffusion). Ensuite, nous présenterons les éléments clés de la dynamique atmosphérique responsables du transport des

aérosols dans la haute troposphère et de la basse stratosphère.

1.1 Les Aérosols atmosphériques

Inventé en 1920 par l'Allemand Schmauss, le terme aérosol désigne la suspension, dans un milieu gazeux, de particules solides ou liquides, ou les deux, présentant une vitesse de chute négligeable. Les aérosols atmosphériques constituent alors des particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère terrestre. Cette définition ne considère pas les hydrométéores comme les flocons de neige, les gouttes de pluie et les cristaux de glace dans les nuages. Les aérosols atmosphériques ont des tailles qui varient de quelques nanomètres (nm) à plusieurs dizaines de micromètres (μm) et présentent des propriétés physiques et chimiques diverses qui varient dans le temps et dans l'espace, selon leur origine et leur mode de formation et d'évolution.

1.1.1 Classification des aérosols

D'après leur gamme de taille, on distingue trois catégories d'aérosols :

- Les noyaux d'Aitken, également appelés embryons ou noyaux de condensation, qui ont des diamètres allant de 10^{-4} à $0,1 \mu m$.
- Les fines particules ou agglomérats, ont des diamètres compris entre $0,1$ et $1 \mu m$.
- Enfin, les grosses particules, avec des diamètres compris entre 1 et $100 \mu m$.

En fonction du mode de formation des particules, on distingue deux types d'aérosols : les aérosols primaires et les aérosols secondaires.

Les aérosols primaires sont des suspensions de particules solides ou liquides émises directement dans l'air depuis une source quelconque, située au sol, sur la surface de la mer ou dans l'atmosphère (exemples : poussières des roches, embruns, cendres provenant d'une éruption volcanique, émissions anthropiques (fumées d'usines, rejets divers de particules...))

Les aérosols secondaires sont des suspensions de particules solides ou liquides obtenues par une réaction physico-chimique entre les constituants de l'atmosphère. Il s'agit plus précisément de la transformation d'une phase gazeuse en une phase

condensée (liquide ou solide) accompagnée de l'apparition de noyaux de la phase condensée dans la phase gazeuse. Ce processus s'appelle nucléation et nécessite la présence d'un précurseur gazeux.

On distingue deux types de nucléation : la nucléation homogène et la nucléation hétérogène. La nucléation homogène implique uniquement des molécules de gaz. La nucléation homogène est dite homo-moléculaire si elle met en jeu des molécules d'une même espèce chimique dans la phase vapeur et hétéro-moléculaire si plusieurs types de molécules sont mises en jeu. Dans la stratosphère, quelques-uns des systèmes de nucléation sont les constitués par les couples H_2SO_4/H_2O et HNO_4/H_2O . La nucléation hétérogène implique la présence d'un tiers corps, par exemple un ion ou une particule solide. Dans la stratosphère, les particules météoriques ou les suies peuvent servir de noyaux de condensation [SPARC , 2006]. Les particules formées dans cette étape sont des embryons ou noyaux d'Aitken ; bien qu'ils soient nombreux, ces aérosols de petit diamètre sont difficiles à détecter.

Pendant les étapes de condensation et de coagulation (Figure 1.1), les noyaux d'Aitken donnent lieu à des fines particules dont la masse demeure suffisamment faible pour qu'elles puissent rester en suspension dans l'atmosphère. La condensation de molécules gazeuses à la surface des particules contribue au grossissement de la taille moyenne des aérosols, sans faire varier leur nombre. La coagulation, qui se produit par adhésion d'une particule à une ou plusieurs autres, implique un grossissement et une diminution du nombre d'aérosols.

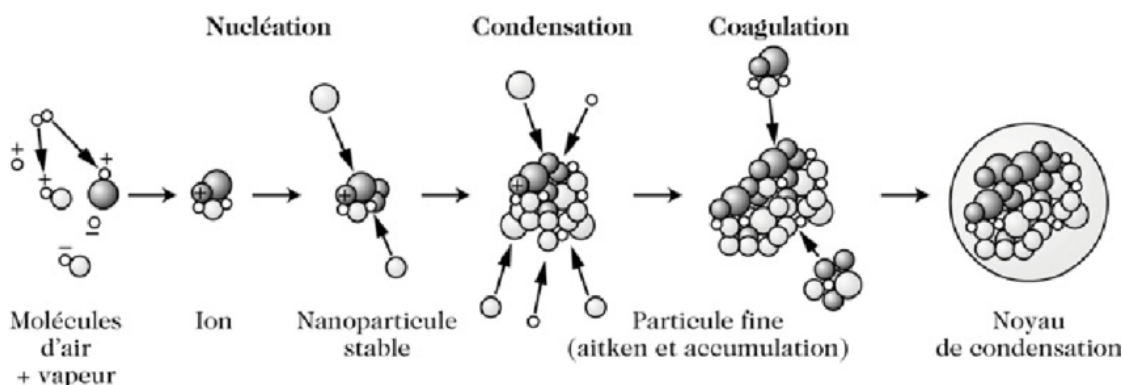


FIGURE 1.1 – Évolution des particules depuis la nucléation jusqu'à la formation de noyaux de condensation [Delmas et al., 2005]

Les aérosols peuvent aussi être classés en fonction de leur source. On distingue

les sources naturelles et les sources anthropiques. Parmi les sources naturelles, on trouve les émissions par l’océan, les sols, la végétation, les feux ou encore les volcans. Les sources anthropiques sont largement dominées par la combustion de combustibles fossiles (tourbe, charbon, pétrole), de bio-carburants (agro-carburants, bois, déchets d’animaux) ou de feux de végétation provoqués par l’homme. Les activités industrielles et agricoles, le transport, le chauffage, voire les émissions domestiques dues à la cuisson des aliments dans les pays en voie de développement sont des sources importantes d’aérosols.

1.1.2 Caractérisation des aérosols

Les caractéristiques les plus importantes d’une population d’aérosols sont sa distribution en taille, la composition chimique des particules et la forme des particules.

1.1.2.1 caractérisation des aérosols : leur forme

Le comportement des aérosols dans les installations ou dans l’environnement est rarement décrit à partir de la connaissance d’une grandeur géométrique issue de l’observation microscopique de la particule qui peut être de forme complexe. Les trois principaux diamètres caractéristiques les plus souvent utilisés sont :

- le diamètre équivalent en volume (d_v) qui correspond au diamètre de la sphère possédant la même masse m et la même masse volumique ρ que la particule considérée de forme quelconque,
- le diamètre de Stokes qui correspond au diamètre d’une sphère ayant la même vitesse limite de chute (ou vitesse de sédimentation) et la même masse volumique que la particule considérée,
- le diamètre aérodynamique (d_a) qui correspond au diamètre d’une sphère ayant la même vitesse limite de chute que la particule et une masse volumique de $1\,000\text{ kg}\cdot\text{m}^{-3}$.

Le diamètre aérodynamique est le paramètre essentiel intervenant dans les processus de dépôt de particules, de filtration ; il décrit le comportement aéraulique d’un aérosol.

1.1.2.2 La distribution en taille des aérosols

Il est rare qu'un aérosol ne soit constitué que de particules de tailles identiques. En général, on rencontre des aérosols constitués de particules dont les dimensions varient. On parle alors d'aérosol polydispersé. Il faut donc trouver une interprétation statistique susceptible de caractériser sa distribution granulométrique.

Une solution consiste à discrétiser l'intervalle contenant l'ensemble des diamètres constitutifs de l'aérosol $[D_i; D_{i+1}]$ en sous domaine de largeurs ΔD_i . On dénombre ainsi le nombre de particules comprises dans chacun des intervalles ΔD_i . On introduit ici la notion de classe de particules; une classe correspondant à un intervalle ΔD_i . Le Tableau 1.1 donne un résumé d'un exemple de la distribution en tailles d'aérosols en fonction de 12 classes de diamètres de particules [Seinfeld and Pandis, 2016]. La Figure 1.2 (a) présente sous forme d'histogrammes la distribution en nombre des particules d'aérosols du tableau 1.1.

Tableau 1.1 – Exemple de distribution en taille des aérosols [Seinfeld and Pandis, 2016]

size age (μm)	Concentration(cm^{-3})	Cumulative(cm^{-3})	Concentration($\mu m^{-1} cm^{-3}$)
0,001–0,01	100	100	11,111
0,01–0,02	200	300	20,000
0,2–0,03	30	330	3,000
0,03–0,04	20	350	2,000
0,04–0,08	40	390	1,000
0,08–0,16	60	450	750
0,16–0,32	200	650	1,250
0,32–0,64	180	630	563
0,64–1,25	60	890	98
1,25–2,5	20	910	16
2,5–5,0	5	915	2
5,0–10,0	1	916	0,2

La distribution en taille d'une population de particules peut également être décrite à l'aide de sa distribution cumulative. La valeur de la distribution cumulative pour une section de taille est définie comme la concentration de particules qui sont

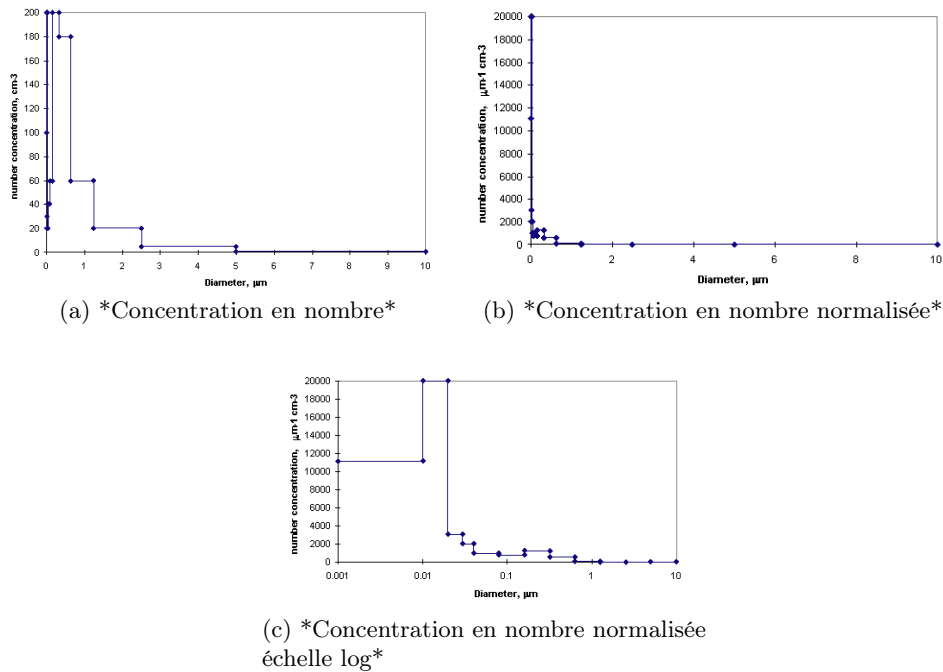


FIGURE 1.2 – Exemple d’histogramme des concentrations en nombre de particules d’aérosols en fonction de la gamme de tailles pour la distribution du tableau 1.1 [Seinfeld and Pandis, 2016]

plus petites ou égales à cette classe de taille. Par exemple, pour la distribution du Tableau 1.1, la valeur de la distribution cumulative pour la gamme de taille 0,03-0,04 μm indique qu’il y a 350 particules cm^{-3} qui sont plus petites que 0,04 μm . La dernière valeur de la distribution cumulative indique la concentration totale en nombre de particules.

L’utilisation des intervalles de tailles différentes rend difficile l’interprétation des concentrations absolues. Par exemple, on peut vouloir déterminer l’intervalle de taille qui comprend le nombre maximum de particules. Les concentrations en nombre du Tableau 1.1 indiquent qu’il y a 200 particules cm^{-3} dans la gamme de 0,01 à 0,02 μm et 200 autres particules cm^{-3} de 0,16 à 0,32 μm . Cependant, cette comparaison de la concentration de particules couvrant une gamme de taille de 10 nm avec celle sur une gamme de 160 nm favorise cette dernière. Pour éviter de tels biais, on normalise souvent la distribution en divisant la concentration par la gamme de taille correspondante. Si la classe de taille i_{bin} contient N_i particules

alors la concentration normalisée n_i s'exprime comme suit :

$$n_i = N_i / \Delta D_i \quad (1.1)$$

où ΔD_i est la largeur de la classe i .

Le résultat est une concentration exprimée en $\mu m^{-1} cm^{-3}$ qui peut être représentée sous forme d'histogrammes Figure 1.2(b). Les particules plus petites sont à peine visibles, mais si l'on utilise une échelle logarithmique Figure 1.2(c) pour le diamètre, les régions des grandes et des petites particules sont représentées.

La limitation majeure de l'approximation discrète est une perte d'informations sur la structure de la distribution à l'intérieur de chaque classe de taille. C'est pourquoi il est souvent plus simple de travailler avec une fonction continue ou distribution en taille, en ajustant une loi de probabilité à la distribution mesurée.

La distribution en taille est donc une fonction analytique qui permet de représenter une population d'aérosols. La plus fréquemment utilisée pour caractériser la distribution d'une population de particules atmosphériques de tailles variables est la loi log-normale. Elle permet un bon accord avec les observations. La description mathématique de la distribution log-normale est la suivante [O'Neill et al., 2001] :

$$n(r) = \frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_0}{r \ln \sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp \left[\frac{-1}{2} \left(\frac{\ln r / r_m}{\ln \sigma_g} \right)^2 \right] \quad (1.2)$$

Avec :

$n(r)dr$: nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris entre r et $r+dr$ (en μm).

N_0 : Concentration totale en cm^{-3}

r_m : rayon médian caractéristique de la distribution en taille de particules

σ_g : déviation standard géométrique de la distribution en taille des aérosols

Notons que trois paramètres (N_0 , r_m , σ_g) suffisent à décrire un mode de particules.

Dans la stratosphère, les aérosols de fond (en période non impactée par une éruption volcanique ou un panache de fumée.) sont en général représentés par des distributions log-normales monomodales, avec un mode principal centré autour d'un diamètre vers $0,1 \mu m$ (SPARC, 2006). Un second mode au-delà de $0,3 \mu m$

est envisagé notamment hors d'éruptions volcaniques majeures (comme celle du Pinatubo en 1991) avec une amplitude pouvant surpasser celle du premier mode [Russell et al., 1996].

1.1.2.3 caractérisation des aérosols : leur composition chimique

L'aérosol est constitué de quatre fractions majeures :

- fraction minérale soluble (dans l'eau),
- fraction minérale insoluble,
- fraction carbonée,
- fraction organique

La fraction inorganique

Un exemple de composition chimique est donné pour un aérosol collecté en Allemagne (Tableau 1.2) Les anions les plus abondants sont les sulfates, les nitrates

Tableau 1.2 – Concentration moyenne de l'aérosol inorganique à Karlsruhe (Allemagne)

Anions, cations et éléments de l'aérosol	Concentration(μgm^{-3})
SO_4^{2-}	16,7
NO_3^-	9,7
$\text{Cl}^- + \text{Br}^-$	1,3
NH_4^+	6,9
$\text{Na}^+ + \text{K}^+$	4
$\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$	1,4
Al	6,4
Si	21,1
Fe	3,8

et les chlorures. On trouve aussi des bromures. Les cations les plus abondants sont l'ammonium, les ions alcalins (sodium principalement) et les alcalino-terreux (calcium notamment). Ces ions proviennent surtout de la source marine. Le plus souvent ces composés très solubles dans l'eau (cas du sulfate) favorisent la captation de l'eau atmosphérique donc la formation des nuages. On trouve aussi des éléments insolubles ou moins solubles tels que les alumino-silicates, le manganèse

et les métaux de transition tels que le fer, provenant principalement de la source terrigène, mais aussi des industries métallurgiques. Certains éléments comme les métaux lourds ou les métaux de transition sont en traces. C'est le cas du vanadium qui provient du fuel, du chrome ou du cobalt qui proviennent de certaines industries, du zinc ou de l'étain qui proviennent des incinérateurs de déchets et enfin du plomb qui provient de l'essence (même si ce métal est de moins en moins utilisé). Ces éléments sont très souvent toxiques. Les sulfates sont souvent associés au cation NH_4^+ (à raison de 80%). Comme la balance ionique est en faveur des anions, il existe un déficit de charge positive, compensé par l'apport des ions H^+ . Ce phénomène explique que l'aérosol – et donc les pluies ou neiges formées autour de l'aérosol après captation de la vapeur d'eau – présente toujours un pH acide. Le pH est souvent voisin de 5. Il peut descendre à 4 pour certains types de neige.

La fraction carbonée

Elle est constituée de carbone amorphe appelé aussi « carbone suie » ou « black carbon ». Ce carbone non fonctionnalisé et hautement polymérisé est non réactif. Sa couleur noire domine dans l'aérosol de pollution . Il provient de toutes les combustions (combustion fossile et combustion de la biomasse) et des débris de matériaux carbonés relargués par les activités humaines, comme les fragments de pneus.

La fraction organique

La conversion Gaz/Particule des polluants organiques gazeux (COV) est la troisième source d'aérosols. En terme de chimie, la composante organique de pollution n'est donc pas prépondérante, mais en terme de toxicité, ces composés présentent un danger sanitaire, au contraire de l'aérosol naturel. Dans tous les types d'aérosol on retrouve les familles organiques suivantes [Schauer et al., 1996, Masplet and Cachier, 1998] :

- les hydrocarbures aliphatiques : alcanes, alcènes, cycloalcanes et cycloalcènes. Cette famille est majoritaire (environ 40 %),
- les esters (environ 25 %),
- les dérivés des hydrocarbures aromatiques monocycliques, les hétérocycles et les terpènes (environ 15 %),

- les alcools, les cétones, les éthers et les acides (mono ou dicarboxyliques) (15 %),
- les composés présentant des hétéroatomes (chlore, azote, phosphore, soufre) (variable en %),
- les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) auxquels on rattache les PCB (environ 3 %).

La matière organique particulaire est constituée de composés à chaîne longue ou semilongue (de 8 à 30 atomes de carbone) [Simoneit and Mazurek, 1989, Simoneit, 1986]. En conséquence on trouve une grande variété de propriétés physico-chimiques. D'ailleurs, à ce jour, on ne sait pas si la matière organique est plutôt hydrophile ou plutôt hydrophobe, donc si elle favorise ou non la formation des nuages. La concentration en matière organique varie très fortement suivant le lieu de prélèvement de l'aérosol. Elle s'étend de 100 ngm^{-3} pour l'aérosol de fond à $2 \text{ } \mu\text{gm}^{-3}$ pour l'aérosol rural ; elle peut atteindre $500 \text{ } \mu\text{gm}^{-3}$ en milieu très pollué. Une composition moyenne de l'aérosol organique en milieu continental est donnée dans le tableau 1.2 (données de Karlsruhe

1.1.3 Les propriétés optiques

Les propriétés optiques des aérosols sont directement liées à la taille et à la composition chimique des particules. L'atténuation du rayonnement lumineux par les aérosols dépend principalement de la composition chimique des particules et de la longueur d'onde (λ) du rayonnement incident. L'influence de la composition chimique d'une particule sur le rayonnement est représentée par son indice de réfraction défini par :

$$m(\lambda) = m_r(\lambda) - im_i(\lambda) \quad (1.3)$$

Dans l'équation 1.3, m_r est le rapport entre la vitesse de la lumière dans le milieu et celle dans le vide. m_r renseigne sur les propriétés de diffusion de la lumière par la particule tandis que la partie imaginaire m_i est reliée aux propriétés d'absorption dont les valeurs sont comprises entre 0,1 et 1,0 pour des composés absorbants tels que le carbone suie [Bond and Bergstrom, 2006]. L'indice de réfraction intervient ensuite dans le calcul de l'efficacité d'extinction de particules individuelles,

équation 1.6.

La quantification de ce phénomène passe par la définition des sections efficaces de diffusion (S^{dif}) et d'absorption (S^{abs}), dont l'unité est le m^2 , qui expriment le degré d'interaction d'une particule avec le rayonnement. Ces grandeurs représentent la surface effective d'interaction entre le rayonnement lumineux et la particule, soit la probabilité qu'à une particule d'absorber ou de diffuser la lumière.

Le rapport entre ces sections efficaces et les sections géométriques des particules (s_g) – égales à πr^2 dans le cas de particules sphériques de rayon r – donne accès aux efficacités (ou facteurs) d'absorption (Q^{dif}) et de diffusion (Q^{abs}) qui sont, de ce fait, des grandeurs sans unité (équation 1.4).

$$\begin{cases} Q^{dif}(\lambda) = \frac{S^{dif}(\lambda)}{s_g} \\ Q^{abs}(\lambda) = \frac{S^{abs}(\lambda)}{s_g} \end{cases} \quad (1.4)$$

La somme de ces deux termes donne l'efficacité d'extinction ou facteur d'extinction : $Q^{ext}(\lambda) = Q^{dif}(\lambda) + Q^{abs}(\lambda)$.

A une altitude donnée, l'intégration de ces efficacités en fonction de la distribution en taille d'un ensemble de particules, décrite ici par la fonction $n(r)$, et à une longueur d'onde (λ) donnée, permet d'obtenir les coefficients de diffusion et d'absorption (généralement exprimée en m^{-1} ou km^{-1}) rendant ainsi compte de la quantité de rayonnement absorbé ou diffusé par les aérosols.

$$\begin{cases} \sigma_{dif}(\lambda) = \int_0^\pi \pi r^2 Q^{dif}(r, \lambda) n(r) dr \\ \sigma_{abs}(\lambda) = \int_0^\pi \pi r^2 Q^{abs}(r, \lambda) n(r) dr \\ \sigma_{ext}(\lambda) = \sigma_{dif}(\lambda) + \sigma_{abs}(\lambda) \end{cases} \quad (1.5)$$

L'intégrale du coefficient d'extinction sur la verticale entre la surface (z_0) et le sommet de l'atmosphère (z_{max}), équation 1.6) est appelée épaisseur optique (Aerosol Optical Depth : AOD en anglais). C'est une grandeur qui mesure la capacité des aérosols à atténuer le rayonnement solaire sur l'ensemble de la colonne atmosphérique. L'AOD est dépendante de la longueur d'onde et c'est une grandeur sans unité.

$$\tau = \int_0^\infty \sigma^{ext} dz \quad (1.6)$$

On définit l'albédo de simple diffusion, (ω_0), comme le rapport entre diffusion et extinction : $\omega_0 = Q^{dif}/Q^{abs}$

1.1.3.1 Épaisseur optique et coefficient d'Ångström

Pour une population de particules de distribution de taille $n(r)$, on intègre les facteurs d'absorption et de diffusion pour obtenir

Les paramètres optiques et donc l'épaisseur optique des aérosols dépendent de la longueur d'onde du rayonnement. Le coefficient d'Ångström(α), aussi appelé paramètre d'Ångström, décrit la dépendance spectrale de l'épaisseur optique (ou du coefficient d'extinction) des aérosols. Il se calcule de la manière suivante :

$$\alpha = \frac{\ln(\tau_1/\tau_2)}{\ln(\lambda_1/\lambda_2)} \quad (1.7)$$

Où τ_1 et τ_2 sont les épaisseurs optiques des aérosols aux longueurs d'ondes λ_1 et λ_2 . En toute rigueur, le coefficient d'Ångström, varie avec le choix des longueurs d'ondes λ_1 et λ_2 , mais cette variation est faible tout du moins dans le spectre visible. En pratique, l'épaisseur optique à une longueur d'onde λ peut donc être estimé à partir de l'épaisseur optique τ_1 , à une longueur d'onde λ_1 et du coefficient d'Ångström avec la formule :

$$\tau = \tau_1 \left(\frac{\lambda}{\lambda_1} \right)^{-\alpha} \quad (1.8)$$

Le coefficient d'Ångström contient l'information sur la taille du diffuseur. A la diffusion par les molécules correspond un coefficient d'Ångström de 4. Des particules du mode d'accumulation ont un coefficient d'Ångström d'environ 2, alors que des valeurs proches de zéro, voire négatives, caractérisent les aérosols du mode grossier.

1.1.4 Les différents types de modèles d'aérosols

Différentes approches existent pour modéliser l'évolution d'une distribution d'aérosols. Ces différentes méthodes se singularisent par le traitement numérique, et en particulier la discrétisation, appliquée à cette distribution d'aérosols. Principalement, on peut citer les approches suivantes :

- les méthodes sectionnelles où le spectre d'aérosols est divisée en un nombre fini de boîtes dans lesquelles on suit l'évolution du nombre d'aérosols, de sa masse et de sa composition chimique ;
- les modèles monodispersés ;
- les modèles modaux où la distribution d'aérosols est estimée comme une somme de distributions lognormales (modes) et on suit l'évolution des paramètres de ces distributions au cours du temps en résolvant les équations aux moments (3 paramètres par distribution donc trois moments à considérer par mode).

Ces différentes approches modélisent toutes la microphysique d'une distribution d'aérosol en un point de l'espace et du temps donné. Couplés avec un modèle de Chimie Transport (CTM, Chemistry Transport Model, en anglais) ou bien un code de mécanique des fluides (CFD, Computational Fluid Dynamical en anglais), ils permettent une simulation déterministe en 3D de l'évolution d'une distribution d'aérosol.

1.1.5 Effets des aérosols sur le climat

Ces dernières années, beaucoup de travaux de recherches ont été effectués sur l'effet des aérosols sur le climat suite aux activités anthropiques qui causent une augmentation de leur concentration. Les aérosols influent sur le bilan radiatif terre-atmosphère selon deux effets : un effet direct et un effet indirect. Pour une étude détaillée le lecteur peut consulter les travaux de [Haywood and Boucher, 2000].

1.1.5.1 Effets directs

L'effet direct des aérosols correspond à leurs interactions avec les rayonnements solaire ou terrestre (absorption et diffusion). Il est déterminé par les propriétés optiques de l'aérosol, c'est-à-dire le coefficient d'extinction, l'albédo et la fonction de diffusion angulaire [Kiehl and Briegleb, 1993]. Les aérosols de petite taille (inférieure au micron) ont la faculté de rétrodiffuser le rayonnement solaire incident et donc de refroidir la colonne d'air atmosphérique située au-dessous d'eux. C'est le cas des aérosols sulfatés. A l'inverse, les aérosols plus gros, comme ceux formés (et agglomérés) à partir du carbone-suie issu de la combustion des hydrocarbures

ou des feux de forêts, ont un fort pouvoir d'absorption et ont donc pour effet de capturer l'énergie au profit d'une augmentation de l'effet de serre. La capacité des aérosols à refroidir la colonne atmosphérique en dessous d'eux prédomine, et le forçage radiatif global estimé pour l'effet direct est négatif. Cependant, les contributions sont différentes en fonction du type d'aérosol (voir figure 1.3). Ainsi, Les aérosols sulfatés sont particulièrement diffusants, et leur forçage est estimé à $-0,4 \pm 0,2 \text{ Wm}^{-2}$, tandis que le carbone suie émis par l'utilisation de combustibles fossiles, ou les aérosols carbonés provenant de feux de biomasse ont des propriétés d'absorption; leur forçage est de $0,2 \pm 0,15 \text{ Wm}^{-2}$ et $0,03 \pm 0,12 \text{ Wm}^{-2}$, respectivement (IPCC, 2007).

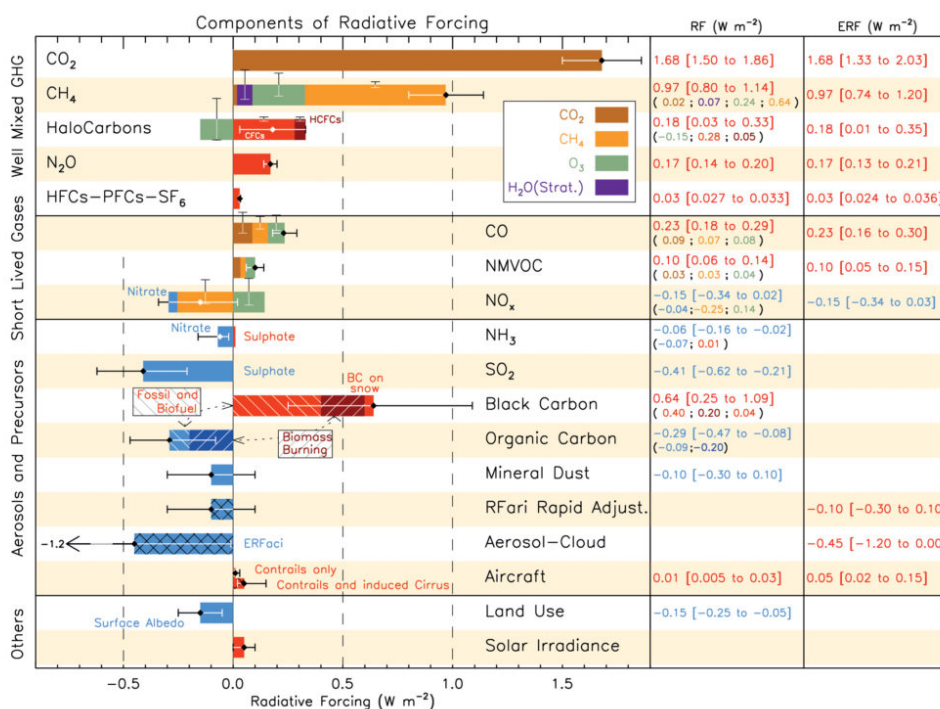


FIGURE 1.3 – Résumé de l'évolution des forçages radiatifs moyens des interactions aérosol-rayonnement à partir des rapports du GIEC, lorsqu'ils sont disponibles, de FAR (1765-1990), SAR (1750-1992), TAR (1750-1998), AR4 (1750-2005) et AR5 (1750-2011).

1.1.5.2 Effets indirects

Les aérosols ont un effet indirect sur le climat par les modifications qu'ils apportent aux nuages et au cycle de l'eau. Ces modifications sont directement liées aux facteurs de formation des noyaux de condensation des gouttes d'eau dans

les nuages qui impliquent les aérosols. Les modifications résultent de deux types d'effet :

- Effets liés au rôle des aérosols en tant que noyaux de condensation dans les nuages. On a vu que la taille des aérosols joue un rôle déterminant pour cela et, de plus, elle contribue à modifier l'albédo des nuages. Notamment, une forte présence d'aérosols entraîne un accroissement du pouvoir diffusant des nuages : plus un nuage paraît blanc (parce qu'il diffuse une grande partie de la lumière solaire) plus il contient d'aérosols.
- Effets se traduisant par l'allongement de la durée de vie des nuages jusqu'aux précipitations. Cette durée de vie est d'autant plus longue que la taille des aérosols est petite. une corrélation entre la taille des particules émises et le nombre de gouttelettes nuageuses a pu être établie, principalement pour les aérosols sulfatés.

L'effet des aérosols sur le climat ne dépend donc pas uniquement de leur nature, mais aussi de leur distribution géographique et verticale. Les aérosols troposphériques ont des temps de résidence de quelques jours ou semaines, de sorte que la variabilité de leur concentration est directement liée à la proximité des sources. Cependant, les aérosols qui atteignent la stratosphère, majoritairement des sulfates provenant d'éruptions volcaniques majeures et de la transformation chimique des composés soufrés, peuvent y séjourner pendant plusieurs années.

1.2 La dynamique dans la haute troposphère et la basse stratosphère

Cette section est consacrée à la description des mécanismes en jeux dans le transport des aérosols dans la stratosphère depuis leurs sources troposphériques ainsi que la dynamique des aérosols une fois dans la stratosphère tropicale.

L'atmosphère terrestre est divisée en couches à partir de sa structure thermique (Figure 1.4) ; les minimas et maximas définissent les limites entre les différentes couches (ou pauses). Sa composition est un mélange de gaz de diverses origines, de particules en suspension (aérosols) et d'hydrométéores (gouttelettes d'eau et cristaux de glace).

La dynamique est responsable de la distribution géographique et verticale des constituants atmosphériques; le transport a lieu sous la forme d'advection, de convection et de diffusion, avec les plus grandes échelles du mouvement sur le plan horizontal.

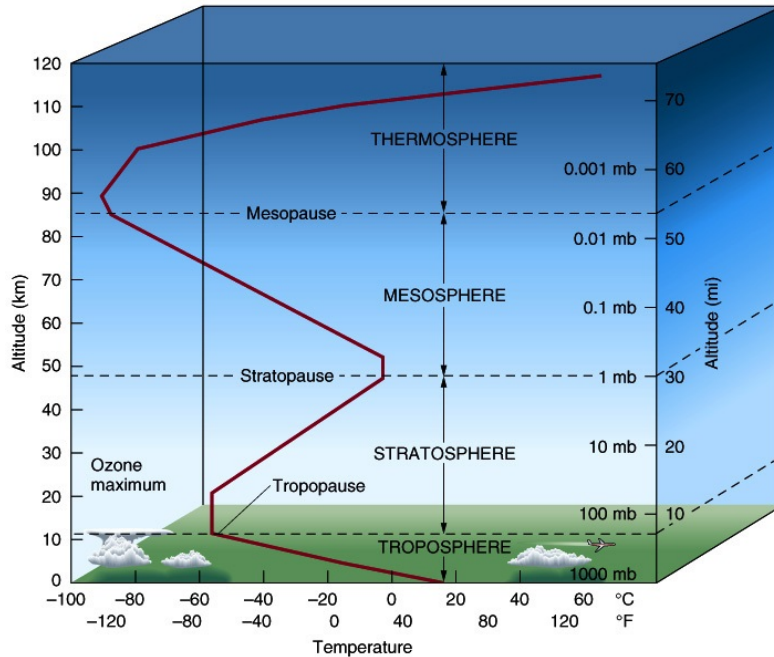


FIGURE 1.4 – Profil de température montrant la structure en couches de l'atmosphère.
©copyright : www.scalair.nc

1.2.1 Troposphère et Stratosphère : deux régions différentes

La troposphère et la stratosphère sont deux régions de l'atmosphère qui ont des propriétés dynamiques, chimiques et radiatives différentes.

La troposphère est la première couche de l'atmosphère qui s'étend depuis la surface terrestre jusqu'à la tropopause. Elle renferme environ 90% de la masse totale de l'atmosphère. Dans cette couche, la température diminue avec l'altitude suivant un gradient approximatif de $-6,5 \text{ K/km}$ jusqu'à la tropopause (Figure 1.4). L'altitude de la tropopause varie en fonction de la saison et de la latitude, elle est positionnée en moyenne à 10 km au-dessus des régions polaires et à 18 km à l'équateur avec une zone de transition abrupte entre les moyennes latitudes et les tropiques.

Contrairement à la troposphère, caractérisée par l'instabilité, la stratosphère

est communément admise comme étant un milieu relativement calme et stratifié, où la distribution des espèces gazeuses et particulaires est plutôt homogène. Au-dessus de la tropopause, le profil vertical de la température s'inverse et le gradient devient positif. La température augmente avec l'altitude pour atteindre une valeur maximale aux environs de 50 km où se localise la stratopause (Figure 1.4). C'est l'absorption du rayonnement solaire par les molécules d'ozone qui est la principale cause de l'augmentation de la température dans la stratosphère et qui a comme effet d'inhiber thermodynamiquement les mouvements verticaux afin de rendre cette partie de l'atmosphère stable et stratifiée [Webb and Coe, 2003].

1.2.2 Tropopause thermique et tropopause dynamique

L'Organisation Météorologique Mondiale [1957] définit la tropopause thermique comme l'altitude la plus basse à laquelle le gradient thermique vertical diminue de 2 K ou moins par km dans une couche d'au moins de 2 km d'épaisseur. Cette définition ne prend pas en compte les processus convectifs. De plus, lorsque le gradient thermique est inférieur à -3 K.km^{-1} sur environ 1 km , la présence d'une double tropopause thermique peut être observée. Dans ce cas, la tropopause est discontinue et peut même être constituée de multiples tropopauses. Cela se produit particulièrement où le gradient horizontal thermique dans la troposphère est important comme dans les extra-tropiques.

D'autres définitions, plus ou moins utilisées, ont été proposées : comme la tropopause thermique au niveau du chauffage convectif [Gettelman et al., 2004], la température minimale de la basse atmosphère [Selkirk, 1993], voire par une répartition statistique des masses d'air transportées depuis la couche limite [Berthet et al., 2007]. La surface 100 hPa est aussi parfois utilisée : elle correspond à la pression moyenne pour laquelle le gradient de température s'inverse, mais elle ne reste qu'une approximation.

La tropopause peut aussi être définie d'un point de vue dynamique en utilisant la vorticité potentielle (ou Potential Vorticity en anglais : PV) [Reed, 1955, James et al., 2003]. La vorticité potentielle d'Ertel est une grandeur utilisée pour examiner les mouvements atmosphériques [Lait, 1994]. La PV est exprimée en

PVU (Potentiel Vorticity Unit) et son expression mathématique est

$$PV = \frac{(\vec{\nabla} \wedge \vec{V} + 2\vec{\Omega})\vec{\nabla}_\theta}{\rho} \quad (1.9)$$

Avec $\vec{\Omega}$ le vecteur vitesse angulaire de la terre, $\vec{\nabla} \wedge \vec{V}$ le rotationnel du vent et ρ la masse volumique de l'air.

$$1PVU = 10^{-6} Km^2s^{-1}kg^{-1} \quad (1.10)$$

L'utilisation de la PV dans les études stratosphériques est courante pour l'analyse du transport des masses d'air à travers les surfaces isentropiques ; les surfaces isentropiques étant des champs de surfaces d'égale température potentielle . La température potentielle θ est définie comme la température qu'aurait une parcelle d'air lors d'une transformation adiabatique qui la ramènerait à une pression de référence P_0 (1000 hPa).

$$\theta = T \left(\frac{P}{P_0} \right)^{\frac{R}{C_p}} \quad (1.11)$$

Avec T la température en Kelvin, P la pression en hectopascal, $P_0 = 1000$ hPa la pression de référence et $\frac{R}{C_p} = \frac{2}{7} \approx 0.287$, avec R la constante spécifique de l'air sec et C_p la chaleur massique à pression constante.

Notons que la plupart des mouvements atmosphériques peuvent être considérés adiabatiques sur une échelle de temps limitée entre 10 à 20 jours dans la stratosphère où la température potentielle présente une forte stabilité verticale due à son augmentation avec l'altitude. De ce fait, le transport des masses d'air par advection dans la stratosphère des tropiques vers les pôles (Figure 1.5)[Holton et al., 1995] s'effectue principalement le long des surfaces de température potentielle constante et peut être analysé à partir de PV [Butchart and Remsberg, 1986]. Lorsqu'on examine une parcelle d'air atmosphérique subissant une transformation adiabatique et sans frottement, la vorticité potentielle se conserve, ce qui permet d'identifier et de suivre le déplacement des masses d'air durant le processus du transport isentropique. De plus, vu que les surfaces isentropes sont très rapprochées dans la stratosphère et que la stabilité verticale augmente très fortement de la tropopause vers la haute stratosphère (FIGURE 1.5), la vorticité potentielle a une valeur absolue beaucoup plus importante dans la stratosphère que dans la troposphère où

sa valeur est généralement évaluée à moins de 1 PVU. En s'appuyant sur cette propriété, [Reed, 1955] a introduit la notion de tropopause dynamique basée sur un seuil de vorticité potentielle variant entre 1 et 2 PVU. A partir de l'analyse de la variabilité de ce traceur dynamique, il est alors possible de différencier les masses d'air troposphériques des masses d'air stratosphériques. La surface 2 PVU constitue alors une bonne définition dynamique de la tropopause extratropicale puisque les particules troposphériques ayant une PV beaucoup plus faible, ne pourront pas augmenter leur PV pour entrer dans la stratosphère à moins de subir un transport diabatique ou de changer de phase. Le principal avantage de cette définition de la tropopause extratropicale réside dans le fait qu'elle prend en compte la dynamique, via le rotationnel du vent, ainsi que la thermodynamique, avec le gradient de la température potentielle, ce qui n'était pas le cas avec les précédentes définitions citées. De plus, l'incertitude portant sur l'emplacement de la tropopause dans le cas d'une double tropopause thermique n'est plus à considérer avec cette définition.

Au niveau des tropiques (20 °S-20 °N environ), la surface 2 PVU diverge et ne peut donc plus approximer la position de la tropopause. Elle est approximée par la surface 380 K en température potentielle qui est la frontière conventionnelle de « l'overworld » stratosphérique [Hoskins, 1991].

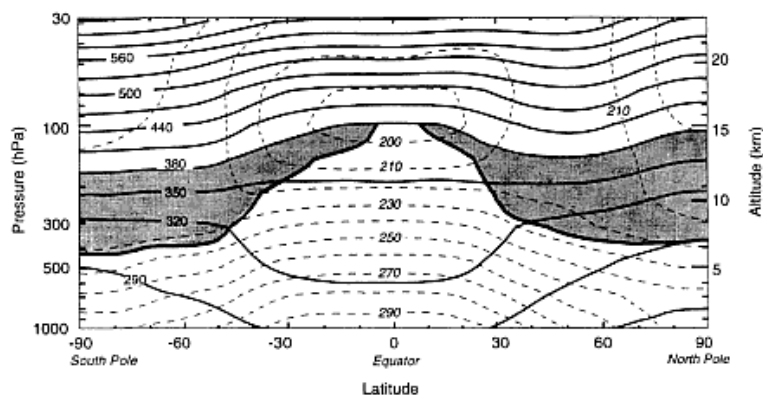


FIGURE 1.5 – Coupe latitude-altitude pour janvier 1993 montrant la moyenne zonale de la température potentielle (traits pleins) et de la température (traits en pointillés). La ligne continue en gras (coupée au niveau de l'isentrope 380 K) montre le contour de la vorticité potentielle PV= 2 PVU qui approxime la tropopause en dehors des tropiques. Les zones grisées indiquent la basse stratosphère extra-tropicale : « lowermost stratosphere ». Au-dessus de la surface 380 K, se situe « l'overworld » stratosphérique [Holton et al., 1995]

1.2.3 La tropopause vue comme une couche de transition : la TTL

Les définitions précédemment proposées présentent le désavantage de ne pas donner la même position de la tropopause à chaque instant puisqu'elles sont définies à partir de phénomènes physiques différents.

De manière à regrouper ces définitions et à étudier le transport à travers la tropopause tropicale, il est possible de définir la tropopause non plus comme une surface mais comme une couche de transition dans la région tropicale, porte d'entrée vers la stratosphère : la TTL (Tropopause Tropical Layer en anglais). [Atticks and Robinson, 1983] ont proposé que la tropopause puisse être définie comme une couche de transition, suite à l'étude de profils de radiosondages tropicaux entre 130 et 60 *hPa*. [Fueglistaler et al., 2009] propose une définition de la TTL : il s'agit d'une couche contenue entre les surfaces 150 *hPa* (environ 355 *K* ou 14 *km*) et 70 *hPa* (environ 425 *K* ou 18.5 *km*). Elle est bornée en latitude par les jets subtropicaux, situés aux alentours de 30 °N et 30 °S. En effet, ces jets limitent le transport horizontal entre les tropiques et les extra-tropiques autour de 350 *K* [Haynes and Shuckburgh, 2000]. La surface 2 PVU diminue brusquement d'altitude au niveau de ces jets. Cette définition de la TTL est directement liée à l'impact de la convection profonde.

Il est important de noter l'existence d'autres définitions de la TTL comme par exemple celle proposée par [Gettelman, 2002]. Dans ce cas, la TTL est bornée à sa base par la surface représentant l'altitude où le gradient vertical de température est minimum, et au sommet par la surface représentant l'altitude pour lequel la température est la plus froide ("cold point tropopause"). Cette tropopause est donc, en moyenne, moins épaisse que celle de [Fueglistaler et al., 2009].

Le transport de constituants troposphériques vers la stratosphère est difficile au-dessus de la tropopause, car la stratification inhibe les mouvements verticaux (en augmentant ainsi à la fois le temps de résidence des aérosols qui se trouvent dans la stratosphère). Cependant, le passage est possible à travers la TTL par convection, et depuis la troposphère tropicale vers la basse stratosphère extratropicale en suivant la circulation méridienne de Brewer-Dobson [Butchart, 2014] comme le montre la figure 1.6.

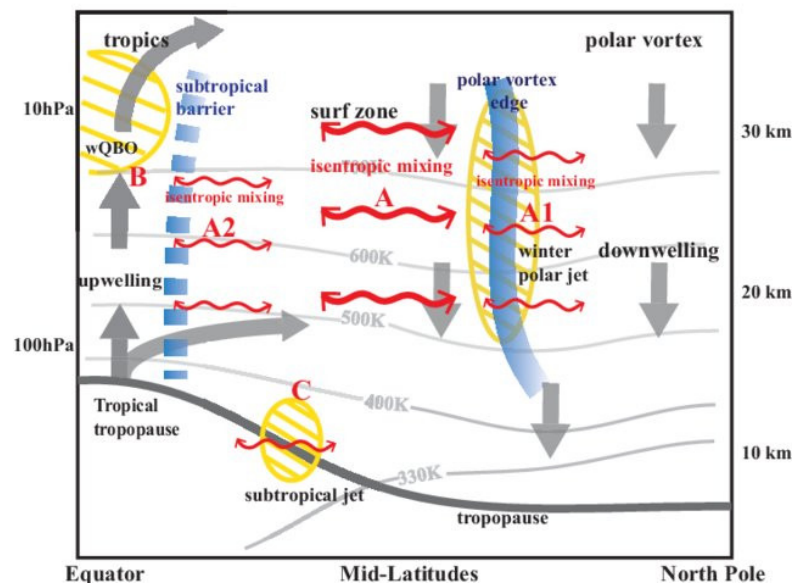


FIGURE 1.6 – Diagramme schématisé des processus de transport et de mélange dans la stratosphère de l’hémisphère d’hiver. Les lignes bleues épaisses indiquent les barrières, les flèches grises indiquent le sens de la circulation Brewer Dobson. Les zones ombrées en jaune représentent des vents d’ouest forts. Les flèches rouges à deux têtes indiquent un mélange isentropique, avec des flèches plus épaisses et plus fines montrant un mélange plus fort dans la zone de surf et un mélange plus faible à travers les barrières de transport, respectivement. Pour une meilleure vue d’ensemble, la tropopause avec le jet subtropical est également marquée [Tao et al., 2015].

1.2.4 La circulation de Brewer Dobson

La circulation de Brewer-Dobson a été mise en évidence pour la première fois en 1949 à partir des mesures d’un spectromètre mesurant la colonne totale de l’ozone développé par le physicien Gordon Dobson en 1949. À partir de ses mesures, il a réussi à faire une description du cycle saisonnier de l’ozone dans sa distribution méridienne et comprendre pourquoi l’ozone formé majoritairement dans les tropiques, se trouve en grande quantité dans les moyennes et hautes latitudes. Brewer et Dobson émirent l’hypothèse qu’une circulation méridionale lente était à l’origine du transport d’ozone des tropiques vers les hautes latitudes. Cette circulation dite de Brewer-Dobson est schématisée sur la Figure 1.6.

Elle est constituée de trois parties : un mouvement ascendant des masses d’air dans la zone intertropicale, suivi d’une advection par transport isentropique vers les moyennes et hautes latitudes de l’hémisphère d’hiver et enfin d’une lente subsidence vers la troposphère aux latitudes moyennes et polaires. Le retour des masses d’air

vers les tropiques se fait dans la basse stratosphère et via la troposphère suite aux intrusions d'air stratosphérique dans la troposphère aux basses latitudes. Le temps de transit d'une masse d'air à travers la stratosphère est typiquement de l'ordre de quelques années [Waugh and Hall, 2002].

Cette circulation lente est la résultante de l'interaction entre le vent moyen et l'activité ondulatoire. L'âge de l'air est un des paramètres dynamiques permettant de rendre compte de ce transport résiduel [Diallo et al., 2012, Hall et al., 1999, Waugh and Hall, 2002].

L'injection des masses d'air troposphériques à l'équateur conduit à produire le réservoir tropical, qui est une zone d'accumulation des aérosols soufrés vers 30 *km* au niveau de l'équateur [Kremser et al., 2016]. Ce réservoir est plus ou moins confiné en fonction des vents zonaux et des barrières dynamiques.

1.2.5 L'oscillation quasi-biennale (QBO) et l'oscillation semi-annuelle

Dans la stratosphère, le transport zonal est plus rapide. Les masses d'air peuvent atteindre des vitesses de l'ordre de 80 m.s^{-1} (près de 300 Km.h^{-1} , ce qui leur permet de faire le tour du globe en 2 à 3 mois suivant la latitude [Holton, 2004]. Cette circulation zonale n'est pas constante dans le temps, elle peut être plus ou moins intense et son sens s'inverse avec des périodes différentes suivant les latitudes et l'altitude.

L'oscillation quasi biennale (QBO) est certainement l'oscillation la plus connue. La QBO s'étend en latitude jusqu'à 10° ou 15° de chaque côté de l'équateur et entre 15 et 35 *km* d'altitude, mais ses effets sont perceptibles jusqu'aux régions des hautes latitudes [Holton, 2004, Randel et al., 2001, Watson and Gray, 2014]. Elle consiste en l'alternance symétrique entre les régimes des vents d'est et les régimes des vents d'ouest [Baldwin and Dunkerton, 2001]. Il a été démontré que le vent d'ouest peut s'étaler jusqu'à environ 24 mois, tandis que la bande temporelle maximale du régime d'est est estimée d'environ 14 mois [Salby and Callaghan, 2000, Hamilton, 2002, Kuai et al., 2009].

La figure 1.7 présente la variation temporelle de la moyenne mensuelle désaisonnalisée du vent zonal à l'équateur. Le signal de la QBO est très clair entre

20 *km* et 37 *km* faisant apparaître des écoulements d'ouest (rouge et jaune) et d'est (bleu foncé et clair) qui s'alternent suivant une période quasi-biennale. On s'aperçoit que le régime d'ouest couvre une période plus large que le régime d'est.

La QBO impacte la répartition des aérosols stratosphériques suivant la phase dans laquelle elle se trouve [Plumb and Bell, 1982]. En phase d'est (ou régime de vents d'ouest, vents zonaux de l'ouest vers l'est) les masses d'air sont confinées à l'équateur et des mouvements plutôt de subsidence (vers le bas) y sont constatés. En phase d'ouest (ou régime de vents d'est, vents zonaux de l'est vers l'ouest), les aérosols ont tendance à être dispersés vers les pôles [Treppe and Hitchman, 1992]. L'effet de l'oscillation quasi biennale sur les aérosols est traité par de nombreux auteurs [Trenberth and Smith, 2009, Treppe et al., 1994, Hitchman et al., 1994], ou [Thomason et al., 1997a]. Ces auteurs décrivent la distribution des aérosols dans la basse stratosphère, autour de 20 °de latitude, qui est contrôlée par la phase de l'oscillation quasi-biennale : en régime de vents d'est une ascendance des aérosols se produit au-dessus de l'équateur, alors qu'en situation de vents d'ouest l'effet contraire est observé, c'est-à-dire un affaissement ou subsidence des particules. Ce phénomène est dû principalement à l'interaction de la QBO avec la circulation de Brewer-Dobson, en l'accéléralant lors de la phase d'est, et en la ralentissant lors de la phase d'ouest.

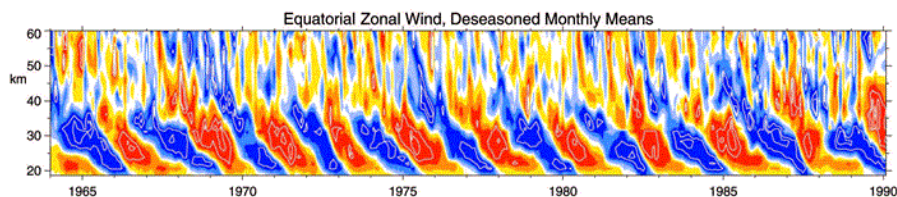


FIGURE 1.7 – Distribution de la moyenne mensuelle désaisonnalisée du vent zonal en fonction de l'altitude, observée au-dessus de la région équatoriale entre 1964 et 1990. Les vents d'est sont colorés en bleu et les vents d'ouest en rouge [Baldwin and Dunkerton, 2001].

Au-delà de 35 *km*, la QBO coexiste avec une oscillation semi-annuelle (Semi Annual Oscillation, SAO) d'alternance du vent zonal équatorial, qui naît dans la mésosphère et se propage dans la stratosphère.

1.2.6 Le vortex polaire

Dans chaque hémisphère d'hiver se forme un vortex polaire. Ce vortex est une structure dynamique de plusieurs milliers de kilomètres, s'étendant de la basse stratosphère jusqu'en mésosphère. Elle résulte d'une diminution de l'énergie solaire au pôle [Waugh and Polvani, 2010]. L'air stratosphérique se déplace de l'équateur vers le pôle, et le courant jet polaire, qui est un vent d'ouest dans l'hémisphère d'hiver, entraîne la formation d'un tourbillon d'air stratosphérique de circulation très rapide.

Le vortex est un tourbillon d'échelle planétaire, qui isole les masses d'air du reste de l'atmosphère et ce pour une période de 4 à 6 mois [Holton et al., 1995, Watson and Gray, 2014].

Les vortex polaires ont été largement étudiés pour leur influence sur la couche d'ozone [Manney et al., 2015, Waugh and Polvani, 2010]. Ces études révèlent que l'ozone est détruit par des processus chimiques hétérogènes reposant sur la présence de particules liquides et solides, les PSC (Polar stratospheric cloud) formés à basse température [Riviere et al., 2000].

[Holton and Tan, 1980] ont montré que le vortex est influencé par l'oscillation quasi-biennale (QBO). Le vortex est en moyenne plus faible pendant la phase est de la QBO [Holton and Tan, 1980, Pascoe et al., 2005].

Entre le vortex et le réservoir tropical s'établit la zone de surf. Cette zone est dynamiquement instable et reçoit des masses d'air des tropiques et du vortex polaire sous la forme de filaments également appelés intrusions polaires ou tropicales. Ces intrusions sont l'effet de la déformation des barrières dynamiques sous l'influence de la rotation de la Terre (ondes de Rossby). Le vortex est un réservoir de particules réfractaires qui est relativement confiné lorsqu'il est établi, et libère potentiellement ces particules lors de sa destruction au printemps.

1.2.7 Les ondes de Rossby et de gravité

Les mouvements ondulatoires jouent un rôle important sur la dynamique stratosphérique, plus précisément dans le transport des gaz traces. Ces mouvements résultent de l'interaction des forces d'inertie et de force de rappel exercées sur les

parcelles des masses d'air en déplacement par rapport à leur position d'équilibre. Deux familles d'ondes d'origine troposphérique gouvernent la dynamique dans la stratosphère, et se propagent jusqu'à la mésosphère : il s'agit des ondes de gravité et des ondes de Rossby [Brasseur and Solomon, 2005]. Les ondes de gravité ont plusieurs sources. Elles peuvent avoir une origine orographique ou être générées lors d'évènements convectifs ou de situation avec de forts cisaillements de vents. Les ondes générées lors de tels évènements se propagent de façon ascendante en transportant de l'énergie et de la quantité de mouvement vers la mésosphère où elles déferlent en engendrant un mélange turbulent des constituants de l'atmosphère. Le déferlement s'accompagne d'un dépôt d'énergie et de quantité de mouvement. Dans la basse stratosphère, les ondes de gravité contribuent au forçage de la QBO, à la modulation de la circulation méridienne de l'équateur vers les hautes latitudes de l'hémisphère d'été et à celle du vortex polaire en hiver. Les ondes de gravité ont des longueurs d'onde variables entre 10 *km* et 100 *km* avec des périodicités variables de quelques dizaines de minutes à quelques heures. Lorsqu'une parcelle de masse d'air se déplace suivant les latitudes, la force due à la variation du paramètre de Coriolis associée au mouvement de la parcelle induit une variation du tourbillon relatif pour satisfaire la conservation de la vorticité absolue. Ce mécanisme conduit à des mouvements ondulatoires autour d'un cercle correspondant à la latitude d'équilibre. Il se forme alors des ondes de Rossby de grande longueur d'onde qui se propagent vers l'ouest parallèlement à la circulation zonale moyenne où verticalement vers la stratosphère. On distingue les ondes de Rossby planétaires, les ondes de Rossby transitoires de basse fréquence et les ondes de Rossby transitoires de haute fréquence [Michel, 2012].

1.2.8 Les réchauffements stratosphériques soudains

Au courant de l'hiver arctique, un ralentissement des vents d'ouest, provoqué par une amplification des ondes planétaires de Rossby, est à l'origine de phénomènes appelés réchauffements stratosphériques soudains [Scherhag, 1960], en anglais Sudden Stratospheric Warmings, SSWs. Ces événements n'ont pas été observés en Antarctique -excepté en 2002 [Dowdy et al., 2004, Ricaud et al., 2005]-, car

les ondes de Rossby y sont d'amplitude plus petite. Les conséquences des SSWs varient selon leur intensité. Lors d'événements majeurs (major warmings), un changement de direction des vents peut se produire dans l'espace de quelques jours, accompagné d'une hausse de température de plusieurs dizaines de degrés et d'un déplacement du vortex polaire, qui peut même être brisé. Les réchauffements mineurs (minor warmings) produisent une hausse de température moins importante, et un ralentissement des vents qui ne provoque pas leur changement de direction. Les réchauffements finaux (final warmings) ont lieu lors de la transition au régime d'été : les vents changent de direction, et la phase d'est prédomine jusqu'à l'hiver suivant.

Chapitre 2

Les aérosols stratosphériques : processus pertinents et méthodes d'observation

Si, comme le pense chaque homme raisonnant scientifiquement, les phénomènes atmosphériques se développent à partir de ceux qui les précèdent suivant des lois précises, on peut en déduire que les conditions nécessaires et suffisantes pour une solution rationnelle de la prévision en météorologie sont les suivantes :

- on doit connaître avec une précision suffisante l'état de l'atmosphère à un instant donné ;
- on doit connaître avec une précision suffisante les lois selon lesquelles un état de l'atmosphère se développe à partir de l'état précédent.

V. Bjerknes, 1904

2.1. LES AÉROSOLS STRATOSPHERIQUES

Dans la stratosphère, les aérosols sont composés d'un mélange de gouttelettes d'acide sulfurique et d'eau produites par la conversion de gaz précurseurs émis depuis la surface et qui constituent de manière communément admise la population principale à ces altitudes. A cela se superposent en mélange interne ou externe des particules troposphériques d'origine anthropique et naturelle ainsi que de particules provenant de l'espace ayant été accrétées par la Terre [Kremser et al., 2016]. La Figure 2.1 illustre les processus pertinents qui régissent le cycle de vie et la distribution des aérosols stratosphériques.

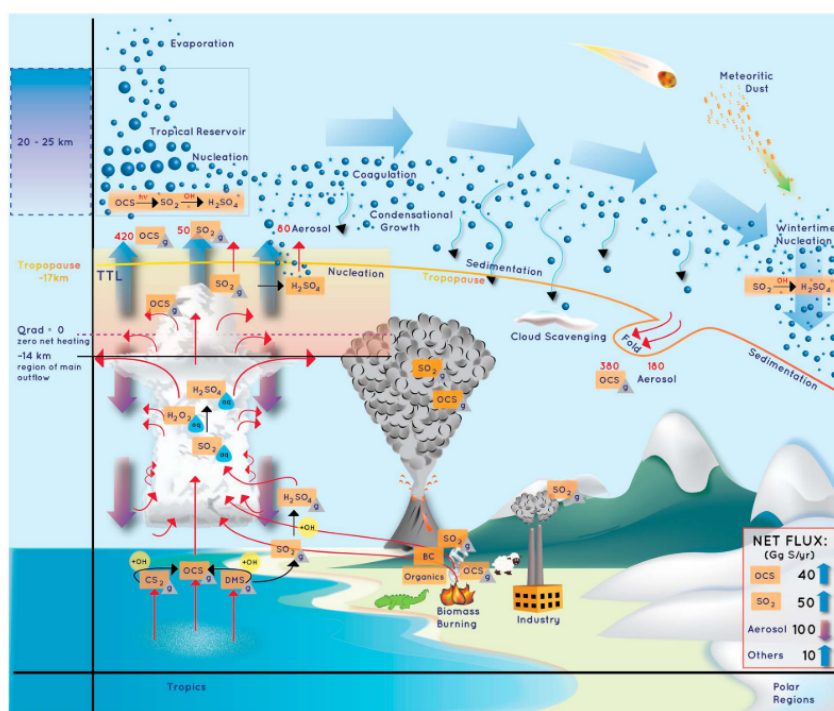


FIGURE 2.1 – schématisation des particules stratosphériques, de leur transport, des flux et des principales sources [Kremser et al., 2016].

2.1 Les aérosols stratosphériques

2.1.1 Les aérosols sulfatés de la stratosphère

2.1.1.1 Généralités

Les aérosols sulfatés sont issus de l'oxydation de certains gaz précurseurs en acide sulfurique gazeux (H_2SO_4). Ils se forment principalement par nucléation binaire homogène d'acide sulfurique et d'eau dans les masses d'air ascendantes proches de la tropopause tropicale (Figure 2.1). Ces gouttelettes croissent par

condensation de H_2SO_4 et de vapeur d'eau et sont soumises à des processus de coagulation, à la fois avec d'autres particules nouvellement formées et avec des particules âgées plus grandes présentes dans la même région atmosphérique. Dans les régions tropicales, les aérosols sont rapidement transportés zonalement par les vents stratosphériques moyens, tandis que le transport méridional est déterminé par le brassage et le mélange à grande échelle, avec une barrière existant dans la gamme de latitudes 15° - 30° [Plumb, 1996]. La dilution de la quantité d'aérosols tropicaux avec les régions extratropicales est donc réduite de par l'existence du « tropical pipe » [Trepte and Hitchman, 1992]. Comme évoqué dans le chapitre 1, le transport vers les pôles devient efficace pendant la phase d'ouest de la QBO mais est plus limité pendant la phase d'est. Les particules transportées vers les latitudes extratropicales grossissent par condensation de H_2SO_4 à mesure que les gaz précurseurs sont oxydés et par coagulation. Les particules sont redistribuées verticalement par sédimentation gravitationnelle. Elles sont transportées diabatiquement vers la basse stratosphère où elles passent finalement dans la troposphère par transport quasi-isentropique des masses d'air dans les déformations de la tropopause. Les descentes diabatiques d'air dans le vortex stratosphérique polaire constituent également une perte additionnelle importante en hiver et au printemps. [Steele and Hamill, 1981] ont montré que la composition chimique des aérosols sulfatés varie avec les changements de température et d'humidité au niveau de la stratosphère. D'après ces travaux, pour des pressions partielles de vapeur d'eau entre 10^{-4} et 10^{-3} hPa à 100 hPa et des températures qui varient entre 210 et 250 K, la proportion en acide sulfurique au sein des gouttelettes varie entre 59 et 86%. La modification de la proportion entre acide sulfurique et eau des particules stratosphériques en réponse aux changements de température et d'humidité entraîne une dépendance de cette répartition en fonction de l'altitude [Yue et al., 1994] et des changements saisonniers de la taille des particules qui se retranscrivent en terme de variation de l'extinction des aérosols. En dehors de la région tropicale de formation de nouvelles particules, la quantité de soufre condensé évolue plutôt lentement dans la stratosphère, bien que les propriétés physiques et chimiques de l'aérosol sulfaté puissent réagir de manière quasi instantanée aux changements de tempé-

rature et d'humidité. L'indice de réfraction des particules sulfatées a une partie imaginaire nulle et change avec la composition en acide sulfurique et en eau (et donc avec l'altitude) [Yue et al., 1994]. Pour des températures supérieures à 208 K ($-65^{\circ}C$) et des rapports de mélange de vapeur d'eau autour de 5 $ppmv$, la partie réelle de l'indice de réfraction se situe entre 1,43 et 1,45 [Steele and Hamill, 1981]. A noter que l'impact de sa variation sur l'extinction est secondaire par rapport aux changements induits par les variations de température et d'humidité sur les tailles des particules.

Les propriétés physiques et optiques des aérosols sulfatés peuvent être approchées par la théorie de Mie qui est une solution aux équations Maxwell pour une particule sphérique caractérisée par son diamètre et son indice de réfraction à une longueur d'onde donnée.

2.1.1.2 La couche de Junge

La Figure 2.2 représente la plus longue série disponible de mesures des aérosols stratosphériques depuis la station lidar de Garmish en Allemagne ($47.5^{\circ}N$). L'évolution du coefficient de rétrodiffusion à 694.3 nm montre l'alternance entre des périodes dites « d'aérosols de fond » indiquant un flux permanent et des injections volcaniques. Les principales éruptions sont celles d'El Chichon ($17^{\circ}N$, avril 1982, Mexique) et du Mt Pinatubo ($15^{\circ}N$, juin 1991, Philippines). En dehors des périodes volcaniques, il n'y a pas d'indication d'une augmentation de la charge en aérosols de la stratosphère liée aux émissions anthropiques.

La persistance d'aérosols dans la stratosphère pendant des périodes non volcaniques a fait l'objet d'observations au crépuscule au début du XX ième siècle. Cependant il a fallu attendre les années 50 et l'utilisation d'impacteurs en ballon pour confirmer leur présence [Junge and Manson, 1961, Junge et al., 1961]. Le transport à grande échelle vers les pôles et le mélange isentropique des aérosols, associés aux processus de croissance par condensation, de coagulation et de sédimentation des particules, conduisent à la génération de cette couche d'aérosol quasi-permanente dans la stratosphère, dite couche de Junge [Junge and Manson, 1961, Junge et al., 1961]. Le sommet de la couche (typiquement 35-40 Km d'altitude)

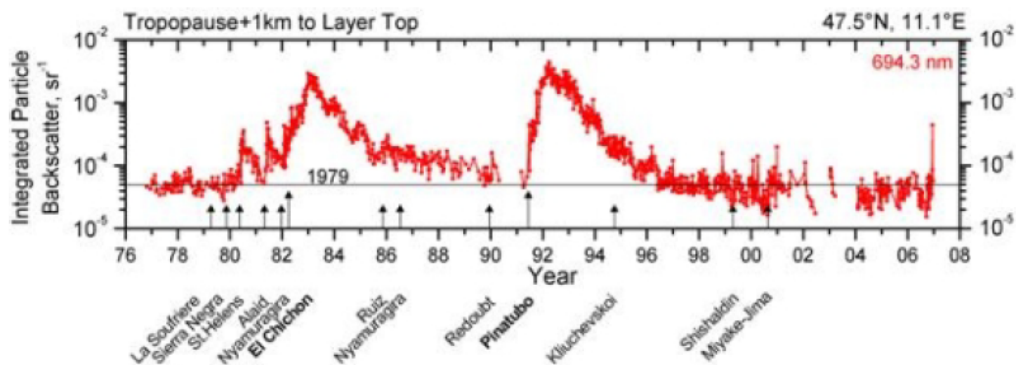


FIGURE 2.2 – Coefficient de rétrodiffusion intégré à 694.3 nm mesuré par lidar à Garmish (Allemagne) depuis 1 km au-dessus de la tropopause jusqu’au sommet de la couche. La position dans le temps des principales éruptions est indiquée par des flèches (<http://www.imk-ifu.kit.edu/331.php>).

est déterminé par la capacité thermodynamique des gouttelettes d’acide sulfurique. Les températures plus élevées et les pressions partielles plus faibles de H_2SO_4 et H_2O à haute altitude sont telles que les particules s’évaporent complètement.

2.1.1.3 Les précurseurs gazeux

La Figure 2.3 montre un diagramme schématisé du bilan atmosphérique global du soufre dans la troposphère et la stratosphère [Sheng et al., 2015]. Les principaux précurseurs gazeux des aérosols sulfatés de la stratosphère sont décrits ci-après.

L’oxysulfure de carbone (OCS)

L’oxysulfure de carbone (*OCS*) est émis par les surfaces anoxiques, les océans et les volcans. Il est également formé à partir de l’oxydation dans l’atmosphère du disulfure de carbone (CS_2) et du sulfure de diméthyle (*DMS*). Les sources de *OCS* dans l’atmosphère sont essentiellement naturelles (1,3 *Tg* par an en provenance des océans, sols, zones humides et de l’oxydation du *DMS* et du sulfure de carbone) mais il y a également une petite source anthropique de l’ordre de 0,1 *Tg* par an [Watts, 2000]. Sa faible solubilité et sa longue durée vie (4-5 *ans*) dans la troposphère lui permettent d’être transporté jusqu’à la stratosphère, où il est facilement photodissocié en SO_2 qui s’oxyde à son tour en H_2SO_4 . Il est donc responsable du maintien de la couche d’aérosols sulfatés stratosphérique en période non volcanique.

Le dioxyde de soufre (SO_2)

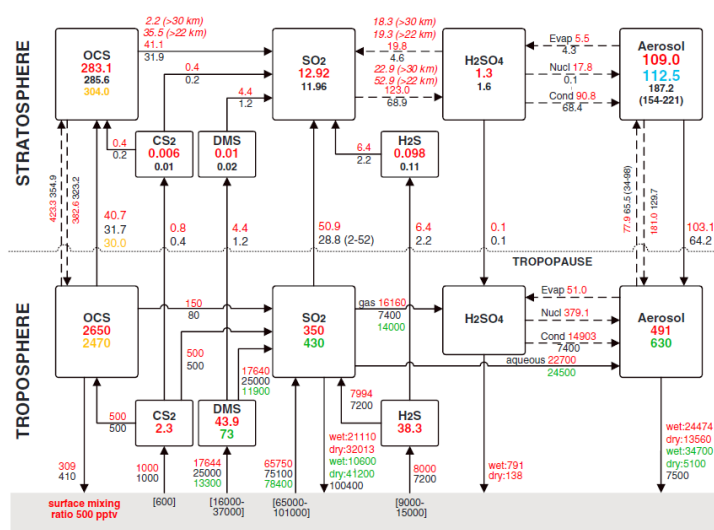


FIGURE 2.3 – Bilan global du soufre atmosphérique selon [Sheng et al., 2015]. Les flèches pleines représentent les flux nets d’émission de surface, le transport par la tropopause, les puits et les sources physico-chimiques et les transformations microphysiques en Gg de soufre par année. Les flèches en pointillées représentent le flux dans une direction ainsi que le détail des conversions microphysiques et chimiques. Les boîtes représentent les réservoirs des composés exprimés en Giga grammes de soufre. Les données en rouges sont issues du modèle SOCOL-ARE, les données en noires proviennent de SPARC (2006). Les données en vert proviennent du modèle GOCART [Chin et al., 2000]. Les données en orange proviennent de [Chin and Davis, 1995]. Les données en bleu représentent les mesures de SAGE II [Arfeuille et al., 2014]

Le dioxyde de soufre a deux origines, l’une naturelle liée aux émissions volcaniques et l’autre associée à la pollution. Le SO_2 anthropique provient de la combustion du bois et du charbon par le chauffage urbain (ex. brouillard sulfureux, smog de Londres à la fin du XIX ième et début XX ième siècle), les centrales thermiques et les feux de forêt. Les transports terrestres maritimes et aériens, par le résidu de soufre dans les produits pétroliers, en sont aussi des sources. Le dioxyde de soufre émis au niveau du sol est mesuré depuis près de 50 ans par les stations de surveillance de la qualité de l’air. Sa concentration maximale au cours des années 1980 aux Etats-Unis et en Europe, montre depuis une réduction estimée à 85-95%. Une diminution a aussi été observée dans les niveaux de SO_2 émis par le trafic aérien. Cependant les teneurs dans les pays tels que la Chine, l’Inde et le Brésil ont augmenté de façon marquée depuis quelques années [Notholt et al., 2005]. Les régions tropicales étant les zones privilégiées du transport de la troposphère vers la stratosphère, l’une des interrogations est de savoir si ces émissions ont une influence

sur la couche d'aérosols stratosphériques. Puisque le SO_2 à un temps de vie court de quelques mois, sa répartition géographique dépend des lieux de production et sa présence dans la TTL du mode de transport. Même si les travaux de modélisation de [Neely III et al., 2013] ont indiqué un rôle mineur des tendances des émissions du soufre asiatique sur la variabilité des aérosols stratosphériques par rapport à l'effet des éruptions volcaniques régulières, l'empreinte aux latitudes moyennes des aérosols associés à la mousson asiatique révélée par [Khaykin et al., 2017] maintient le débat sur l'ampleur de la contribution anthropique. Les observations de SO_2 de la haute troposphère à la tropopause sont rares. Les campagnes NASA PEM (National Aeronautics and Space Administration Pacific Exploratory Missions) et ACE 1 (Advanced Composition Explorer) sur l'Océan Pacifique ont révélé des différences inter-hémisphériques d'un ordre de grandeur, avec une décroissance de 100-200 *pptv* à 10-20 *pptv* dans la gamme d'altitude 4-12 *km*.

Autres gaz (DMS , CS_2 , H_2S)

Parmi les autres gaz, le sulfure de diméthyle (DMS) est produit principalement par les algues marines. Dans la basse troposphère, sa durée de vie n'est que de quelques heures car il s'oxyde très rapidement en SO_2 . Sa présence à haute altitude n'est donc possible que par un processus de transport rapide. Ainsi les campagnes PEM-West A & B ont montré que du DMS pouvait être injecté dans la haute troposphère et même parfois jusqu'à la tropopause durant des événements convectifs intenses [Thuburn and Craig, 1997].

Le disulfure de carbone (CS_2) est produit par l'industrie textile, les volcans et les zones marécageuses. Ce précurseur est caractérisé par une durée de vie courte dans la troposphère vue qu'il réagit rapidement avec le OH. Le taux de conversion du CS_2 en OCS mesuré en laboratoire est égal à 0.83 ± 0.08 [Stickel et al., 1993]. Le CS_2 est donc responsable de la durée de vie longue des OCS dans la troposphère [Kremser et al., 2016]. Les polluants comme le monoxyde de carbone (CO) depuis le nord de la Chine montrent une forte corrélation avec ce composé [Blake et al., 2004].

Le sulfure d'hydrogène (H_2S) est un gaz incolore émis par les volcans et l'industrie pétrolière. Il réagit dans la troposphère avec l'hydroxyle OH selon cette

réaction :



La durée de vie du H_2S selon cette réaction est de l'ordre de 70 h (3 jours) [Seinfeld and Pandis, 2006]. Le SH rentre dans une série de réaction pour former le SO_2 .

2.1.1.4 Eruptions volcaniques

Les éruptions volcaniques sont une source importante mais sporadique de gaz et d'aérosols dans la stratosphère. Les petites éruptions qui émettent dans la troposphère ont un impact limité sur le climat au regard des émissions anthropiques de soufre [Andres and Kasgnoc, 1998]. Par contre, certaines éruptions explosives peuvent atteindre la stratosphère quand le panache issu du volcan a assez de flottabilité pour traverser la tropopause. Ces événements-là ont en général un VEI (Volcanic Eruption Index; <https://www.volcano.si.edu/>) supérieur ou égal à 4. Les éruptions volcaniques majeures comme celles du El Chichon en 1982 et du Pinatubo en 1991, la dernière en date d'une telle amplitude (20 Tg de SO_2 injecté, VEI=6) ont impacté le contenu en aérosol stratosphérique à l'échelle globale pendant plusieurs années avec un impact significatif sur le climat mais dont l'ampleur reste débattue [Canty et al., 2013]. L'éruption du Pinatubo a été particulièrement documentée par des mesures satellites et in situ (SPARC, 2006). Ces aérosols stratosphériques d'origine volcanique peuvent affecter le système climatique de trois manières. Premièrement, une augmentation de la rétrodiffusion du rayonnement aux courtes longueurs d'onde par les petits aérosols peut entraîner une baisse des températures de la troposphère [McCormick et al., 1995]. Deuxièmement, les processus de condensation et de coagulation conduisent à des particules d'aérosol plus grosses qui réchauffent la stratosphère par absorption du rayonnement aux plus grandes longueurs d'onde, augmentant le gradient de température entre les tropiques et les pôles, accroissant l'upwelling tropical et modifiant les circulations locales [Young et al., 1994]. Troisièmement, une augmentation des processus chimiques hétérogène à la surface des aérosols volcaniques perturbe les composés azotés (NO_y) de la stratosphère et active les espèces radicalaires halogénées,

ce qui a entraîné une perte chimique de l’ozone polaire de plusieurs dizaines de pourcents [Fahey et al., 1993] et de quelques pourcents sur l’ensemble du globe [Randel et al., 1995]. La période qui a suivi, après sédimentation des aérosols du Pinatubo, a été l’opportunité d’observer et d’étudier le contenu en aérosols stratosphériques de fond, et ce pendant plusieurs années (SPARC, 2006) comme l’indique la Figure 2.4 après 1997.

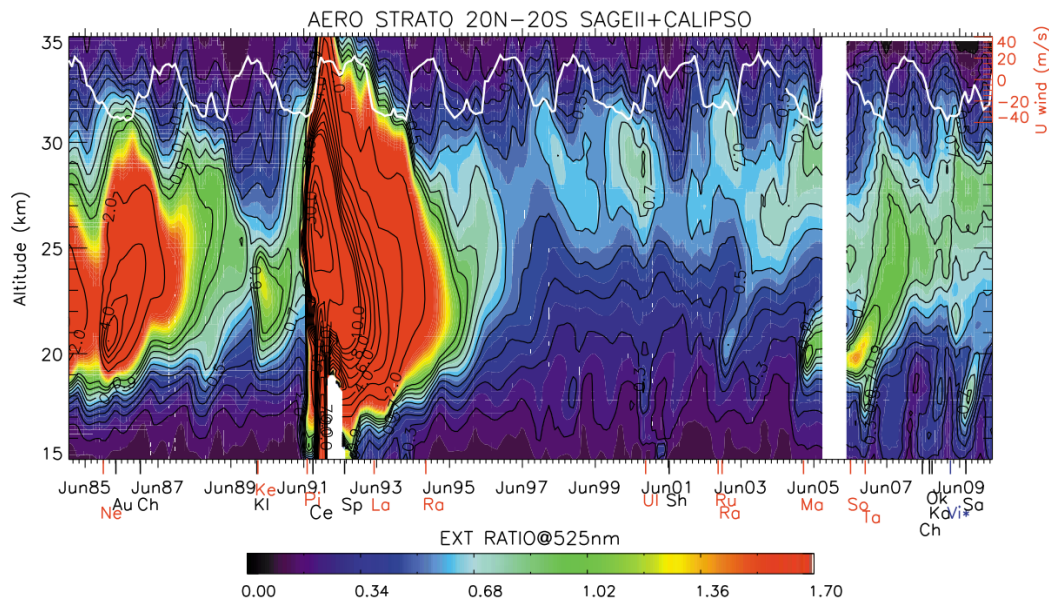


FIGURE 2.4 – Evolution de la moyenne mensuelle du rapport d’extinction (défini par le rapport entre extinction particulaire et moléculaire) mesuré à 525 nm par le spectromètre à occultation solaire SAGEII (période 1985-2005) et le lidar spatial CALIOP/Calipso (période 2006-2010) entre 20°S et 20°N . Les signaux des panaches des volcans Nevado del Ruiz (Ne; 5°S) et Pinatubo (Pi; 15°N) sont particulièrement visibles à partir respectivement de 1985 et 1991 [Vernier et al., 2011b]

S’en est suivi une série d’éruptions de moindre ampleur mais beaucoup plus régulières que les événements majeurs (Table 2.1), principalement à partir de 2006 avec celle du volcan Soufrière Hills. Ces éruptions dites modérées injectent en général (et au mieux) 10 fois moins de SO_2 que le Pinatubo. Elles sont capables d’augmenter significativement le budget des aérosols sur quelques mois au sein de l’hémisphère d’émission (Figure 2.5), voire plus pour des injections aux latitudes équatoriales pour lesquelles le temps de vie s’allonge. Il est plutôt à présent bien admis que ces éruptions constituent le mécanisme majeur de modulation du contenu en aérosols stratosphériques [Vernier et al., 2011b, Khaykin et al., 2017]

même si la tendance générale est à l'augmentation dans l'hémisphère nord depuis le début des années 2000. Cette augmentation masquée par ces éruptions, pourrait toutefois être liée à la pollution asiatique comme semblent l'indiquer les résultats de [Khaykin et al., 2017]. Leur régularité rend le concept de conditions en aérosols « de fond » difficile à définir. Les quantités de soufre émises par ces volcans varient énormément d'une éruption à l'autre. Les 3 éruptions ayant le plus impacté le contenu en aérosols de la stratosphère de l'hémisphère nord jusqu'en 2019 sont celles Sarychev [Lurton et al., 2018], du Nabro [Mills et al., 2016] et du Raikoke [Kloss et al., 2021], avec respectivement $\approx 0,9$, $\approx 1,5$ et $\approx 1,5 Tg$ de SO_2 injecté, même si ces valeurs peuvent toujours être sujettes à révision.

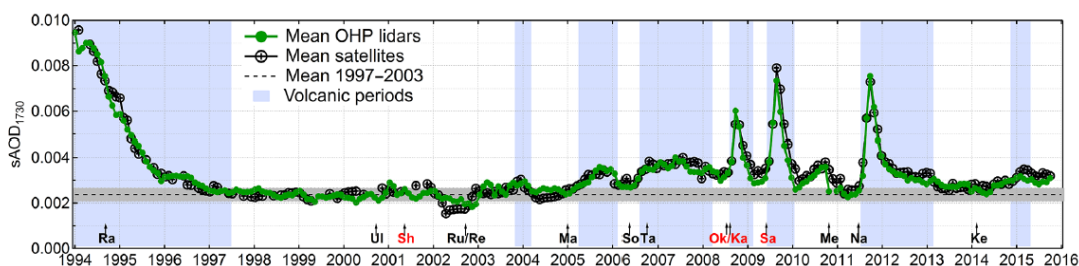


FIGURE 2.5 – Série temporelle de la moyenne mensuelle de l'épaisseur optique SAOD entre 17 et 30 km calculée à partir la moyenne des mesures des 2 lidars de l'observatoire de Haute Provence (OHP ; 43.9°N, 5.7°E ; 670 m a.s.l(average sea level ou niveau moyen de la mer).) et de différentes données satellites $\pm 5^\circ$ autour du site de l'OHP. Les éruptions dont le VEI est ≥ 4 sont indiquées le long de l'axe des x. Les éruptions ayant eu lieu aux latitudes moyennes de l'hémisphère nord sont marquées en rouge. La ligne pointillée horizontale et l'ombrage gris indiquent la valeur moyenne de SAOD sur la période de référence sans influence volcanique (« de fond »). Les périodes considérées comme perturbées par le volcanisme sont indiquées en bleu clair [Khaykin et al., 2017]

2.1.2 Autres sources de particules stratosphériques

2.1.2.1 Les nuages stratosphériques polaires

Les très basses températures atteintes dans les masses d'air isolées par le vortex polaire permettent la formation de nuages stratosphériques polaires (PSC, Polar Stratospheric Clouds). Ce terme fut introduit pour la première fois par [McCormick et al., 1982] suite aux fortes valeurs d'extinction mesurées par l'instrument satellite SAM II dans l'hémisphère nord, en janvier 1979. Typiquement, toutes les couches d'aérosols observées hors période volcanique intense, dont le co-

Tableau 2.1 – Liste des éruptions de $VEI \geq 4$ ayant eu lieu aux latitudes tropicales et latitudes moyennes de l’hémisphère nord répertoriées par le Smithsonian Institution Global Volcanism Program (<https://volcano.si.edu>) sur la période 1991-2015.

Volcan (VEI 4)	Date de l'éruption	Latitude
Pinatubo	Juin 1991	15°N
Rabaul	Septembre 1994	4°S
Ulawun	Septembre 2000	5°S
Shiveluch	Mai 2001	56°N
Ruang	Septembre 2002	2°N
Reventador	Novembre 2002	0°N
Manam	Janvier 2005	4°S
Soufrière Hills	Mai 2006	16°N
Tavurvur	Octobre 2006	4°S
Okmok	Juillet 2008	55°N
Kasatochi	Août 2008	55°N
Sarychev	Juin 2009	48°S
Merapi	Octobre 2010	7°S
Nabro	Juin 2011	13°N
Kelud	Février 2014	8°S
Ambae	Avril et juillet 2018	16°S
Raikoke	Juin 2019	48°N
Ulawun	Juin et août 2019	5°S

efficient d’extinction à $1 \mu m$ excède $8.10^{-4} km^{-1}$ à une altitude de $3 km$ ou plus au-dessus de la tropopause locale, sont définies comme étant des PSC. Ces nuages ont une épaisseur moyenne comprise entre 4 et $6 km$, bien qu’il en existe de beaucoup plus fins. Ils peuvent être observés typiquement à des altitudes de 16 à $26 km$, au nord de 60° de latitude, entre mai et septembre en Antarctique, et entre décembre et mars en Arctique [McCormick and Trepte, 1986, Poole and Pitts, 1994]; leur apparition étant corrélée avec les basses températures, ils sont moins fréquents en Arctique, où ils résident à plus hautes latitudes et ont une durée de vie plus courte. Les nuages stratosphériques polaires se forment à partir des centres de nu-

cléation offerts par les molécules d'acide sulfurique, ou par condensation de HNO_3 stratosphérique. Par des mécanismes chimiques hétérogènes, les PSC convertissent les NO_x espèces azotées inorganiques qui sont censées inhiber au moins partiellement les cycles catalytiques de destruction d'ozone par les composés halogénés (chlorés et bromés) dans la basse stratosphère, en HNO_3 qui un réservoir plus stable d'espèces azotées (processus dit de dénoxydation). De plus, un mécanisme de grossissement et de sédimentation des PSC participe à la dénitrification ainsi qu'à la déshydratation de la stratosphère polaire. La dénoxydation et la dénitrification accentuent donc la destruction d'ozone engendrée par les cycles catalytiques halogénés.

Un transport en dehors de la stratosphère des aérosols se produit à partir du vortex polaire lorsque les particules d'acide sulfurique servent de sites pour la formation de PSC. En effet, certaines particules de PSC composées d'hydrate d'acide nitrique ou de glace peuvent atteindre un diamètre de plusieurs microns et sédimenter rapidement jusqu'à la tropopause, entraînant avec elles les particules d'acide sulfurique incluses. A noter que des processus d'élimination similaires se produisent dans les cirrus qui se forment à l'altitude de la tropopause.

2.1.2.2 Les cendres volcaniques

De compositions complexes et de formes très irrégulières, les cendres volcaniques peuvent atteindre la stratosphère lors des éruptions volcaniques intenses [Kristiansen et al., 2015, Niemeier et al., 2009, Stothers, 2001], comme cela a été montré pour le Pinatubo. A partir d'observations satellites, certaines éruptions volcaniques modérées comme celles du Kélud en février 2014 et du Raikoke en juin 2019 ont co-injecté des cendres volcaniques en même temps que le SO_2 [Vernier et al., 2016, Kloss et al., 2021]. Les propriétés optiques des cendres sont difficiles à caractériser devant la grande diversité de leurs formes et de leurs compositions. Elles possèdent un pouvoir absorbant dans le spectre solaire. On considère en général qu'elles possèdent un faible pouvoir de réaction chimique notamment à cause de leur caractère hydrophobe peu de temps après leur production, cependant leur réactivité chimique évolue dans le temps avec leur vieillissement, ce qui

rend les cendres volcaniques particulièrement difficiles à modéliser. Les travaux de [Zhu et al., 2020] ont cependant indiqué que l'adsorption du SO_2 à la surface des particules de cendres modifiait de manière significative le temps de vie de SO_2 et le timing de formation des aérosols sulfatés. [Kremser et al., 2016] considèrent que l'influence des cendres volcaniques sur le bilan radiatif est faible à cause de leur court temps de résidence dans l'atmosphère [Niemeier et al., 2009].

2.1.2.3 Détection de poussières interplanétaires dans la stratosphère

L'atmosphère de la Terre rencontre tous les jours des dizaines de tonnes de matériaux interplanétaires [Love and Brownlee, 1993], bien que les quantités entrantes précises souffrent d'incertitudes très importantes. Des météorites se désintègrent dans la moyenne et haute atmosphère, produisant des débris plus ou moins gros. Une très faible quantité de ces poussières réussissent à pénétrer l'atmosphère terrestre et atteindre le sol. Appelées "micrométéorites", de quelques μm jusqu'à $500 \mu m$ de diamètre, elles peuvent être recueillies après avoir été transportées à la surface de la Terre, principalement sur la neige [Maurette et al., 1991, VanderWood et al., 1996, Duprat et al., 2007]. Dans la moyenne et la haute stratosphère, les extinctions du satellite SAGE II ont été comparées aux calculs de modélisation (WACCM) en supposant que seuls les aérosols liquides étaient présents [Neely III et al., 2011]. Une forte augmentation des extinctions mesurées a été trouvée au-dessus de $30 km$ d'altitude en moyenne ; une valeur d'extinction moyenne d'environ $5.10^{-6} km^{-1}$ est trouvée à $40 km$ d'altitude bien que les calculs du modèle fournissent une valeur nulle pour les aérosols de sulfate. L'excès d'extinction est probablement associé à la contribution des particules météoritiques, provenant de la désintégration des météorites ou micrométéorites et des processus de recondensation [Bardeen et al., 2008, Plane et al., 2018]. La présence de grains solides de $1 \mu m$ de diamètre (ou plus) et d'augmentations fortes et sporadiques de concentration en aérosols réparties sur des couches fines dans la stratosphère moyenne a été mise en évidence en utilisant des mesures sous ballon [Renard et al., 2005, Renard et al., 2019], sans cependant que leur origine météoritique ne soit clairement déterminée. Les spectromètres de masse embarqués

sous avion ont détecté une large gamme d'éléments dans les aérosols de la basse stratosphère jusqu'à 19 *km* d'altitude indiquant la présence de matériel météoritique avec des proportions plus fortes aux latitudes polaires [Murphy et al., 1998, Murphy et al., 2007]. En utilisant des techniques aéroportées de comptage et de chauffage pour éliminer les matières volatiles, on a trouvé une fraction beaucoup plus élevée de particules contenant des résidus non volatils à l'intérieur qu'à l'extérieur du vortex polaire [Curtius et al., 2005]. Ces particules ont été attribuées au transport descendant de matériaux météoritiques réfractaires à l'intérieur du vortex polaire, de la mésosphère à la basse stratosphère, comme l'ont conclu les collectes d'aérosols [Weigel et al., 2014, Ebert et al., 2016]. La présence de particules non-transparentes optiquement a également été constatée dans la mesure de l'extinction de l'instrument GOMOS/Envisat, pour lequel la dépendance de la longueur d'onde des extinctions différait fortement de celle attendue pour les aérosols liquides purs [Salazar, 2010]. Les questions de savoir si ces particules correspondent systématiquement à des particules météoritiques, si elles sont présentes en mélange interne avec les aérosols sulfatés de la stratosphère, avec quel rapport de masse, quelle échelle spatio-temporelle, et quelle contribution en tant que site de condensation de particules de PSC restent largement débattues (SPARC, 2006).

2.1.2.4 Détection des aérosols carbonés dans la stratosphère

En 1995, des mesures in situ utilisant une technique d'impact embarqué sur l'avion ER-2 ont collectées dans la haute troposphère et basse stratosphère des agglomérats de suie. Différents vols ont été conduits à des latitudes de 90°N à 45°S vers 21 *km* d'altitude. Il a été suggéré que la combustion du carburant d'aviation est la principale source et que ces suies peuvent être transportée à des altitudes plus élevées [Blake and Kato, 1995]. La proportion des aérosols de Black Carbon (BC ; par définition issu d'un processus de combustion complet) pourrait être d'environ 1 % du contenu total des aérosols dans la basse stratosphère. D'autre part, à l'aide de techniques in situ aéroportées de mesure de la diffusion de la lumière et par incandescence, la concentration de particules optiquement absorbantes (attribuées au BC et aux particules contenant des métaux comme des poussières

météoritiques) a été estimée dans la gamme de taille de 0,2 à 0,8 μm au-dessus de la tropopause dans le vortex polaire nord [Baumgardner et al., 2004]. Plus de 10 particules. cm^{-3} ont été trouvées dans cette gamme de taille, avec des teneurs plus élevées que pour l'air en dehors du vortex. D'après ces observations, les particules absorbant la lumière d'une taille comprise entre 0,2 et 0,3 μm sont plus abondantes d'un facteur 10 que les particules n'absorbant pas la lumière ; inversement, les particules n'absorbant pas la lumière d'une taille supérieure à 0,3 μm sont plus abondantes d'un facteur 10 que les particules absorbant la lumière. Aux latitudes non polaires, les mesures aéroportées in situ par spectrométrie de masse ont révélé un mélange de sulfate et de particules organiques, cette catégorie d'aérosols étant dominante dans la basse stratosphère des latitudes moyennes et tropicales par rapport aux sulfates purs [Murphy et al., 2007]. Ces observations concordent avec les résultats obtenus dans la région tropicale nord [Schwarz et al., 2006], où 40 % des particules BC présentaient des signes de mélange interne. Ensuite, la fraction moyenne de matière carbonée dans les particules stratosphériques diminue rapidement avec l'altitude. Des études théoriques proposent une explication pour le transport des particules de suies vers des hautes altitudes [Rohatschek, 1996]. Les auteurs proposent une force d'induction créée par la lumière du soleil agissant sur les particules géométriquement asymétriques et fortement absorbantes comme les suies. Les particules irradiées peuvent être transportées en altitude et leur temps de résidence est prolongé. Ce phénomène s'appelle la gravito-photophorèse. [Murphy et al., 2007] ont constaté que les particules organiques et ayant un diamètre supérieur à 0,3 μm peuvent rester pendant des mois dans l'atmosphère. D'autre part, les particules d'origine météoritiques possèdent une quantité de carbone (organique ou élémentaire) faible et ne contribuent probablement que peu à ce fond de particules de suies dans la stratosphère. Les faibles dépendances spectrales de l'extinction des aérosols stratosphériques mesurées dans le visible par l'instrument GOMOS/Envisat jusqu'à 30 km d'altitude pourraient être potentiellement attribuées à la présence de suies [Salazar, 2010]. Les sources de ces particules organiques et optiquement absorbantes ne sont pas claires mais pourraient être, au moins en partie, liées aux épisodes de feux. Une augmentation spectaculaire de l'oc-

currence des feux intenses de forêts est observée chaque été ces dernières années sans doute en lien avec le réchauffement climatique. Cela génère des épisodes d'injection massive dans la stratosphère de particules de fumée (brown carbon, black carbon, aérosols organiques secondaires) qui peuvent monter sur plusieurs kilomètres d'altitude et persister pendant des mois en raison du chauffage généré par l'absorption du rayonnement solaire. Depuis l'été 2017, marqué par des incendies en Amérique du nord dont les émissions ont impacté le contenu en aérosols stratosphériques de l'hémisphère nord [Khaykin et al., 2018, Kloss et al., 2019], d'autres épisodes extrêmes se sont produits, le plus marquant étant celui des feux en Australie de la fin 2019 et début 2020 [Khaykin et al., 2020]. La fin de l'été 2020 et l'été 2021 ont vu également des injections dans la stratosphère de particules issues de feux en Amérique du nord, montrant l'aspect très récurrent du phénomène. Des résultats surprenants et tous récents ont révélé que les panaches de fumée s'auto-organisent en tourbillons anticycloniques compacts qui peuvent persister pendant plus d'un mois et se déplacer sur des distances considérables horizontalement et verticalement [Khaykin et al., 2020, Lestrelin et al., 2021]. Par exemple, après les feux australiens, une grande structure atteignant 1000 *km* de diamètre, a persisté pendant trois mois, a parcouru plus de 66000 *km* et est passé de 16 *km* à 35 *km* d'altitude, amenant les aérosols troposphériques à cette altitude, peut-être pour la première fois depuis l'éruption du mont Pinatubo en 1991. Le confinement du panache de fumée a été crucial pour maintenir le réchauffement responsable de cette ascension. Ces tourbillons sont caractérisés par de faibles quantités d'ozone (troposphérique) par rapport à l'air environnant (stratosphérique) alors que l'on s'attend typiquement à ce que les panaches de combustion de biomasse soient chimiquement réactifs, produisant de l'ozone et des aérosols par la chimie *NOx* – *VOC* (Volatil Organic Compounds) [Wigder et al., 2013]. Ceci reflète de la complexité des processus couplés dynamique-chimie en leur sein. En dehors de ces phénomènes extrêmes, les particules émises par les feux de biomasse dans la troposphère à l'échelle globale (en dehors des événements extrêmes) pourraient jouer un rôle. De plus, l'ATAL (Asian Tropopause Layer) est une couche d'aérosols apparaissant chaque été et confinée dans l'anticyclone de la mousson situé dans la

région de la tropopause [Vernier et al., 2011a]. L'ATAL est liée au transport de la pollution asiatique par la convection de la mousson avec une composition en aérosols sulfatés, aérosols organiques et nitrates notamment déterminée à partir de simulations numériques [Ma et al., 2019, Bossolasco et al., 2021] et d'analyse en laboratoire (chromatographie ionique) de particules collectées au sein de l'ATAL [Vernier et al., 2018]. Lorsque l'anticyclone de la mousson se délite, les masses d'air se mélangent et l'on retrouve une signature optique, certes diluée, des aérosols de l'ATAL dans la basse stratosphère aux latitudes moyennes de l'hémisphère nord [Khaykin et al., 2017].

2.1.3 Les propriétés microphysiques des aérosols sulfatés

La Figure 2.6 illustre les principales espèces de soufre atmosphérique et les réactions de conversion qui conduisent à la formation du précurseur gazeux des aérosols de sulfate stratosphériques, à savoir l'acide sulfurique (H_2SO_4).

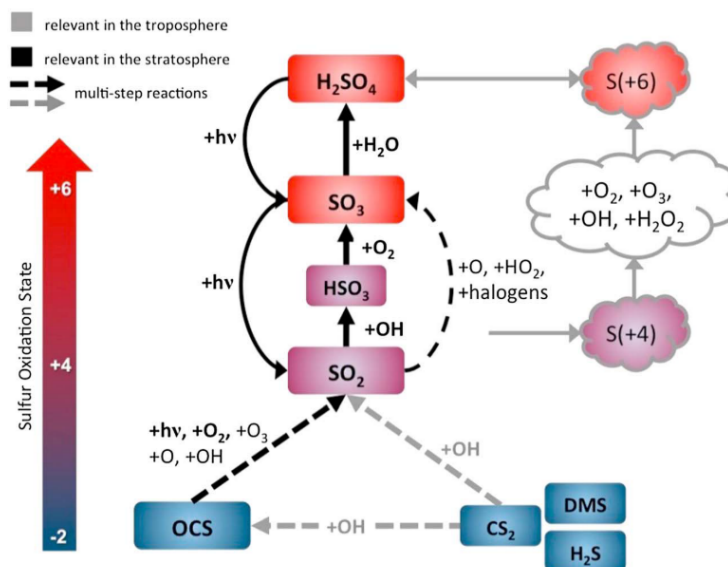


FIGURE 2.6 – Schématisation simplifiée des différentes réactions chimiques menant à la production de l'acide sulfurique en stratosphère. La couleur des flèches grises ou noires indique le lieu des réactions, respectivement en troposphère ou en stratosphère. Les couleurs bleu à rouge représentent le degré d'oxydation du soufre (adapté de [Kremser et al., 2016])

2.1.3.1 Nucléation, condensation et Coagulation

Après les processus chimiques conduisant à la formation du H_2SO_4 gazeux ayant une pression de vapeur saturante très faible, il passe rapidement en phase

particulaire par des processus microphysiques. La pression partielle de vapeur de H_2SO_4 dans la stratosphère est généralement sursaturée et, par conséquent, le H_2SO_4 gazeux se condense rapidement. La vapeur d'eau est toujours relativement abondante ; et par conséquent, la co-condensation de H_2SO_4 et d'eau est le procédé préférentiel [Hamill et al., 1990, Curtius et al., 2005] formant généralement de nouveaux aérosols via une nucléation binaire homogène. Des températures basses, de faibles surfaces de particules et des humidités relatives élevées sont des conditions idéales pour une nucléation binaire homogène. Le taux de nucléation est maximal dans la région de la tropopause tropicale [Weigel et al., 2011]. Les particules formées dans cette étape sont des embryons ou noyaux d'Aitken ; bien qu'ils soient nombreux, ces aérosols de petit diamètre sont difficiles à détecter. Dans la stratosphère, les particules météoriques ou les suies seraient susceptibles servir de noyaux de condensation pour une nucléation hétérogène.

Une fois formés, les nouveaux aérosols peuvent se développer davantage par condensation ou coagulation. En effet, quand le premier agrégat moléculaire est formé par nucléation, les molécules d'eau et de H_2SO_4 en phase gazeuse se fixent sur ce noyau à des pressions de vapeur saturantes contribuant ainsi à la croissance de cet agrégat. Ce processus de condensation de molécules gazeuses à la surface des particules contribue au grossissement de la taille moyenne des aérosols stratosphériques, mais ne fait pas varier leur nombre.

La coagulation, qui se produit par adhésion d'une particule à une ou plusieurs autres, implique un grossissement et une diminution du nombre d'aérosols.

2.1.3.2 Evaporation et Sédimentation

La distribution spatiale des aérosols stratosphériques sous la forme d'une couche d'aérosols distincte est en partie due aux processus microphysiques d'évaporation et de sédimentation (décantation gravitationnelle). Les aérosols de la stratosphère tropicale sont transportés vers le haut par la BDC. Dans ce soulèvement, il y a une ségrégation par taille car les aérosols plus gros avec des vitesses terminales appréciables (proportionnelles au carré du rayon) se déplacent vers le haut soit plus lentement, soit vers le bas s'ils sont suffisamment gros. Ainsi, les aérosols strato-

sphériques sont généralement de petites particules avec un rayon inférieur à 0,2 micromètre pendant les périodes qui ne sont pas affectées par les éruptions volcaniques [SPARC, 2006]. Si l'aérosol se déplace dans un environnement plus chaud, par exemple au-dessus d'environ 32 à 35 *km* d'altitude, l'aérosol s'évapore. En conséquence, pratiquement tout le soufre réside dans la phase gazeuse dans cette région d'altitude et les concentrations d'aérosols sulfatés diminuent rapidement à proximité de cette altitude. Par conséquent, les mesures lidar au sol et par satellite basent souvent leurs étalonnages sur cette région relativement exempte d'aérosols [Vernier et al., 2009]. Le nouveau soufre en phase gazeuse est finalement transporté vers les hautes latitudes où, dans la branche descendante de la BDC, il rencontre des températures plus basses favorables à la recondensation en aérosols sulfatés. Le transport à grande échelle et le mélange isentropique des aérosols ainsi que la nucléation/condensation et la sédimentation aboutissent à un maximum relatif quasi constant de la concentration en nombre de particules à environ 20 km (couche de Junge), selon la latitude [Deshler, 2008], en situation non perturbée par les éruptions volcaniques.

2.1.3.3 Distribution en taille

La distribution en taille des aérosols stratosphériques fluctue spatialement et temporellement en fonction des variations saisonnières de la circulation stratosphérique et de l'importance relative des processus microphysiques. La distribution des aérosols fluctue aussi à l'échelle interannuelle sous l'effet des variations des sources, en particulier celles causées par des grandes éruptions volcaniques. La taille des particules sulfatées stratosphériques évolue dans le temps après une éruption majeure. Lors de périodes volcaniques, les particules sont de diamètres plus importants et sont organisées selon des distributions bimodales (Figure 2.7) tandis qu'en période de fond la distribution des particules est monomodale. Cette distribution en taille évolue avec le temps après une éruption, les distributions se répartissent autour de diamètres moyens plus élevés (les particules grossissent) puis la situation converge lentement vers la situation de fond si aucune éruption ne vient perturber de nouveau la situation [Jäger and Deshler, 2002]. Les particules soufrées de fond

possèdent des diamètres de l'ordre de 160 nm, tandis que les modes des distributions post-Pinatubo sont supérieurs à 200 nm, jusqu'à 1,5 μm pour un mode secondaire qui perdure quasiment un an après l'éruption [Jäger and Deshler, 2002]. On exprime souvent la distribution de taille des aérosols avec des paramètres effectifs tels que le rayon effectif r_e et le nombre de particules effectifs total N_0 . Le rayon effectif est directement lié aux propriétés d'extinction de la couche d'aérosol et s'avère le paramètre le plus convenable pour l'étude interaction aérosol-climat. Ces deux quantités sont définies selon [Korolev et al., 1999].

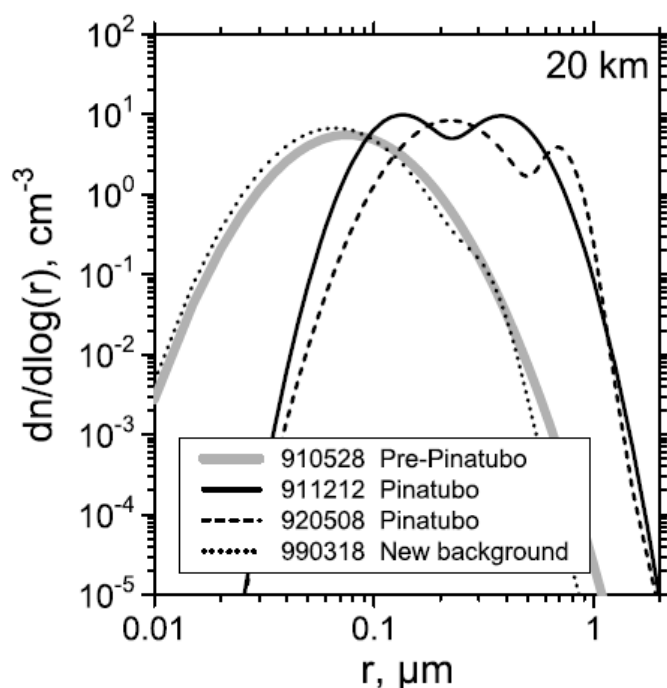


FIGURE 2.7 – Distribution des concentrations de particules à 20 km selon leurs rayons et pour différentes périodes de temps après l'éruption du Pinatubo en 1991 [Jäger and Deshler, 2002]

2.2 Instruments et techniques de mesure des aérosols

Les aérosols stratosphériques sont observés depuis le sol, à bord de ballons et par des satellites. Les mesures à distance par télédétection offrent une vision globale de leur évolution temporelle ou spatiale, les mesures in situ apportant une information sur leur taille et leur composition. Ces deux méthodes globales de caractérisation d'aérosols peuvent être pratiquées avec les différents instruments

optiques : les mesures in situ, et les mesures par télédétection. Nous présentons ci-dessous une liste non-exhaustive des instruments de ce type permettant l'étude des aérosols de la stratosphère.

2.2.1 Les mesures in situ

La caractérisation des aérosols sulfatés troposphériques et stratosphérique est plus simple et se fait à travers les mesures aéroportées ou de mesures sous ballons qu'ils soient légers en latex (ballons météorologiques) ou en plastique ouverts (BSO du CNES). Les mesures en avion ne permettent pas de sonder la stratosphère puisqu'elles sont limitées à la haute troposphère, exceptions faites de l'ER2 américain ou du M55 Russe qui atteignent 20 km. Les ballons légers peuvent embarquer des compteurs optiques de particules (OPC) qui permettent d'avoir une distribution en taille des aérosols, et aussi les sondes à rétrodiffusion (backscatter ou BKS) qui mesurent la diffusion moléculaire et particulaire [Vernier et al., 2018]. Certains travaux ont caractérisé ces aérosols dans des régions proches des cratères volcaniques actifs en utilisant des impacteurs [Mather et al., 2003, Martin et al., 2011]. Ces mesures permettent d'élaborer une caractérisation physico-chimique détaillée des particules à l'échelle locale.

2.2.1.1 Compteurs optiques de particules utilisés au LPC2E

L'instrument LOAC (Light Optical Aerosol Counter) est un compteur optique de particules qui peut être déployé sur des ballons météorologiques en latex [Renard et al., 2016a, Renard et al., 2016b]. Le principe général consiste à injecter des particules d'aérosol à travers une chambre optique par un système de pompage. Les particules traversent un faisceau laser et la lumière diffusée par les particules est enregistrée par des photodiodes. Une correspondance directe entre l'intensité de la lumière diffusée et le diamètre optique des particules est rendue possible grâce à un étalonnage en laboratoire à l'aide de particules de référence. Le LOAC fournit des concentrations en nombre de particules pour 19 tailles dans la gamme de tailles de 0,2 à 50 μm , avec une incertitude de $\pm 20\%$ pour des concentrations supérieures à 10 particules. cm^{-3} . Suivant les statistiques de Poisson, l'incertitude augmente jusqu'à environ $\pm 30\%$ pour les concentrations de particules submicroniques supé-

rieures à 1 particule. cm^{-3} , et à environ $\pm 60\%$ pour les concentrations inférieures à 10^{-2} particules. cm^{-3} . LOAC utilise une approche statistique pour récupérer la concentration de particules inférieures à 1 μm . Lorsque la concentration de particules submicroniques est faible, typiquement inférieure à 10 particules. cm^{-3} pour des tailles supérieures à 0,2 μm , le temps d'intégration doit être augmenté jusqu'à 10 min. Ainsi, lorsqu'il est utilisé sous ballon, la résolution verticale du LOAC est comprise entre 1 km et 3 km pour une vitesse de remontée d'environ 5 $m.s^{-1}$.

Le compteur POPS (Printed Optical Particle Spectrometer) a été développé par la société américaine Handix Scientific. L'instrument pèse environ 800 g et utilise un laser à diode de 405 nm. L'air ambiant est aspiré par une buse d'entrée vers une chambre optique avec un flux contrôlé. Des lentilles cylindriques focalisent le faisceau laser pour maximiser le rapport signal/bruit et l'uniformité de l'intensité du laser sur la verticale. Une fraction de la lumière diffusée élastiquement par chaque particule individuelle est collectée par un miroir sphérique et dirigée vers un tube photomultiplicateur qui génère un courant électrique proportionnel à la quantité de lumière diffusée détectée. Le signal du tube photomultiplicateur est numérisé, et le courant maximal associé à chaque particule détectée est enregistré par un micro-ordinateur. Ce signal maximal détecté pour une particule donnée est une mesure de la taille optique de la particule. POPS fournit des mesures de la concentration en nombre et de la distribution de taille des aérosols dans la plage de taille de 140 à 3000 nm [Gao et al., 2016]. Les incertitudes basées sur la statistique de Poisson sont :

- pour des concentrations de l'ordre de $10^{-2}cm^{-3}$, l'erreur statistique est de 73%
- pour des concentrations de l'ordre de $10^{-1}cm^{-3}$, l'erreur statistique est de 23%
- pour des concentrations $> 1cm^{-3}$, l'erreur statistique est de 7 %.

Les erreurs proviennent principalement d'éventuels décalages entre les indices de réfraction utilisés pour l'étalonnage instrumental et les particules atmosphériques. Cependant, cet effet est considérablement réduit pour les gouttelettes d'acide sulfurique inhérentes aux panaches volcaniques.

2.2.1.2 Sondes à rétrodiffusion

Les sondes à rétrodiffusion (backscatter ou BKS) effectuent des mesures in situ de la diffusion moléculaire et particulaire en éclairant l'atmosphère avec une lampe au xénon dont on mesure la lumière rétrodiffusée à l'aide de deux photodiodes à 480 et 940 *nm*. Le rapport de diffusion est calculé à partir de la diffusion totale et de la diffusion moléculaire déduite de la densité de l'air, elle-même issue de mesures de température et de pression [Rosen and Kjome, 1991].

Des sondes COBALD (acronyme de Compact Optical Backscatter Aerosol Detector) ont été développées récemment par l'université de Zurich, plus légères et plus précises mais dont le principe est semblable. L'instrument LABS est une diode laser émettant à 532 *nm* [Buontempo et al., 2006] suivant le même principe.

2.2.2 Les mesures par télédétection

Le mot télédétection est un mot général qui désigne l'ensemble des techniques qui permettent d'étudier à distance des objets ou des phénomènes, en utilisant les propriétés du rayonnement électromagnétique émis, absorbé, ou diffusé par les objets qu'on observe. Suivant l'origine du rayonnement, on distingue deux types de télédétection : la télédétection passive et la télédétection active. Si le capteur satellitaire mesure le rayonnement naturellement disponible, on parle alors d'une télédétection passive. Dans le cas où le rayonnement est produit par l'instrument pour éclairer la cible, on parle alors d'une télédétection active, dont les applications les plus connues sont le lidar (domaine UV/VIS/NIR) et le radar (dans le domaine des micro-ondes).

2.2.2.1 La télédétection au sol

Les aérosols volcaniques peuvent être mesurés depuis le sol par des méthodes de télédétection actives ou passive. Le réseau AERONET, faisant appel à la télédétection passive, a été mis en place par le Goddard Space Flight Center (NASA) et le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA). Il englobe plus de 600 photomètres solaires qui permettent de mesurer les propriétés optiques des aérosols à des longueurs d'ondes différentes. D'autres instruments passifs tels que le radiomètre

MFRSR (Multi-Filter Rotating Shadowband Radiometer) et le photomètre solaire transportable (Microtops) ont été utilisés pour la caractérisations des aérosols volcaniques de l'Etna [Sellitto et al., 2017].

Les Lidars

Les Lidars (acronyme pour **L**ight **D**etection **A**nd **R**anging) fonctionnent le plus souvent depuis le sol. L'instrument est constitué d'une source laser et d'un télescope qui collecte la lumière rétrodiffusée par les aérosols ; le temps qui s'écoule entre l'émission de l'impulsion laser et le retour du signal diffusé est directement lié à l'altitude à laquelle les particules sont présentes. Les propriétés déduites des mesures lidars sont le résultat de l'interaction matière et rayonnement, qui elle-même dépend de la nature et la géométrie des particules. Il est possible avec un lidar d'étudier la diffusion par les particules, la diffusion Rayleigh due aux molécules d'air et la diffusion Raman inélastique de l'air. La plupart des mesures lidar dans la stratosphère se font à longueur d'onde fixe, dont le choix dépend de deux conditions. La première est de se situer dans une fenêtre atmosphérique afin d'éviter l'absorption du signal par différents gaz ($\lambda \leq 1000 \text{ nm}$) et l'autre de se placer à une longueur d'onde où la diffusion par les aérosols est suffisamment grande par rapport à la diffusion moléculaire ($\lambda \geq 300 \text{ nm}$). Dans ces conditions, la gamme de longueurs d'onde possible se situe entre le proche UV et le proche IR. La plupart des lidars utilisent le canal 532 nm , seconde harmonique du laser Nd :YAG. La fondamentale à 1064 nm et la troisième à 355 nm sont aussi utilisées.

2.2.2.2 Télédétection spatiale du dioxyde de soufre et d'aérosols

Les capteurs satellitaires sont caractérisés par diverses résolutions spatiales et temporelles en utilisant des longueurs d'ondes différentes (ultraviolet, infrarouge et micro-ondes).

Le SO_2 est le seul gaz volcanique surveillé jusqu'à présent d'une manière opérationnelle par satellite pour l'aviation civile (<https://sacs.aeronomie.be/>). Les mesures satellitaires des aérosols sulfatés utilisent des méthodes qui sont plutôt qualitatives ou reposent sur des méthodes de restitution semi-quantitatives. Nous présentons dans le tableau 2.2 un aperçu des différents capteurs satellitaires qui

mesurent les aérosols de la stratosphère en utilisant des géométries différentes (Figure 2.8). Ces capteurs sont divisés en groupe selon la région spectrale (ultraviolet, visible, infrarouge et micro-ondes). Quelques informations figurantes dans ce tableau ont été pris de [Thomas and Watson, 2010] ; [Carn et al., 2016]. Nous avons apporté une mise à jour et une adaptation pour les aérosols stratosphériques.

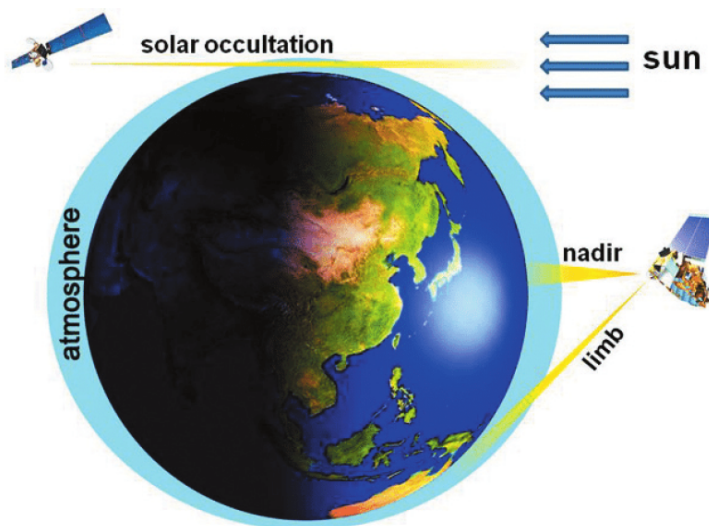


FIGURE 2.8 – Géométries d’observation verticale (nadir) et horizontale (limb et occultation) du satellite. Le nadir est le point qui se trouve directement en dessous de la trajectoire du satellite. La géométrie au limbe présente un chemin beaucoup plus long dans l’atmosphère [Kesavan and Stuebing, 2009]

IASI

L’instrument IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) est embarqué à bord des plateformes MetOp-A, B et C depuis 2006, 2012 et 2018. C’est un interféromètre à transformée de Fourier basé sur un interféromètre de Michelson qui mesure le rayonnement infrarouge entre 645 et 2760 cm^{-1} , avec un échantillonnage spectral de 0.25 cm^{-1} avant apodisation [Clerbaux et al., 2009]. IASI est en orbite héliosynchrone à 836 km . Sa géométrie est représentée par la figure 2.9. Il effectue 30 visées le long de la ligne de mesure espacées de 3.3 . La couverture mondiale est réalisée deux fois par jour avec des pixels circulaires de 12 km de diamètre sur une matrice 2×2 au nadir. La mission IASI a pour but principalement de fournir des profils de température et de vapeur d’eau avec une résolution verticale élevée. Les aérosols sulfatés volcaniques ont été détectés par IASI en utilisant

des méthodes semi-quantitatives [Haywood et al., 2010, Karagulian et al., 2010, Clarisse et al., 2014]. Cette méthode est basée sur la construction des matrices de covariance à partir des scènes claires et des scènes polluées.

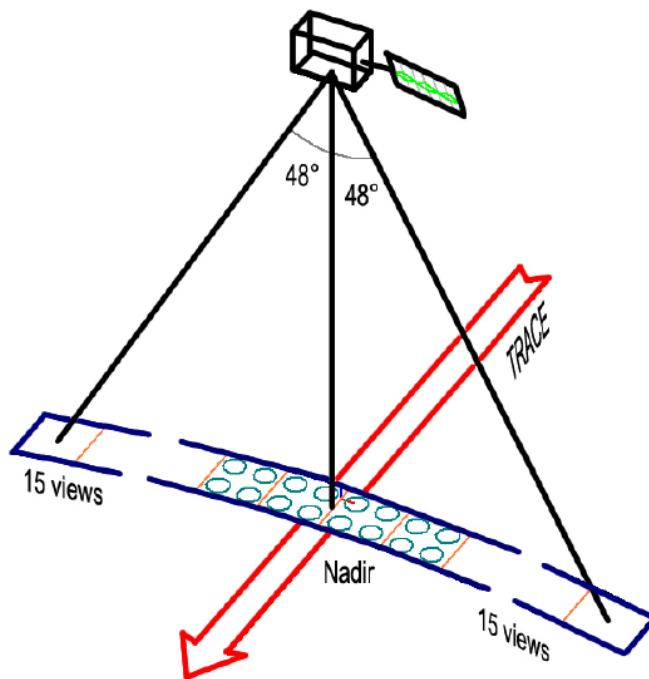


FIGURE 2.9 – Mode d’observation IASI : l’instrument mesure le spectre du rayonnement infrarouge émis par la Terre et l’atmosphère, depuis une orbite héliosynchrone de basse altitude, sur une largeur de fauchée de 2200 km, tous les 50 km au nadir (avec 4 empreintes de 12 km de diamètre). [Clerbaux et al., 2009]

CALIOP

Le lidar spatial nuage-aérosol CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) embarqué à bord du satellite CALIPSO effectue des mesures à haute résolution verticale de la rétrodiffusion élastique à 532 nm et 1064 nm et du rapport de dépolarisation linéaire (rapport entre la rétrodiffusion perpendiculaire et parallèle) à 532 nm [Winker et al., 2012]. Après des années d’observations quasi continues, les études de plusieurs panaches volcaniques dans la région de la haute troposphère/basse stratosphère [Vernier et al., 2011a] ont montré que les rapports de dépolarisation et de couleur (le rapport entre la rétrodiffusion à 1064 et 532 nm) fournissent des informations sur la forme et la taille des particules, ce qui est utile pour distinguer les cendres volcaniques, les couches d’aérosols sulfatés et

les nuages de glace [Vernier et al., 2016]. Les mesures de dépolarisation CALIOP, qui sont sensibles à la sphéricité des particules, peuvent être utilisées pour séparer la contribution des aérosols sulfatés sphériques et des particules de cendres irrégulières à la rétrodiffusion totale.

OMPS

L'instrument OMPS (Ozone Mapping Profiler Suite Limb Profiler) se situe à bord du satellite Suomi National Polar-orbiting Partnership (Suomi NPP). OMPS est un sondeur de limbe qui mesure la radiance de diffusion de limbe et l'irradiance solaire dans la gamme de longueur d'onde 290-1000 *nm* avec une résolution verticale de 1,6 *km* [Loughman et al., 2018, Torres et al., 2020]. Le capteur utilise trois fentes verticales séparées horizontalement par 250 *km* des points tangents à la surface de la Terre pour fournir une couverture quasi globale en 3-4 jours. La version 2 (V2) actuelle d'OMPS suit la version 1.5 (V1.5) qui a été décrite par [Chen et al., 2020]. L'algorithme OMPS V2 utilise les mesures de radiance à 6 longueurs d'onde (510, 600, 675, 745, 869, 997 *nm*) pour estimer le profil du coefficient d'extinction des aérosols [Taha et al., 2021]. L'extinction à 675 *nm* et fente centrale uniquement sont généralement utilisées [Chen et al., 2016, Kloss et al., 2020]. Les données sont fournies de 10 à 40 *km* d'altitude sur une grille verticale de 1 *km*. L'algorithme OMPS V2 identifie la hauteur du sommet des nuages en utilisant la méthode de détection des nuages décrite dans [Chen et al., 2016]. Cet algorithme le nuage identifié en tant que nuage, aérosol ou nuage stratosphérique polaire (PSC). La définition de l'aérosol exige que l'altitude du nuage soit d'au moins 1,5 *km* au-dessus de la tropopause dont l'altitude est fournie par les ré-analyses américaines MERRA-2.

OSIRIS

Le spectromètre OSIRIS à bord du satellite suédois Odin est un sondeur au limbe capable de mesurer l'extinction des aérosols atmosphériques [Bourassa et al., 2008] de la haute troposphère jusqu'à la basse mésosphère par l'analyse de la lumière solaire diffusée. Cet instrument est actif depuis novembre 2001 et sa couverture globale atteint jusqu'à 82° de latitude. Odin évolue sur une orbite héliosynchrone, et donc la disponibilité des mesures d'OSIRIS dépend de la latitude et du temps.

SAM II, SAGE, SAGE II, SAGE III

La première mesure d'aérosols effectuée par satellite fut celle de l'instrument SAM II (Stratospheric Aerosol Measurement) à bord du satellite de la NASA Nimbus 7 [McCormick et al., 1981]. Depuis, SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (1979-1981)), SAGE II ((1984-2005); [Chu et al., 1989]) et plus récemment SAGE III ((2002-2005); [Thomason and Taha, 2003]) et SAGE III-ISS (2017) ont pris le relais. Ces données ont contribué à l'étude des aérosols de façon importante, et ont servi à établir des climatologies depuis 1978 jusqu'à nos jours (entre autres, voir [Thomason et al., 1997b, Thomason et al., 1997a], [Bauman et al., 2003], [Bingen et al., 2004a, Bingen et al., 2004b]). Ces instruments utilisent l'occultation solaire [McCormick et al., 1979] ce qui permet d'obtenir un très bon rapport signal-sur-bruit par rapport aux instruments à visée au limbe tel OMPS. Pour chaque orbite, l'instrument acquiert deux séries de mesures, une correspond à un lever et l'autre à un coucher de soleil. Cette géométrie d'observation limite cependant la couverture spatiale de l'atmosphère contrairement aux mesures au limbe.

2.2. INSTRUMENTS ET TECHNIQUES DE MESURE DES AÉROSOLS

Tableau 2.2 – Instruments satellitaires de mesure des aérosols sulfatés

	Instruments	Plateforme	Altitude km	Date d'opération	Résolution spatiale	Région spectrale	Références
UV	TOMS	Nimbus	955		49 km	6 canaux : 308-380 nm	Bluth et al.,[1994] Carn et al.,[2003]
		Meteor 3	1180	10/1978-	64		
		Adeos	797	12/2005	42		
Earth Probe		740		39			
	SCIAMACHY	Envisat	800	2002-2012	60 x 30 km	240-2380 nm	Afe et al., [2004]; Malinina et al., [2018]
	OMI	Aura	705	07/2004	13 x 24 km	270-500 nm	Krotkov et al.,[2006]
VIS	CALIOP	CALIPSO	705	04/2006	Vert :30-300 m Horiz : 0.3-5 km	2 lasers à 531 et 1064 nm	Winker et al.,[2007]
	SAGE III	Meteor3M	1020	2001-2005	Occultation	289, 384, 441, 520, 591, 675, 755, 869, 1021, 1545 nm	Baumann et al.,[2003]
IR	MODIS	Terra, Aqua	705	12/1999 - 06/2002	250 m(1-2) 500 m(3-7) 1 km (8-36)	36 canaux : 645 nm - 14.2 μm	Watson et al.,[2004]; Corradini et al.,[2009]
	MIPAS	Envisat	800	03/2002	Vert : 3 km Vert Scan : 5-150 km Horiz : 3 x 30 km	MWIR- TIR : 4.15-14.6 μm	Burgess and Duthia[2004]; Günther et al.,[2018]
	SEVIRI	MSG	35800	08/2002	1 km (visible) 3 km (all others)	12 bandes : 0.4-13.4 μm	Prata and Kerkmann [2007]; Corradini et al.,[2009]; Sellito et al.,[2017b]
	IASI	MetOp	817	10/2006	12 km	8461 bandes : 3.7-15.5 μm	Clarisse et al.,[2008]; Carboni et al., [2012]
micro-ondes	MLS	AURA	604/705 10 : 00	05/2002	Vert : 2-3 km Vert Horiz : 160 km	3 canaux : 63-203 Ghz 7 canaux : 118-2250 GHz	Prata et al.,[2004]; Waters et al.,[2006]

Chapitre 3

Modélisation des aérosols stratosphériques

Si, comme le pense chaque homme raisonnant scientifiquement, les phénomènes atmosphériques se développent à partir de ceux qui les précèdent suivant des lois précises, on peut en déduire que les conditions nécessaires et suffisantes pour une solution rationnelle de la prévision en météorologie sont les suivantes :

- on doit connaître avec une précision suffisante l'état de l'atmosphère à un instant donné ;
- on doit connaître avec une précision suffisante les lois selon lesquelles un état de l'atmosphère se développe à partir de l'état précédent.

V. Bjerknes, 1904

Nous étudions l'impact des aérosols de la stratosphère de la période 2013 à 2019 en nous servant de la première version 1.2 du modèle climatique mondial Community Earth System Model (CESM1.2). Nous avons utilisé spécifiquement le surensemble de sa composante atmosphérique, The Whole Atmosphere Community Model(WACCM) couplé à un modèle de microphysique des aérosols(CARMA) et cet ensemble couplé constitue le modèle WACCM-CARMA. Dans ce chapitre, nous allons décrire en premier lieu le modèle WACCM-CARMA, puis nous présenterons la configuration choisie pour nos simulations, ainsi que les algorithmes de post traitement.

3.1 Description du modèle

3.1.1 Fonctionnement général de CESM1

Le Figure 3.1 présente de manière générale le fonctionnement de CESM1 qui se compose de sept modèles géophysiques : atmosphère (atm), glace de mer (glace), terre (lnd), écoulement fluvial (rof), océan (ocn), glace de terre (glc) et onde océanique (wav - stub uniquement), plus un coupleur (cpl) [Hurrell et al., 2013]. Chaque modèle peut avoir une version de composant "actif", "données", "mort" ou "stub" permettant une variété de combinaisons "plug and play" comme l'indique la Figure 3.1.

Les composants actifs sont généralement entièrement pronostiques, et ce sont des outils de prévision et d'analyse climatiques de pointe. Étant donné que les modèles actifs sont relativement coûteux à exécuter, les modèles de données qui cyclent les données d'entrée sont inclus pour les tests, le démarrage et le développement des paramétrages du modèle. Les composants stub ou morts génèrent des données scientifiquement invalides et n'existent que pour prendre en charge les tests techniques du système et pour satisfaire des exigences d'interface lorsque le composant n'est pas nécessaire pour la configuration du modèle.

Au cours d'une exécution CESM, les composantes du modèle s'intègrent dans le temps, s'arrêtant périodiquement pour échanger des informations avec le coupleur. Pendant ce temps, le coupleur reçoit des champs des modèles de composants, calcule, mappe et fusionne ces informations, puis renvoie les champs aux modèles

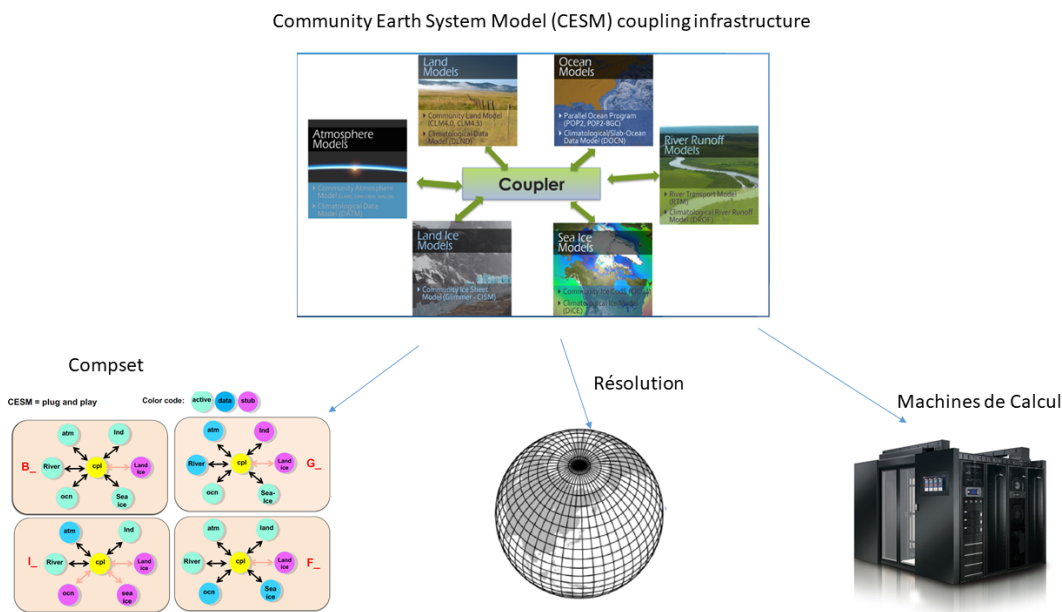


FIGURE 3.1 – Description globale du fonctionnement du modèle CESM

de composants.

Les ensembles de composants appelés compsets (Figure 3.1) définissent à la fois les composants de modèle spécifiques qui seront utilisés dans une configuration CESM donnée. Pour notre étude, le tableau suivant résume le compset et la grille CESM utilisé, ainsi que la machine ayant servi pour les calculs :

Tableau 3.1 – Composante CESM et Machine utilisés pour nos simulations

Compset	Résolution	Centre de Calcul
FSDWSF : WACCM avec une chimie de soufre dont les vents et les températures sont forcés par des données de réanalyses. Les océans et les glaces de mers sont des modèles de données prescrites tandis que les surfaces continentales, les rivières sont des composants actifs.	f19_f19 : grille régulière de volumes finis de 1.9°de longitude x 1.25°de latitude	Centre de Calcul du Centre Val-De-Loire : Machine Artemis

3.1.2 Le modèle couplé WACCM-CARMA

La composante atmosphérique du modèle CESM est appelée Community Aerosol Model (CAM). Un surensemble de CAM est The Whole Atmosphere Community Climate Model (WACCM) qui couvre la gamme d’altitudes de la surface

de la Terre à la partie inférieure de la thermosphère. WACCM comprend toutes les paramétrages physiques de CAM [Neale et al., 2013] et peut tourner en mode libre, FR (Free running) ou en mode forcé avec des données météorologiques ou Specified Dynamics (SD). SD-WACCM améliore la représentation de la dynamique atmosphérique et des températures par rapport à FR-WACCM.

Le modèle inclut une chimie interactive pleinement intégrée à la dynamique et à la physique du modèle. Ainsi, le réchauffement de la stratosphère se répercute sur les vitesses de réaction chimique. Les taux de photolyse sont calculés sur la base de l'extinction du flux exo-atmosphérique issu de la colonne d'ozone et d'oxygène moléculaire et ne sont pas affectés par l'extinction des aérosols.

Le modèle CARMA a été créé à partir d'un code d'aérosol stratosphérique unidimensionnel développé par [Turco et al., 1979, Toon et al., 1979], qui intégrait à la fois la chimie du soufre en phase gazeuse et la microphysique des aérosols. Le modèle a été amélioré et étendu à trois dimensions, comme l'expliquent [Toon et al., 1988].

Le couplage WACCM-CARMA traite de l'ensemble des processus du cycle du soufre et est réalisé en intégrant une version à colonne unique de CARMA dans la routine de physique de WACCM en utilisant la même grille verticale. Ce cadre de base a été utilisé pour étudier la nucléation des sulfates [English et al., 2011], les poussières [Su and Toon, 2011], le sel marin [Fan and Toon, 2011], les nuages nocturnes [Bardeen et al., 2010], les fumées [Bardeen et al., 2008] et le carbone suie [Mills et al., 2008, Ross et al., 2010]. L'état de WACCM est transmis à CARMA une colonne à la fois. Ensuite, CARMA calcule les modifications apportées aux constituants de ces colonnes à partir des processus microphysiques spécifiés dans CARMA. Ces changements sont ensuite renvoyés à WACCM, qui ajuste son état en conséquence avant de prendre un autre pas de temps. Pour que cela fonctionne, chaque gamme de taille d'aérosol est ajoutée à WACCM en tant que constituant unique. Ainsi, WACCM contrôle l'advection, la diffusion verticale et le dépôt humide de chacun des aérosols, tandis que CARMA est responsable de la nucléation, la sédimentation, la croissance, l'évaporation et la coagulation des aérosols. Le dépôt humide de tous les constituants (y compris les gammes de taille

d'aérosols de CARMA) est calculé à l'aide des techniques existantes du WACCM [Barth et al., 2000]. WACCM traite les dépôts secs de gaz [Barth et al., 2000], tandis que les dépôts secs d'aérosols ne sont pas traités dans ce modèle, car ils ne sont pas importants dans la stratosphère. Nous avons couplé le modèle WACCM version 4 à CARMA 3 en utilisant le même modèle [English et al., 2011] avec trente gammes de taille pour les aérosols sulfatés (Figure 3.2).

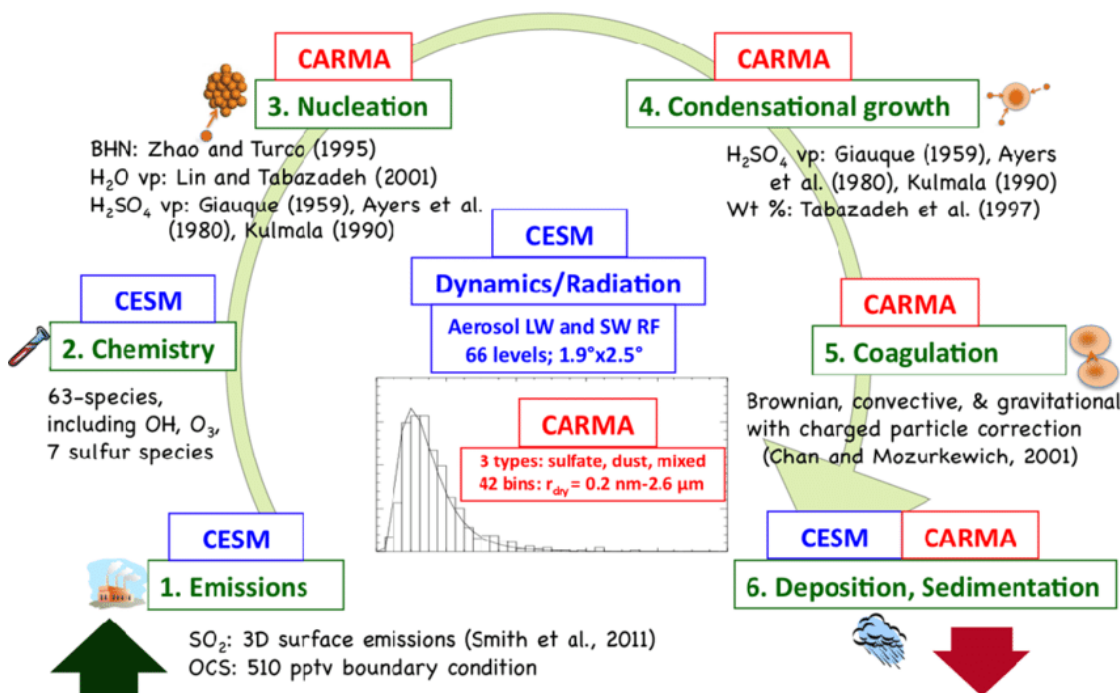


FIGURE 3.2 – Description globale du fonctionnement du modèle WACCM-CARMA

Le schéma microphysique utilisé est le schéma "Zhao BHN". Ce schéma adapté pour les aérosols de la stratosphère, prédit le taux de nucléation homogène binaire de l'acide sulfurique et de l'eau en utilisant la théorie de nucléation classique [Flood, 1934, Reiss, 1950, Hamill et al., 1977] avec des modifications pour le calcul du point de selle de l'énergie libre de [Zhao and Turco, 1995]. La pression de vapeur d'eau à l'équilibre sur une solution binaire est calculée à l'aide de la technique de [Lin and Tabazadeh, 2001] et la pression de vapeur d'eau de [Murphy and Koop, 2005]. La pression de vapeur d'équilibre de l'acide sulfurique sur une solution binaire est calculée de la même manière que la croissance/évaporation des aérosols : en utilisant la méthode de [Ayers et al., 1980] avec une correction de température de [Kulmala and Laaksonen, 1990] et des constantes thermodyna-

miques de [Giauque et al., 1960].

Les deux autres schémas de nucléation implémentés dans le modèle, Yu BHN [Yu, 2008] et Yu IMN ont été développés pour des conditions troposphériques car la nucléation a été mise à zéro si l'humidité relative était inférieure aux valeurs minimales (0,1 % pour la table à basse température ou 0,3 % pour la table à haute température). Le schéma « Yu BHN » également connue sous le nom de théorie de la nucléation cinétique, prédit le taux de nucléation homogène binaire de l'acide sulfurique et de l'eau en supposant la nucléation « quasi-uniaire » de l'acide sulfurique en équilibre avec la vapeur d'eau [Yu, 2008]. Tandis que, le schéma « Yu IMN » prédit les taux de nucléation à médiation ionique de l'acide sulfurique et de l'eau.

La condensation des particules dans le modèle est résolue en utilisant la méthode parabolique de [Colella and Woodward, 1984]. La croissance dépend de la sursaturation de l'acide sulfurique et de l'eau, qui à son tour est fonction de nombreux paramètres thermodynamiques. La tension superficielle du sulfate est calculée en utilisant les constantes de [Sabinina and Turpugow, 1935]. La pression de vapeur d'équilibre de l'acide sulfurique sur une solution binaire est calculée en utilisant la méthode de [Ayers et al., 1980] avec une correction de température de Kulmala [Kulmala and Laaksonen, 1990] et des constantes thermodynamiques de Giauque [Giauque et al., 1960]. La technique de Tabazadeh [Tabazadeh et al., 1997], calcule le pourcentage en poids d'acide sulfurique en fonction de la température et de l'humidité relative. Le pourcentage en poids d'acide sulfurique est supposé être indépendant de la taille des particules. CARMA calcule l'effet de la coagulation de particules de taille d'aérosol équivalente en utilisant l'approche numérique décrite dans [Toon et al., 1988]. Les coefficients de coagulation sont calculés pour inclure les effets browniens, convectifs et gravitationnels. Un coefficient de collage de 1 est utilisé, ce qui suppose que toutes les particules collent ensemble lors de la collision. Une correction pour l'impact des forces interparticulaires de van der Waals sur la coagulation a été ajoutée au modèle [Chan and Mozurkewich, 2001]. Cette correction s'est avérée améliorer considérablement la concentration en nombre d'aérosols par rapport aux observations dans la stratosphère ambiante. Les vitesses de chute

sont calculées en supposant une équation de Stokes-Cunningham avec des corrections du nombre de Knudsen de Fuchs [Fuchs et al., 1965], en utilisant la taille d'aérosol équivalente (acide sulfurique plus eau). Étant donné que WACCM gère l'advection par les vents ainsi que la diffusion turbulente, aucune diffusion turbulente supplémentaire de particules d'aérosol n'est ajoutée par CARMA. Cependant, CARMA traite la diffusion brownienne des aérosols, qui devient importante au-dessus de 100 *km*. Comme pour la croissance, les calculs numériques de la vitesse de chute sont résolus par CARMA en utilisant la méthode parabolique par morceaux de Colella et Woodward [1984] [Colella and Woodward, 1984].

3.2 La configuration du modèle et le post traitement

3.2.1 Configuration du modèle

Pour nos simulations, nous avons utilisé SD-WACCM version 4 [Garcia et al., 2007, Marsh et al., 2013] couplé à CARMA version 3 avec 30 gammes de taille d'aérosols de diamètres secs variant entre 0,68 *nm* à 3,25 μm (Figure 3.2).

Bien que d'autres aérosols, tels que les matières organiques, soient connus pour composer une fraction significative de la masse d'aérosols dans la stratosphère [Froyd et al., 2009, Murphy et al., 2007], les sulfates sont considérés comme la principale source de nouvelles particules dans cette région. Ainsi, le module sulfate de CARMA avec le schéma de nucléation homogène binaire Zhu BHN a été utilisé pour notre étude.

Le modèle a été définie sur une grille longitude/latitude de 144 points par 96 points (2,5° de longitude \times 1,875° de latitude) comme dans [Marsh et al., 2013], avec un noyau dynamique de volume fini à conservation de masse basé sur un schéma de transport semi-lagrangien en forme de flux [Lin and Rood, 1996][Lin and Rood, 1997]. Quatre-vingt-huit (88) niveaux verticaux sont définis sur des coordonnées hybrides-sigma de la surface à environ 150 *km* d'altitude avec environ 1 *km* de résolution verticale dans la stratosphère. L'algorithme de diffusion verticale de WACCM gère la diffusion turbulente et moléculaire pour les gaz. La température, le vent zonal et méridien sont relaxés à chaque pas de temps, 30 minutes, vers les champs de MERRA entre la surface et 50 *km*, en utilisant l'approche décrite dans [Kunz et al., 2011].

Le nudging est réduit linéairement entre 50 et 60 *km*, avec zéro nudging au-dessus de 60 *km*.

Le modèle WACCM 4 s'appuie sur un modèle chimique fondé sur la version 4 du modèle pour l'ozone et les traceurs chimiques associés (Model for Ozone and Related Chemical Tracers, ou MOZART) [Kinnison et al., 2007], établi spécifiquement pour l'atmosphère moyenne et la haute atmosphère. Ce modèle chimique inclut 59 espèces contenues dans les familles chimiques O_x , NO_x , HO_x , ClO_x et BrO_x , ainsi que CH_4 et ses produits de dégradation; 217 réactions chimiques de phase gazeuse; et une chimie hétérogène pouvant entraîner l'élargissement du trou dans la couche d'ozone. Les émissions de surface suivantes ont été prescrites dans notre modèle. Pour les émissions de SO_2 , NH_3 , carbone noir, carbone organique, NO_x , CH_4 et CO , l'ensemble de données MACCity a été utilisé [van der Werf et al., 2006, Lamarque et al., 2010, Diehl et al., 2012]. Les émissions anthropiques de CH_4 ont été ajoutées à partir de la base de données EDGAR v4.2 (disponible sur <http://edgar.jrc.ec.europa.eu>); les émissions de CO biogénique ont été ajoutées à partir de la base de données MEGAN-MACC (Modèle d'émissions de gaz et d'aérosols de la nature – Surveillance de la composition atmosphérique et du climat) [Sindelarova et al., 2014]. Le sulfure de carbone (OCS) a été prescrit à partir des données de [Kettle et al., 2002]. CH_2O a été prescrit selon le scénario IPCC RCP8.5 [Riahi et al., 2011], et pour H_2 la base de données ECCAD-GFED3 a été utilisée [Van der Werf et al., 2010]. Pour les émissions de CO_2 , N_2O , CCl_4 , CF_2ClBr , CF_3Br , CH_3Br , CH_3CCl_3 , CH_3Cl , $CFC11$, $CFC113$, $CFC12$ et $HCF_2C_2F_2$, des conditions aux limites inférieures ont été prescrites en fonction des données de CCMI/RCP8.5.

L'ensemble des simulations effectuées a été réalisé sur la Machine Artemis du Mésocentre de Calcul CaSciModOT(<http://cascimodot.fdpoisson.fr/>) qui a été remplacée à partir d'Avril 2021 par une nouvelle Machine nommée Leto. Le Mésocentre de Calcul CaSciModOT est un centre régional de calcul parallèle de taille intermédiaire entre des stations de travail et les grands centres nationaux (CINES, IDRIS, CCRT). Il permet de fournir à l'ensemble des partenaires de la fédération CaSciModOT une grappe possédant une puissance de calcul hautes performances.

Actuellement, le cluster comprend 19 nœuds de calcul dont 16 nœuds CPU avec 128 cœurs par nœud, 3 nœuds GPU à 32 et 40 cœurs par nœuds. Le cluster est équipé en processeurs AMD (Advanced Micro Devices) Epyc 7702 et INTEL (IN-Tegrated ELectionics Corporation) Xeon Gold. Le système d'exploitation est une OpenSuse Leap 15.2base avec une capacité de stockage qui a évolué de 70 To à 400 To.

3.2.2 Le post-traitement

Un certain nombre d'outils de traitements ont été utilisés pour le prétraitement tels que des codes NCL pour générer les fichiers d'injections. Nous avons aussi utilisé des opérateurs tels que CDO (Climate data Operators) pour l'extraction de certains paramètres et le calcul de moyennes. Les sorties des simulations ont été traitées avec le logiciel Python grâce aux différents codes que nous avons développés.

Les calculs d'extinction et d'épaisseur optique des aérosols sulfatés dans le modèle considère un facteur d'extinction constant, $Q_{ext} = 2$. Pour une cohérence dans nos comparaisons avec les observations, notamment avec le Lidar de la Réunion et OMPS, nous avons recalculé les extinctions aux longueurs d'ondes spécifiées à 532 *nm* et 675 *nm* en utilisant l'algorithme illustré par la figure 3.3. Cet algorithme s'appuie sur les hypothèses ci-dessous et se déclinent en plusieurs fonctions. Comme hypothèse pour le calcul de l'extinction avec le code de Mie, toutes les particules sont supposées être sphériques et totalement diffusantes avec un indice de réfraction égale à 1.448 [Zhu et al., 2018, Loughman et al., 2018]. Les rayons des particules évoluent en fonction de l'humidité de l'air et de la température.

- Pour chaque niveau vertical et pour chaque point de grille, a fonction WaterPerc retourne le pourcentage en poids de l'acide sulfurique(Wtp) par la paramétrisation de Tabazadeh [Tabazadeh et al., 1997].
- Les pourcentages d'acides sulfuriques servent avec les températures à déterminer les nouvelles densités(Rhopwet) des particules à l'aide de la fonction SulfDensity.
- Ces nouvelles densités permettent à leur tour de calculer des coefficients de

grossissement des rayons des particules à travers la fonction BetaGrowth.

- Une fois, les rayons des gammes de taille déterminés, le paramètre de taille défini par $x = 2 * \pi r / \lambda$ avec l'indice de réfraction $m=1.448$ sont des paramètres d'entrée de la fonction CodMie pour le calcul des facteurs d'extinction (Q_{ext}) basés sur les résultats de [Bohren and Huffman, 1983].
- La distribution granulométrique $N(r_{bin}, z)$ est calculée à l'aide de la concentration massique des 30 gammes de taille, du pourcentage en poids de l'acide sulfurique, de la densité de l'acide sulfurique dans l'air humide selon la formulation suivante par la fonction NumPar :

$$N_{r_{wet},bin,z} = (m_{rdy,bin,z} * 100) / (Wtp * Rhopwet * v_{r_{wet},bin,z}) \quad (3.1)$$

$N_{r_{wet},bin,z}$, le nombre de particules de rayons humides dans chaque gamme de taille à l'altitude z

$m_{rdy,bin,z}$, la concentration massique des particules de rayons secs dans chaque gamme de taille à l'altitude z

$v_{r_{wet},bin,z}$, le volume d'une particule de rayon humide de la gamme de taille considérée à l'altitude z

$Rhopwet$, la densité des particules de rayons humides à l'altitude z

- L'intégrale pour le calcul des coefficients d'extinction sur une distribution de taille continue de particules a été convertie en une somme de Riemann pour tenir compte du nombre discret de gammes de taille des rayons utilisées dans le modèle avec la fonction SRiema.

$$\sigma_{ext} = \sum_{r_{bin}=1}^{r_{bin}=0} N(r_{bin}, z) \cdot \pi r_{bin}^2 \cdot Q_{ext}(m, x) \quad (3.2)$$

Avec :

$N(r_{bin}, z)$ le nombre de particules de gamme de taille donnée à l'altitude z ,
 $Q_{ext}(m, x)$ les facteurs d'extinctions des particules de paramètre de taille x et d'indice de réfraction m est l'indice de réfraction complexe.

Nous avons considéré l'épaisseur optique des aérosols de la stratosphère ou Stratospheric Aerosol Optical Depth (SAOD) comme la somme de Riemann du produit des coefficients d'extinction et des épaisseurs d'altitude sur les niveaux verticaux

3.2. LA CONFIGURATION DU MODÈLE ET LE POST TRAITEMENT

comprises entre 1 *km* au-dessus de la tropopause et 30*km* d'altitude pour minimiser les effets des overshoots des nuages.

$$SAOD = \sum_{30km}^{Z_{Trop+1km}} \sigma_{ext} \Delta Z \quad (3.3)$$

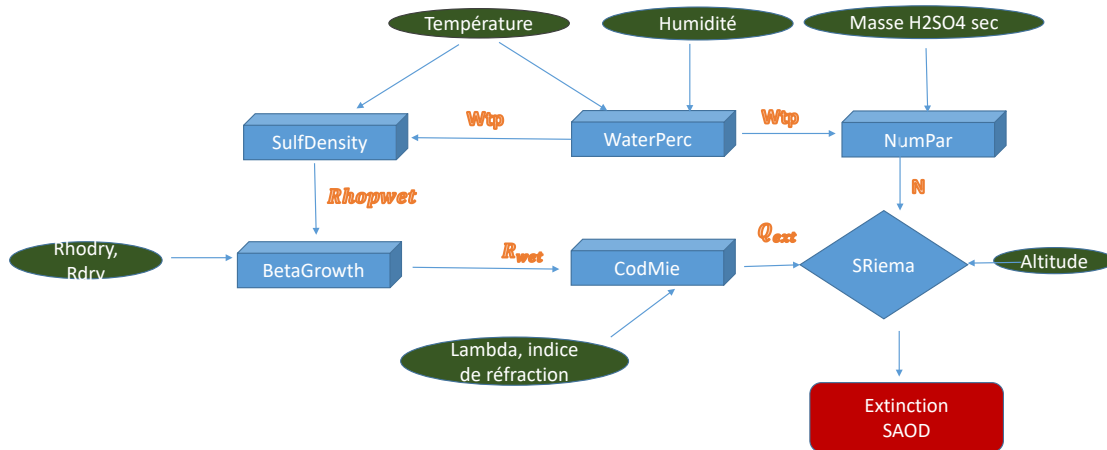


FIGURE 3.3 – Description de l’algorithme de post-traitement des données du modèle CESM

Chapitre 4

Analyse du cycle annuel et des tendances des aérosols stratosphériques

Le commencement de toutes les sciences, c'est l'étonnement de ce que les choses sont ce qu'elles sont

ARISTOTE

4.1 Climatologie des aérosols

4.1.1 Aérosols de fond

La Figure 4.1 montre la variation temporelle des aérosols de fond (c'est-à-dire sans perturbation par des événements d'injections extrêmes comme les éruptions volcaniques et les feux de forêts avec pyro-convection) durant la période 2013-2019. Ici, le modèle de référence est utilisé pour analyser les cycles annuels car les émissions annuelles répétées du modèle de référence devraient fournir le signal le plus clair des cycles annuels dans les aérosols stratosphériques sans interférence des tendances et autres perturbations. La moyenne de la période est présentée par la Figure 4.1 (h) et les observations satellitaires de OMPS pour l'année 2013, une année à très faible activité volcanique, par la Figure 4.1 (i). La variabilité temporelle de l'épaisseur optique des aérosols stratosphériques de fond est maximale aux hautes latitudes, et décroît graduellement à mesure qu'on se déplace vers les régions équatoriales, en lien avec la dépendance méridionale de la hauteur de la tropopause. Un léger cycle saisonnier de la SAOD est simulé aux latitudes tropicales (valeurs plus élevées en fin d'été/automne, plutôt, dans l'hémisphère nord). Il est lié là aussi aux fluctuations de la hauteur de la tropopause, des variations de sa température (impactant le taux de nucléation des particules aux tropiques) mais peut-être aussi en partie à la variabilité saisonnière des émissions du précurseur OCS par ailleurs plus marquée dans l'hémisphère nord (SPARC,[2006]). Ce cycle sans la SAOD apparaît moins évident dans les observations OMPS (Figure 4.1 (i)). Il faut noter que les données OMPS avaient tendance à générer des variations saisonnières artificielles (en lien avec un problème de correction de la fonction de phase) dans l'extinction des aérosols de fond même si ce biais a été réduit dans la version 2 (Ghassan Taha, communication personnelle). Les valeurs faibles de SAOD dans la stratosphère tropicale durant les mois de février à avril pourraient indiquer un transport intense des aérosols en lien avec la phase ouest de la QBO, correspondant à moins de confinement des masses d'air au sein du réservoir tropical, durant les années 2013, 2015, 2018 et 2019 (Figure 4.2) alors que la phase d'est montre un confinement plus prononcé des aérosols [Pitari et al., 2016].

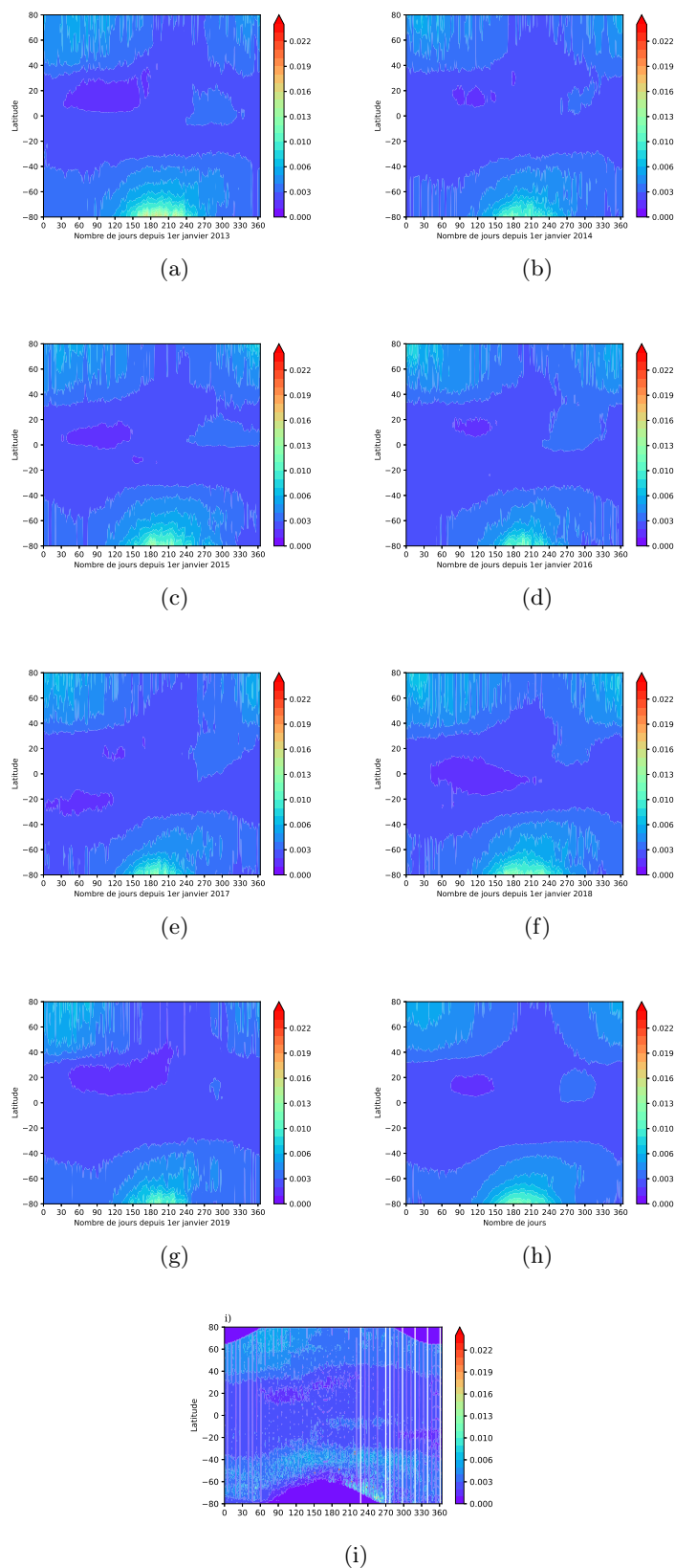


FIGURE 4.1 – Variation annuelle de l'épaisseur optique des aérosols de fond à 675 nm issue de la simulation WACCM-CARMA de référence (= sans injections volcaniques) : (a) à (g) de 2013 à 2019, (h) la moyenne de la période 2013-2019, et (i) observations OMPS pour l'année 2013.

Aux hautes latitudes, les nuages stratosphériques polaires sont facilement identifiables uniquement sur le modèle de référence. Le signal de OMPS étant masqué au-delà de 80° de latitude dû à la limite de couverture latitudinale du satellite.

En Antarctique les PSC sont présents de mai à octobre, période pendant laquelle les valeurs d'épaisseur optique deviennent jusqu'à dix fois supérieures par rapport aux valeurs de SAOD dans les tropiques. En Arctique, les nuages stratosphériques polaires peuvent être détectés entre le mois de décembre et le mois de mars ; cependant, du fait des températures souvent moins extrêmes et d'un vortex moins stable, les valeurs d'épaisseurs optiques n'atteignent pas des valeurs aussi élevées qu'en Antarctique.

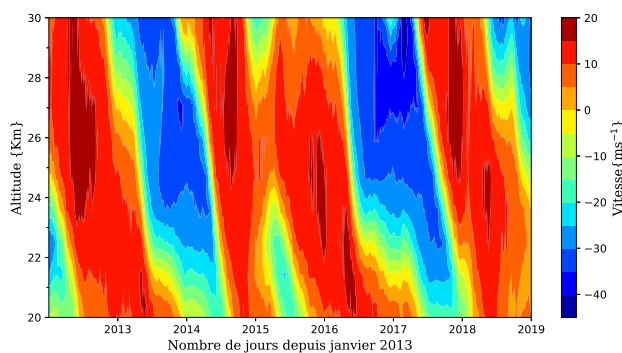


FIGURE 4.2 – Vents moyens zonaux issus des champs météorologiques MERRA-2 et indiquant les phases de la QBO.

La Figure 4.3 montre les contours des valeurs moyennes journalières du coefficient d'extinction à 675 nm , et donne un aperçu de la distribution verticale des aérosols de fond dans les tropiques. On retrouve un cycle saisonnier des aérosols dans la basse stratosphère et au niveau de la tropopause (avec des variations d'un facteur 2). Les séries temporelles d'extinction de OMPS en 2013 nous permettent d'observer dans l'UTLS tropicale, la couche de Junge avec des valeurs d'extinction de l'ordre de 3.10^{-4} à 4.10^{-4} km^{-1} . [Salazar, 2010] avait trouvé que les profils d'extinction aux latitudes équatoriales pouvaient atteindre des valeurs maximales supérieures à 4.10^{-3} km^{-1} aux plus courtes longueurs d'onde autour de 20 km d'altitude. Dans la haute troposphère, on remarque qu'une signature de nuages à haute altitude est toujours présente dans les données OMPS mais est exclue dans les simulations WACCM-CARMA. A partir d'août, entre 15 et 18 km ,

on observe un maximum d'extinction dans les simulations WACCM-CARMA qui pourrait être la signature de la couche d'aérosol ATAL piégée par l'anticyclone de la mousson indienne par ailleurs mise en évidence dans les travaux de modélisation [Bossolasco et al., 2021] à partir du modèle CAM5 (même base physique et chimique de WACCM) et le module microphysique MAM7. L'ATAL étant censée être présente de juin à août (à partir de 15°N) au-dessus d'une vaste région asiatique, on pourrait y voir ici l'effet du délitement de l'anticyclone (et du mélange méridional qui s'ensuit). Cependant, notre configuration de modèle WACCM-CARMA n'est pas adaptée pour simuler la complexité des aérosols de l'ATAL et cela reste à investiguer. Cette signature est noyée dans les observations OMPS par les nuages convectifs.

4.1. CLIMATOLOGIE DES AÉROSOLS

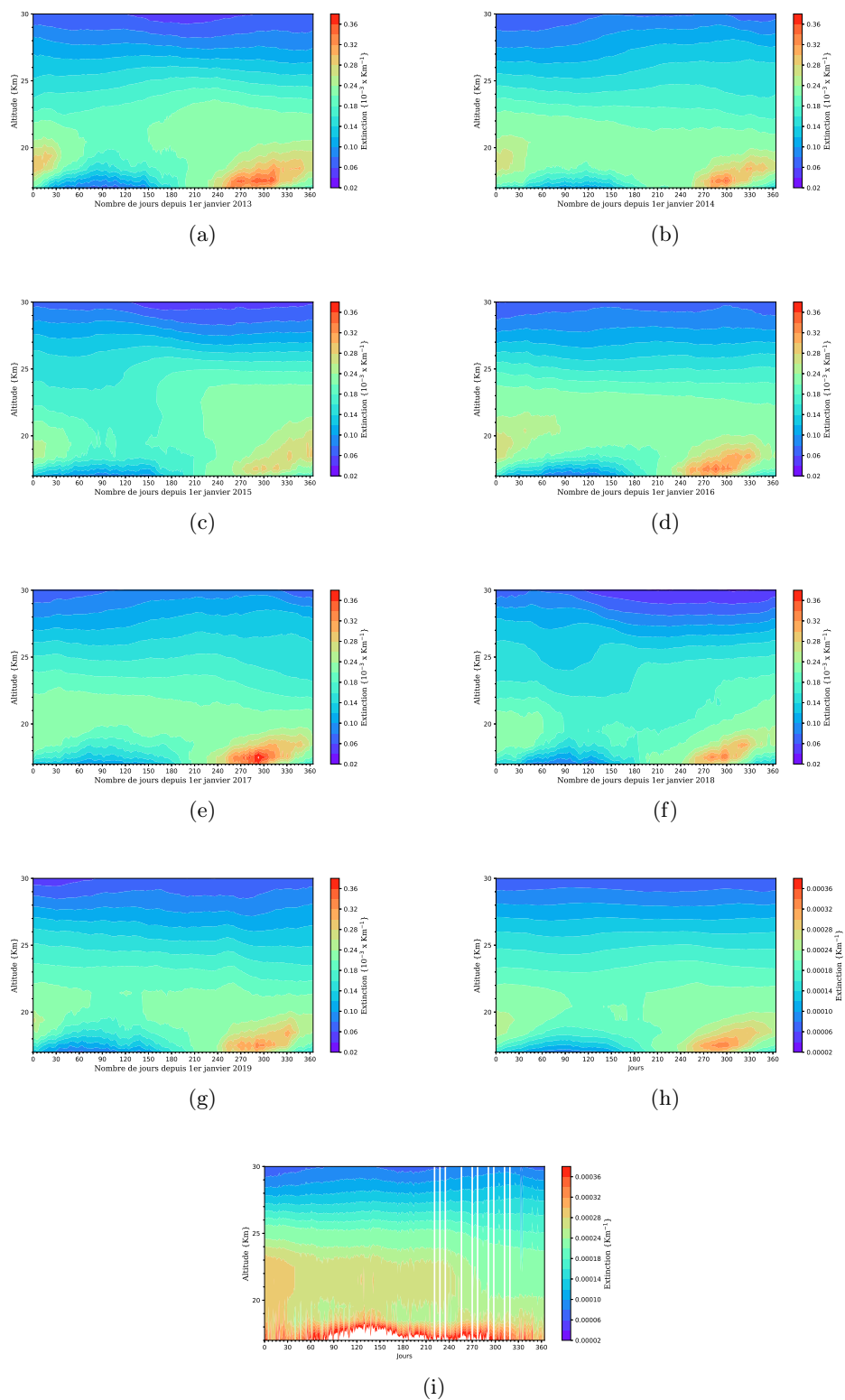


FIGURE 4.3 – Variation du coefficient d'extinction à 675 nm des aérosols de fond (simulation de référence WACCM-CARMA) : (a) à (g) de 2013 à 2019, (h) la moyenne de la période 2013-2019, et (i) observations OMPS pour l'année 2013.

4.1.2 Éruptions répertoriées sur la période 2013-2019

Les éruptions volcaniques ayant impacté la stratosphère sur la période 2013-2019 ont été mises en évidence dans le cadre d'articles scientifiques qui ont donc servi de base pour initialiser le modèle WACCM-CARMA sans manquer un événement significatif.

4.1.2.1 Kelud

Le Kelut (également connu sous le nom de Kelud), situé à Java oriental, en Indonésie est un stratovolcan avec un sommet culminant à 1731 *m* au-dessus du niveau moyen de la mer. Il est considéré comme l'un des volcans les plus dangereux de Java en raison de ses éruptions fréquentes, de ses lahars mortels et de ses coulées pyroclastiques. L'éruption du volcan Kelud le 13 février 2014 a été observé par le Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) embarqué sur le satellite Aqua (Figure 4.4 (a)). Une vaste zone de température de brillance (BT) inférieure à 200 *K* est associée au nuage volcanique avec une région chaude au centre indiquant des intrusions stratosphériques profondes. Au cours des premiers jours qui ont suivi l'éruption, le panache du Kelud a été observé le long de plusieurs trajectoires orbitales de CALIPSO. Une image de la rétrodiffusion totale atténuée le 24 février, 11 jours après l'éruption, au-dessus de l'Indonésie (Figure 4.4 (b)), montre que le panache Kelud est situé à 19-21 *km* dans la stratosphère tropicale. [Kristiansen et al., 2015] ont estimé la quantité de SO₂ injecté entre 0,1 et 0,2 *Tg* tandis que [Mills et al., 2016] avait supposé une charge plus importante avec 0,3 *Tg* de SO₂.

Le déplacement des nuages d'aérosols du Kelud vers l'est par les ondes équatoriales de Kelvin a été aussi clairement observé par les observations de CALIOP [Shibata et al., 2016]. Ces derniers auteurs ont également montré que la couche d'aérosols s'est propagée rapidement dans la direction zonale, mais la propagation dans la direction méridionale était plus lente.

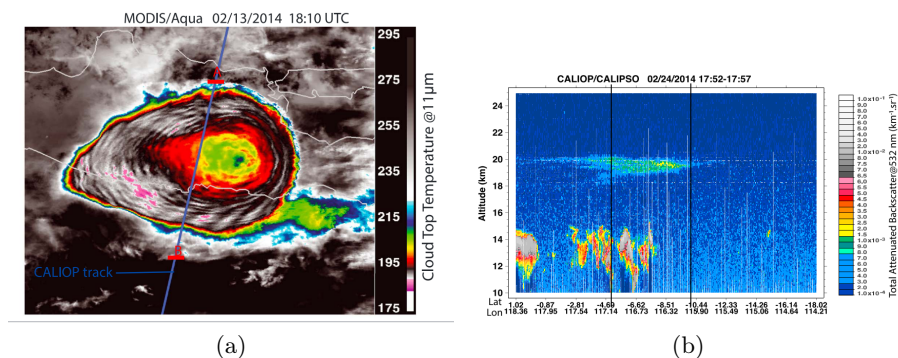


FIGURE 4.4 – (a) Température de brillance ($11 \mu\text{m}$) de MODIS/Aqua avec le 13 Février 2014 (b) Rétrodiffusion atténuée totale de CALIOP/CALIPSO à 532 nm à partir de la trace orbitale du 24 février 2014 à 1800 UTC [Vernier et al., 2016]

4.1.2.2 Calbuco

Après 43 ans d'inactivité, le volcan Calbuco (41°S et 73°W), situé dans la partie sud du Chili, est entré en éruption le 22 avril 2015 et a émis environ $0,4 \text{ Tg}$ de SO_2 dans l'UTLS [Bègue et al., 2017, Mills et al., 2016]. La coupe transversale de CALIOP (Figure 4.5) montre le panache d'aérosols du Calbuco.

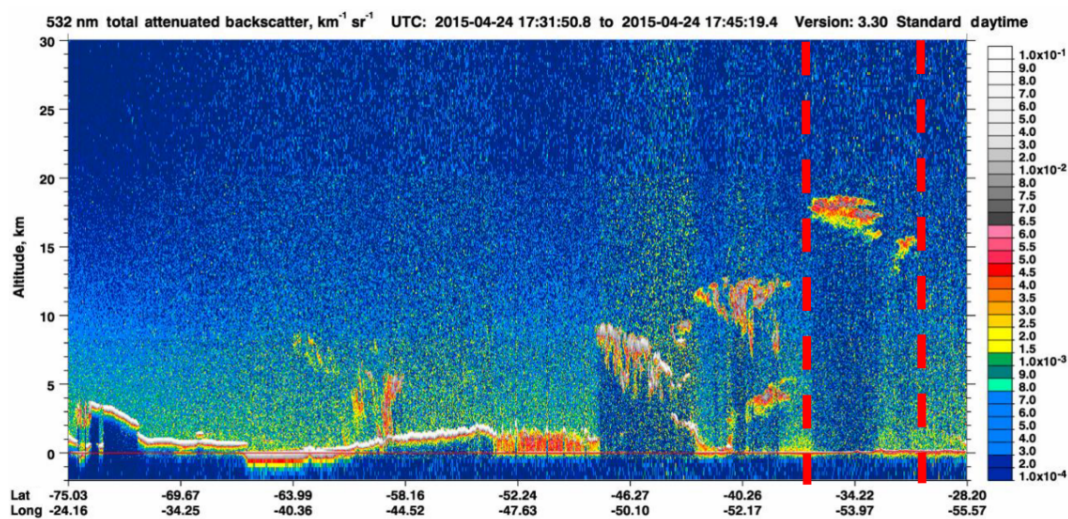


FIGURE 4.5 – Coupe transversale CALIOP du signal rétrodiffusé atténué à 532 nm le 24 avril 2015 sur l'Amérique du Sud de 28 à 75° de latitude S. Les deux lignes pointillées rouges délimitent la région géographique où le panache de Calbuco est observé par CALIOP le 24 avril 2015 citebègue2017long .

Bien qu'injecté dans les latitudes moyennes de l'hémisphère Sud, le lidar sol de l'observatoire du Maïdo et CALIOP ont détecté un signal clair du panache du Calbuco se propageant vers les tropiques (Figure 4.6) [Bègue et al., 2017]. Le

panache, à un stade principalement composé de SO_2 avant son oxydation complète en aérosols sulfatés et réparti sur une couche entre 15 et 19 km d'altitude, a atteint l'océan Indien une semaine après l'éruption et la position de l'île de la Réunion vers le 11 mai 2015. Trois à quatre semaines après l'éruption, tout le SO_2 était converti en particules d'acide sulfurique. Fin mai 2015, le panache de particules s'étendait entre 5°S et 60°S. Ce timing de propagation a résulté en une augmentation significative du contenu en aérosols au sein du vortex polaire antarctique [Zhu et al., 2018].

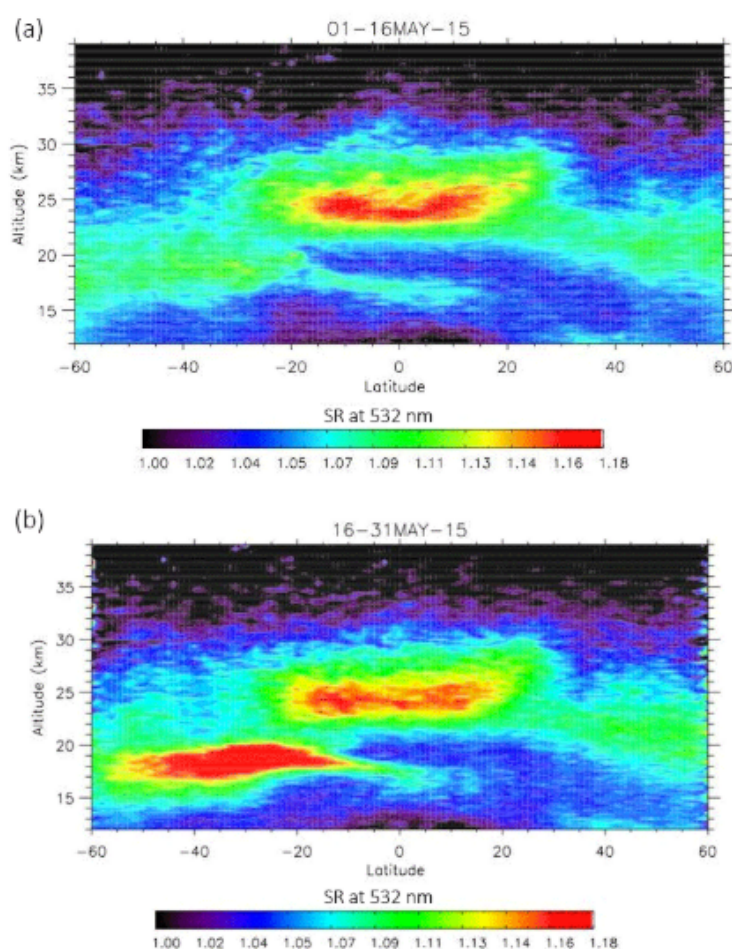


FIGURE 4.6 – Moyenne sur 15 jours du ratio de diffusion mesuré par le lidar spatial CALIOP/Calipso. En haut : période 16-31 mai 2015 soit 3-4 semaines après l'éruption ; en bas : période 16-31 août 2015. D'après [Bègue et al., 2017]

4.1.2.3 Ambae

L'île volcanique d'Ambae ou Aoba (15°S ; 167°E) fait partie de l'archipel du Vanuatu et se situe dans son secteur central. L'activité volcanique explosive d'Am-

bae résulte de la subduction de la plaque australienne sous la plaque Pacifique [Daniel et al., 1989]. Son volcan sommital atteint une altitude de près de 1 500 *m* au-dessus du niveau de la mer. Après une période de repos estimée à 350 ans (sauf pour les fumerolles et autres manifestations hydrogéologiques de son activité interne), une activité de bas niveau a repris au cours des années 1990, suivie d'une forte phase éruptive à partir de septembre 2017 [Moussallam et al., 2019]. En 2018, un premier événement s'est produit le 5 avril autour de 14h TU, lorsqu'une éruption riche en SO_2 s'est produite avec une charge en soufre estimée de 0,10 à 0,15 *Tg* de SO_2 (communication par S. Carn, 2018). Les observations du satellite géostationnaire Himawari-8 ont montré un panache avec une température de brillance de 193 *K* [Kloss et al., 2020]. Les profils de température colocalisés issus des réanalyses ERA5 d'ECMWF [Kloss et al., 2020] indiquent que cette température correspond à une altitude d'environ 17 *km*. A cette période, l'éruption de l'Ambae était la plus importante répertoriée depuis l'éruption du Calbuco en avril 2015. Ensuite, l'activité de l'Ambae s'est renforcée pour atteindre une phase de pic en juillet 2018, avec une seconde injection dans l'UTLS estimée à 0.4 *Tg* de SO_2 en date du 27 (communication par J. Marder, 2019). Le panache froid est apparu à partir de 01h00 TU, s'est développé dans les heures suivantes avec un environnement de ciel assez clair et s'est dispersé vers l'est en raison des vents dominants d'ouest dans l'UTLS jusqu'à ce qu'il se confonde avec la signature des nuages (Figure 4.7 (a)). La Figure 4.7 (a) montre probablement la présence d'eau sous forme condensée voire de cendres durant la phase d'injection initiale. Les températures de brillances observées par Himawari dans la fenêtre spectrale 10,4 μm sont d'environ 205 *K* au cœur du panache (Figure 4.7 (b)). Les profils de température issus des données ERA5 co-localisés montrent que cette température se situe autour de la tropopause et dans la basse stratosphère, soit à 14 ou 18 *km* d'altitude (Figure 4.7 (c)). Cette injection était donc au moins partiellement stratosphérique mais avec une incertitude significative sur la connaissance de la valeur réelle de l'altitude atteinte.

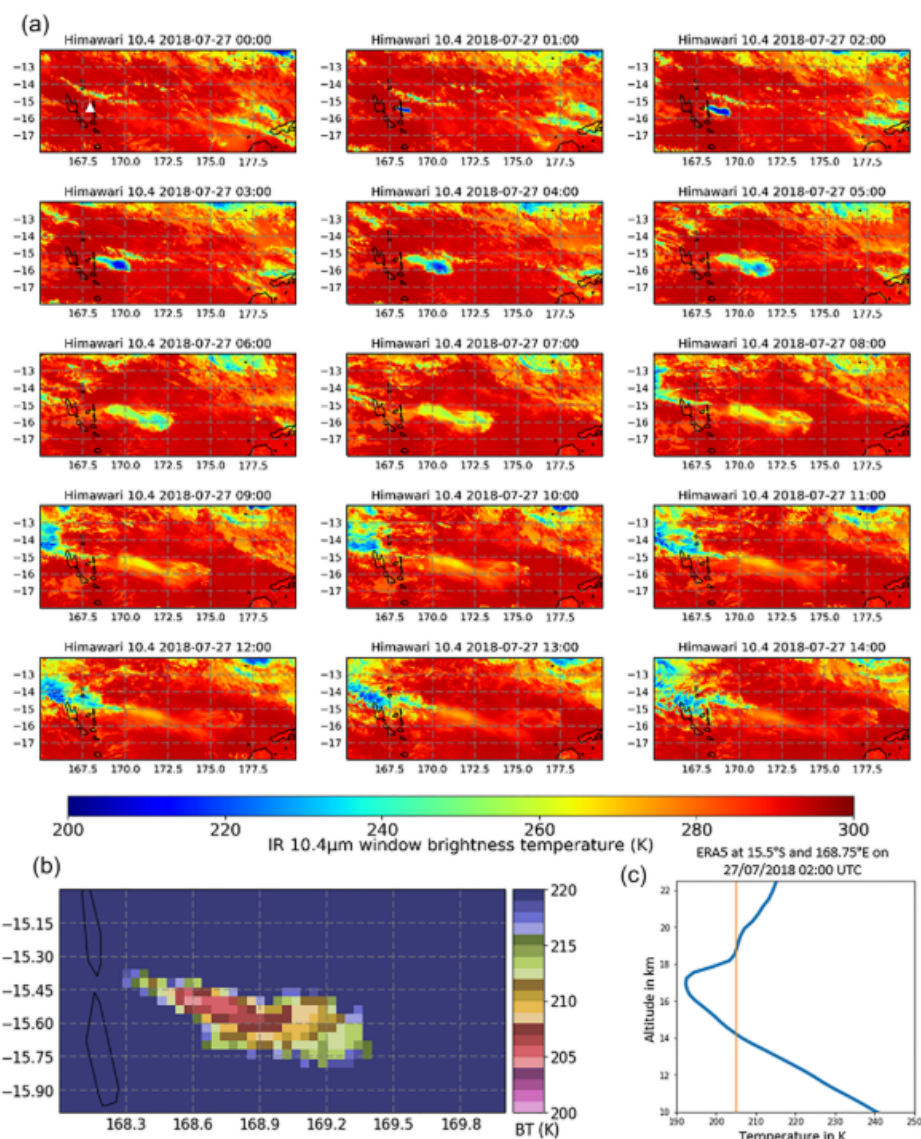


FIGURE 4.7 – (a) Images heure par heure de la température de brillance (BT) observée par le satellite géostationnaire Himawari-8 autour de la position du volcan Ambae (triangle blanc) le 27 juillet 2018 de 00H à 14H (heure locale). (b) BT zoomée le 27 juillet à 02H. (c) Profil de température (ligne bleue) issu des reanalyses ERA5 d’ECMWF à la position du minimum de BT de la Figure (b) ; la ligne orange verticale fait référence à la température 205 K. Issu de [Kloss et al., 2021]

Les observations de l'altitude du panache de SO_2 avec IASI confirment une injection du panache au-dessus de 15 km , pour cet événement (base de données AERIS, 2018; <https://iasi.aeris-data.fr/so2/>). Malheureusement, il n'y avait pas d'orbites de CALIPSO bien croisant le panache de manière convenable ce jour-là. A noter que les travaux publiés de [Kloss et al., 2021] ont été les premiers à mettre en évidence l'occurrence et l'impact sur le contenu en aérosols stratosphérique de cette éruption négligée jusqu'ici par la communauté internationale.

4.1.2.4 Raikoke et Ulawun

Le 21 juin 2019, le volcan Raikoke situé dans la chaîne des îles Kouriles, près de la péninsule du Kamchatka en Russie (48,3°N ; 153,2°E), endormi depuis 1924, est entré en éruption à 18 :00 TU jusqu'à environ 03 :00 TU le 22 juin 2019. Au cours de cette période, Raikoke a libéré la plus grande quantité de SO_2 dans la stratosphère depuis l'éruption du Nabro en 2011 [Goitom et al., 2015]. Le nuage volcanique s'est dispersé dans l'hémisphère nord au cours des premières semaines après l'éruption et a été observé par divers réseaux d'observation au sol [Vaughan et al., 2021, Matshvili et al., 2020]. La série des images RGB de la Figure 4.8 du satellite géostationnaire Himawari-8 montrent les différentes phases de l'éruption et l'évolution de la composition du panache entre 19 :00 TU le 21 juin et 16 :00 TU le 22 juin. Les premières estimations à partir de IASI ont indiqué une altitude d'injection de SO_2 entre 10 et 16 km d'altitude (Lieven Clarisse, communication personnelle). [Hedelt et al., 2019] ont estimé une altitude de panache entre 6-8 km et 18 km à partir des observations de l'instrument satellite TROPOMI à bord de Sentinel5P. Ces mêmes mesures ont permis une première estimation de la masse injectée de SO_2 autour de 1.35 Tg (communication par S. Carn, 2019a). L'émission conjointe de cendres volcaniques est évidente dans les images RGB d'Himawari (Figure 4.8) indiquant un panache aux caractéristiques complexes. L'utilisation des températures de brillance et des profils de température issus des réanalyses n'a pas été possible pour le Raikoke (à cause d'un profil de température quasi-isotherme entre 10 et 24 km au-dessus de la position du volcan) [Kloss et al., 2021]. L'orbite de CALIOP a traversé seulement le bord du

panache, ne permettant pas non plus une estimation sans équivoque de l'altitude. [Muser et al., 2020] ont indiqué que le panache a atteint 22 *km* d'altitude quelques jours seulement après l'éruption mais cela n'a pas été confirmé par les résultats de [Kloss et al., 2021]. Tous ces éléments rendent donc difficile l'estimation précise de la gamme d'altitude d'injection et de transport du panache du Raikoke.

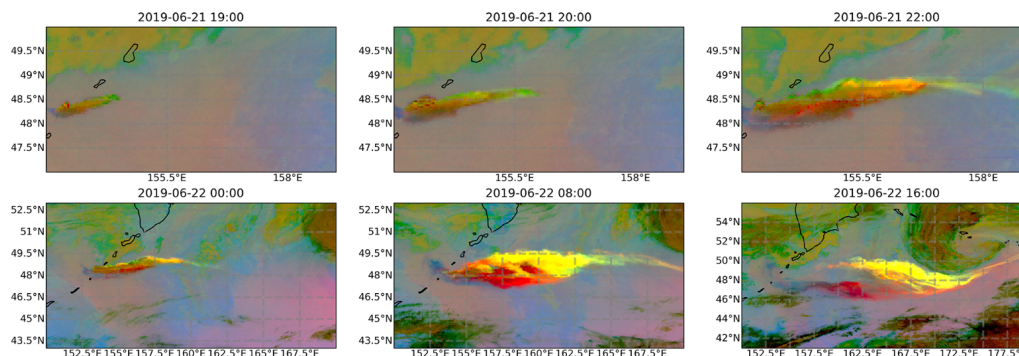


FIGURE 4.8 – Images RGB entre le 21 juin à 19 :00 TU et le 22 juin 2019 à 16 :00 TU du satellite Himawari-8 sur la région de Raikoke. Les cendres sont en couleur rouge, en vert clair le SO_2 ; en jaune, le mélange de SO_2 et de cendres fines ; en couleur verdâtre des nuages de moyenne altitude épais et minces ou cirrus ; en brun : nuages de glace épais et hauts ; bleu : air humide de basse altitude ; rose à violet : air sec de basse altitude. Issu de [Kloss et al., 2021]

Presque simultanément dans les régions tropicales, deux éruptions stratosphériques significativement plus petites du volcan Ulawun se sont produites. Le volcan Ulawun en Papouasie-Nouvelle-Guinée ($5,05^{\circ}S$; $151,33^{\circ}E$) a été identifié comme l'un des 16 « volcans de la décennie » par l'Association internationale de volcanologie et de chimie de l'intérieur de la Terre (IAVCEI) et est donc connu comme l'un des volcans les plus potentiellement destructeurs de la Terre (Cas, 2019). Deux éruptions se sont produites au cours de l'été 2019, les 26 juin et 3 août. Les altitudes d'injection de SO_2 sont identifiées entre 13 et 17 *km* avec les données IASI/Metop-B pour la première éruption du 26 juin. Pour la deuxième éruption et la plus grande, les données IASI/Metop-B (Meteorological Operationnal-B) indiquent des altitudes de SO_2 entre 14 et 17 *km* environ pour les 3 et 4 août (base de données Aeris, 2018). Pour la première éruption, les données Sentinel5P/TROPOMI (TROPOspheric Monitoring Instrument) suggèrent une charge de SO_2 0,14 *Tg* du panache, tandis que pour la seconde les données suggèrent 0,2 *Tg* de SO_2

(communication par S. Carn, 2019b). Par sa situation latitudinale, les éruptions d’Ulawun ont le potentiel d’avoir un impact sur la stratosphère des deux hémisphères, une fois injectées dans l’UTLS [Butchart, 2014]. [Kloss et al., 2021] ont proposé des altitudes d’injection entre 15 et 19 *km* pour la première éruption et 15 et 19 *km* pour la seconde à partir des données Himawari et ERA-5, ce qui diffère des estimations issues des mesures IASI de SO_2 (13-17 *km* et 14-17 *km* respectivement pour chaque éruption) et de CALIOP des aérosols (18 *km* et 18,5 *km*), ce qui témoigne là aussi la difficulté de fournir des paramètres précis pour cet événement.

4.2 Etude des panaches volcaniques avec WACCM-CARMA, observations satellites, lidar et ballons

4.2.1 Injections volcaniques dans WACCM-CARMA

Dans notre étude, seules les injections volcaniques de SO_2 sont considérées (Tableau 4.1). Aucune autre source volcanique telle que d’autres composés soufrés, des cendres ou de la vapeur d’eau n’est incluse. L’injection de cendres aurait nécessité d’utiliser le formalisme développé par [Zhu et al., 2020] que ces auteurs ont inclus dans WACCM-CARMA pour l’éruption du Kelud. Nous n’avons pas eu le temps nécessaire dans cette thèse pour tester également la prise en compte des cendres dans notre propre simulation. Les injections volcaniques de SO_2 en termes d’altitude et de charge de soufre sont basées sur les mises à jour de la base de données fournie par [Mills et al., 2016] à partir des résultats disponibles dans la littérature et largement basés sur des observations satellitaires et in situ. Selon l’événement volcanique, plus ou moins d’informations sur les caractéristiques d’injection sont déjà disponibles. Nous avons mené des tests de sensibilité pour ajuster certaines gammes d’altitude d’injection compte tenu des incertitudes des estimations disponibles dans la littérature.

Tableau 4.1 – caractéristiques d’injection des principales éruptions volcaniques dans le modèle WACCM-CARMA. D’autres éruptions plus mineures sont également prises en compte dans la simulation en suivant la base mise à jour des événements volcaniques de [Mills et al., 2016]

	Volcano	Date d’Eruption	Latitude	Longitude	Minimum altitude <i>km</i>	Maximum altitude <i>km</i>	Tg SO_2
1	Kelud	13-02-2014	-7,93	112,31	18	20	0.15
2	Calbuco	23-04-2015	-41.326	287.386	17	20	0.36
3	Ambae	5-04-2018	-15.79	166.94	16	18	0.13
3bis	Ambae	27-07-2018	-15.79	166.94	15	18	0.4
4	Raikoke	21-06-2019	48.29	153.27	8	16.5	1.5
5	Ulawun	26-06-2019	-5.05	152.33	16	17	0.14
5bis	Ulawun	03-08-2019	-5.05	152.33	17	18	0.2

Pour l’éruption du Kelud, la quantité totale de SO_2 injectée a été estimée à 0.15 Tg en accord avec les travaux de [Vernier et al., 2016] qui se sont inspirés de [Kristiansen et al., 2015]. À noter que cette charge de SO_2 est la moitié de celle de [Mills et al., 2016] qui supposait une injection de 0,3 Tg de SO_2 sans doute surestimée. Les altitudes d’injection sont basées sur les observations spatiales par CALIOP et in situ sous ballons de [Vernier et al., 2016] que nous développerons ci-après. Notre profil d’injection presque uniforme diffère des travaux de modélisation de [Zhu et al., 2020] qui a utilisé une distribution verticale non uniforme de SO_2 . De plus, [Zhu et al., 2020] ont réalisé plusieurs cas de simulation plus complexes concernant les propriétés de l’éruption (c.-à-d. injection de cendres et d’eau, interactions microphysiques impliquant des cendres, de l’acide sulfurique gazeux et du sulfate pur, absorption de SO_2 sur les cendres).

Quant à l’éruption de Calbuco, nous nous sommes référés aux travaux de [Bègue et al., 2017] qui ont combiné les observations spatiales de IASI et de CALIOP. Pour les éruptions des volcans Ambae, Ulawun, nos paramètres d’injection (altitude, charge de soufre) s’appuient sur un ajustement des résultats de [Kloss et al., 2020] et [Kloss et al., 2021] en combinant les informations tirées des températures de brillance observées par Himawari-8, de la distribution verticale des aérosols mesurée par OMPS et par l’expérience SAGE III/ISS et des informations issues de diverses communications scientifiques. Les caractéristiques de l’in-

jection (altitude, quantité) du panache de SO_2 du Raikoke ont été largement discutées dans le cadre de l’initiative internationale SSiRC-SPARC Volcano Response (VolRes ; <https://wiki.earthdata.nasa.gov/display/volres/Volcano+Response>) qui a fourni les premiers profils et charges de SO_2 une semaine après l’éruption (Vernier et al.,[2021], The VolRes activities after the 2019 Raikoke eruption, article en préparation).

Le modèle est mis en œuvre à l’échelle globale sur une période de 7 ans, du 1^{er} janvier 2013 au 31 décembre 2019, couvrant les principales éruptions volcaniques listées dans le tableau 4.1. Les simulations ont commencé le 1^{er} janvier 2013, en utilisant le fichier d’état initial de l’atmosphère du CESM1(WACCM) à cette date. Ceci a permis une période de spin-up du modèle suffisamment longue avant la première injection d’éruption.

Les injections de SO_2 volcanique dans le modèle sont réparties presque uniformément en altitude et également dans le temps, à savoir sur 6 heures entre 12 :00 TU et 18 :00 TU pour les volcans Kelud, Calbuco et Ambae et entre 18 :00 TU et 00 :00 TU pour Raikoke et Ulawun. La résolution de la grille horizontale du modèle rend les panaches volcaniques simulés initialement trop dilués par rapport à la réalité. Ce sont néanmoins des méthodologies typiques utilisées dans la littérature [Haywood et al., 2010, Mills et al., 2016, Lurton et al., 2018, Kloss et al., 2021]. Les résultats des simulations et les comparaisons aux différents jeux d’observation sont présentés dans l’article Tidiga et al.,[2021] soumis au journal Atmosphere.

4.2.2 Evolution du contenu en dioxyde de soufre et de l’épaisseur optique hémisphérique

4.2.2.1 Evolution du contenu en dioxyde de soufre

La Figure 4.9 montre la charge de SO_2 modélisée pour chaque éruption volcanique, calculée en intégrant les anomalies du modèle (en téragrammes ou Tg) à partir des simulations WACCM. Pour chaque événement volcanique, la charge de SO_2 est indiquée dans la région où l’injection a eu lieu, c’est-à-dire les tropiques (20°S-20°N), l’hémisphère nord (NH ; 0-80°N) ou l’hémisphère sud (SH ; 0-80°S) , avec une limite à 80°N et 80°S car OMPS n’observe pas au-delà. Sur la même Fi-

gure, on retrouve la charge de SO_2 dérivée des observations de IASI issues des tous derniers algorithmes de traitement non encore officiellement disponibles (collaboration avec Lieven Clarisse, Université libre de Bruxelles). La plupart des pics de SO_2 sont correctement reproduits par le modèle, mais le SO_2 simulé a généralement tendance à décroître plus rapidement que les observations IASI. Cette tendance a déjà été observée dans une étude similaire comparant les sorties WACCM-CARMA et IASI pour l'éruption de Sarychev en 2009 [Lurton et al., 2018]. Ce phénomène a été expliqué par les auteurs par la faible résolution du modèle qui induit une plus grande dispersion du transport du panache de SO_2 dans les de grille du modèle [Haywood et al., 2010, Lurton et al., 2018].

Les différences entre WACCM et IASI dans l'évolution de la colonne de SO_2 peuvent être aussi quantifiées en terme de temps de demi-vie ou temps de résidence qui correspond au temps pour lequel la concentration de SO_2 tombe à $1/e$ de sa valeur initiale [Lurton et al., 2018]. Les résultats, résumés dans le tableau 4.2 pour toutes les éruptions concernées par notre étude, montrent clairement des temps de demi-vie plus longs simulés par le modèle WACCM-CARMA pour toutes les éruptions à l'exception de celle du Raikoke en 2019. Les valeurs sont assez disparates d'une éruption à l'autre. [Carn et al., 2016] ont mis en évidence une corrélation entre l'altitude d'injection de SO_2 et la durée de vie du SO_2 . Ils ont également suggéré une dépendance liée de la durée de vie du SO_2 à la quantité de SO_2 injectée et à la latitude d'injection, ce qui pourrait expliquer les différentes valeurs de temps de demi-vie obtenus dans notre étude. Une oxydation trop lente du SO_2 dans le modèle pourrait être suggérée pour expliquer en partie les différences avec les observations IASI. Cependant, comme le soutiennent [Haywood et al., 2010, Lurton et al., 2018], la prise en compte d'une limite de détection dans les colonnes SO_2 de IASI (un seuil en dessous duquel les quantités de SO_2 ne sont pas détectées par l'instrument) diminuent les temps de demi-vie. Plus la limite de détection IASI est élevée, plus le temps de demi-vie calculé diminue rapidement. Ajuster les sorties du modèle WACCM-CARMA pour une valeur inférieure de 0,3 DU SO_2 des récupérations IASI de la même manière que [Lurton et al., 2018] conduit clairement à une décroissance plus rapide

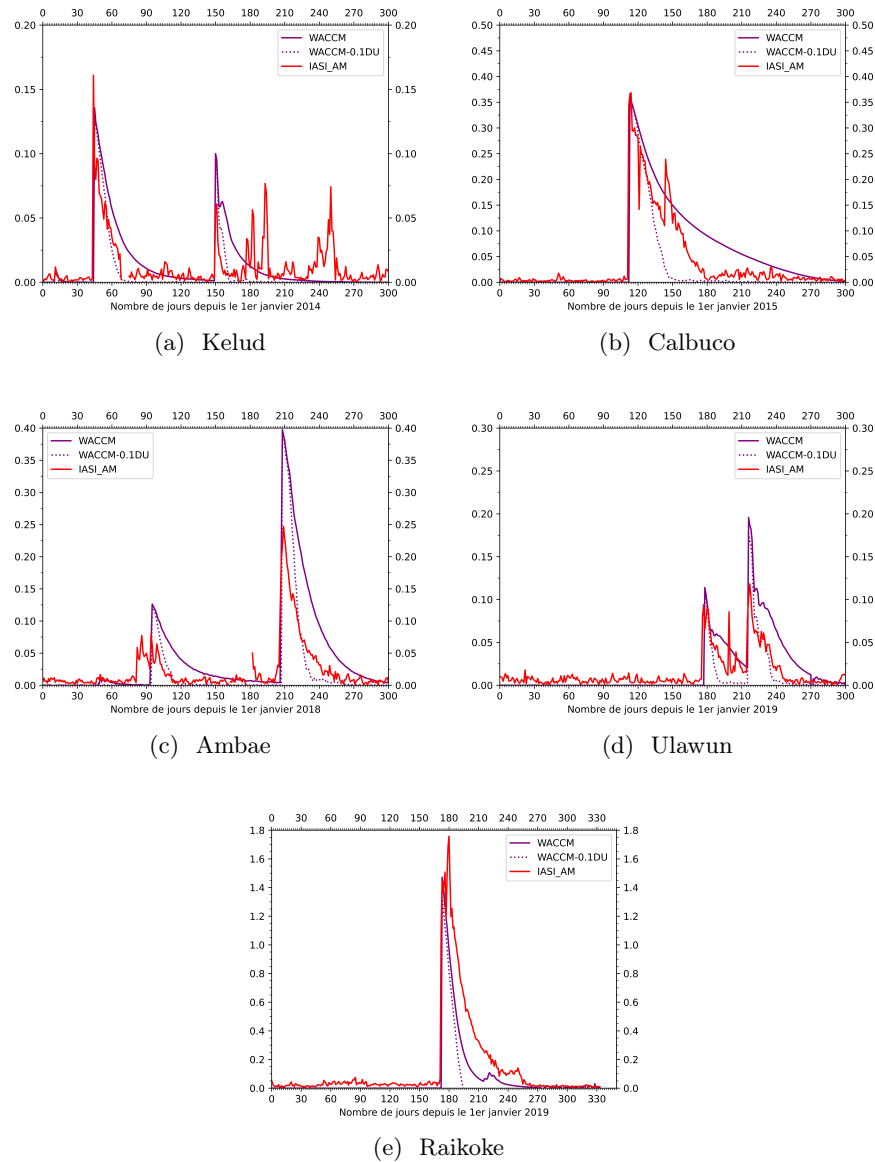


FIGURE 4.9 – Evolution temporelle de l’anomalie de la colonne totale de SO_2 (en Tg) moyennée sur la zone d’émission, c’est-à-dire les tropiques pour Kelud, Ambae et Ulawun, SH pour Calbuco, NH pour Raikoke telle qu’observée par IASI (lignes rouges pleines) et simulée par WACCM-CARMA (ligne pleine violette). L’anomalie du modèle désigne une simulation d’activation de volcan à partir de laquelle la course de contrôle d’activation de volcan a été soustraite. Des seuils de détection de 0,3 DU (traits pointillés) et 0,1 DU (traits pointillés) ont été appliqués au modèle (voir texte). Certains pics dans la colonne de SO_2 détectés par IASI peuvent être attribués à des émissions volcaniques dans la troposphère qui ne sont pas nécessairement prises en compte dans la simulation.

des colonnes de SO_2 pour toutes les éruptions (Figure 4.9) et réduit les temps de demi-vie associés, sans toutefois correspondre de manière robuste à l’évolution de SO_2 observée, sauf pour le cas du Kelud. L’application d’un filtre de 0,1 DU,

plus représentatif de ce qui est attendu des derniers algorithmes de IASI (Lieven Clarisse, communication personnelle) donne une meilleure concordance avec les observations de l'IASI, montrant que la connaissance précise de la valeur limite de détection est essentielle pour une comparaison cohérente.

Tableau 4.2 – Temps de résidence pour le SO_2 dérivés des simulations WACCM-CARMA et des observations IASI. Par souci de comparaison avec les données satellitaires, des limites de détection de 0,3 et 0,1DU sont appliquées

Volcans	Temps de résidence simulé	Temps de résidence simulé avec un seuil de 0.1 DU	Temps de résidence simulé avec un seuil de 0.3 DU	Temps de résidence observé par IASI
Kelud	≈ 18 jours	≈ 12 jours	≈ 8 jours	≈ 12 jours
Calbuco	≈ 45 jours	≈ 22 jours	≈ 14 jours	≈ 25 jours
Ambae 1	≈ 23 jours	≈ 11 jours	≈ 5 jours	≈ 17 jours
Ambae 2	≈ 24 jours	≈ 12 jours	≈ 8 jours	≈ 16 jours
Ulawun 1	≈ 22 jours	≈ 7 jours	≈ 5 jours	≈ 24 jours
Ulawun 2	≈ 23 jours	≈ 9 jours	≈ 6 jours	≈ 17 jours
Raikoke	≈ 15 jours	≈ 13 jours	≈ 9 jours	≈ 16 jours

Spécifiquement pour le cas Kelud, nous trouvons un temps de demi-vie simulé d'environ 18 jours par rapport à une valeur d'environ 26 jours à partir de la configuration du modèle de [Mills et al., 2016]. La spécificité et la nouveauté de l'étude récente de [Zhu et al., 2020] est qu'elle a simulé l'effet des particules de cendres co-émises avec le SO_2 par le volcan Kelud sur les processus microphysiques (nucléation hétérogène, coagulation, grossissement) et chimiques (adsorption du SO_2 à la surface des particules de cendres à partir d'études en laboratoire) au sein du panache. [Zhu et al., 2020] ont simulé un temps de demi-vie d'environ 22 jours pour une simulation prenant en compte les aérosols sulfatés (avec une injection uniforme de SO_2 entre 17 et 26 km) et des processus microphysiques sur les cendres. Les simulations de [Zhu et al., 2020] tenant compte des processus microphysiques soufre/cendres et incluant de surcroît des processus d'adsorption de SO_2 sur les cendres (à partir d'études en laboratoire) ont montré qu'environ 20 % du SO_2 initial a été retiré de la phase gazeuse principalement au cours du premier jour de l'éruption, avec une adsorption qui sature généralement avec le temps. Au

final, leurs simulations reproduisent mieux l'évolution temporelle du SO_2 telle qu'observée à partir d'instruments satellites sous les tropiques, conduisant à un temps de demi-vie réduit d'environ 17 jours. La valeur similaire que nous avons obtenue à partir de notre simulation indique un impact critique concernant le choix des plages d'altitude et des zones d'injection sur la durée de vie du SO_2 par rapport à la prise en compte des processus chimiques avec les cendres.

Pour le Raikoke, nous trouvons un temps moyen d'environ 15 jours alors qu'une valeur de 16 jours est dérivée de IASI. Une valeur de 14-15 jours a été trouvée par de [De Leeuw et al., 2021] à partir des observations satellitaires de TROPOMI. Les altitudes de panache de SO_2 estimées à partir des observations IASI et utilisées dans le cas de l'initiative internationale VolRes ont révélé de fortes variations qui impactent les valeurs de colonnes de SO_2 déterminées avec l'algorithme de traitement IASI. Là aussi cela indique la complexité de cette éruption. Comme discuté dans [Kloss et al., 2021], les désaccords entre les différentes sources d'observation en termes de séquence d'injection et d'altitude rendent difficile l'initialisation correcte de la simulation pour cet événement spécifique. La présence sans ambiguïté de cendres détectée à partir d'observations satellitaires [Muser et al., 2020] peut avoir eu un impact chimique sur la durée de vie du SO_2 au même titre que cela a été conclu pour le cas du Kelud. Cependant, comme discuté ci-dessus, la présence de cendres est censée raccourcir la durée de vie du SO_2 et cela augmenterait même la différence entre les simulations et les observations IASI sur la Figure 4.9.

L'augmentation significative de la durée de vie du SO_2 émis par le Raikoke suggérée par les observations IASI implique très probablement un mécanisme de transport non représenté dans le modèle. Les effets de réchauffement radiatif dus à la présence co-localisée de particules de fumée émises par des incendies de forêt à la fin du printemps et au début de l'été 2019 sont également examinés par la communauté VolRes.

4.2.2.2 Evolution de l'épaisseur optique stratosphérique SAOD par bandes de latitude

L'étude de la SAOD moyennée sur les bandes latitudinales fournit un aperçu intéressant des différences entre les observations et les simulations des aérosols

après transformation de tout le SO_2 gazeux (Figure 4.10). Les évolutions de la SAOD sont dérivées sur les bandes latitudinales en fonction de la latitude d'émission, entre 0° et 80° de latitude nord et sud respectivement pour Raikoke et Calbuco et aux tropiques ($20^\circ S$ - $20^\circ N$) pour toutes les éruptions. La SAOD a été calculée à partir de 1 km au-dessus de la tropopause jusqu'à 30 km.

En faisant une comparaison avec les observations de OMPS, on remarque d'emblée sur la Figure 4.10 que le modèle WACCM-CARMA tend à avoir des difficultés à simuler les conditions de fond et les périodes inter-éruptions. Pour le cas du Kelud (Figure 4.10 a), WACCM-CARMA surestime les valeurs observées de SAOD de fond (courbe noire « background » sur la Figure). Mise à part pour le cas du Calbuco, pour les autres éruptions, le modèle surestime (traits pleins rouges) les observations OMPS (traits pointillés) de SAOD aux tropiques sur les mois précédant chaque événement (période inter-éruption). Cela peut indiquer que le modèle a tendance à prolonger le temps de résidence des aérosols volcaniques aux latitudes tropicales sur des périodes allant au-delà d'un an. Il est également possible que des éruptions volcaniques mineures, se produisant entre les événements principaux de la table 4.1, avec des paramètres d'injection mal estimés, puissent contribuer à augmenter le contenu modélisé en aérosols. Une autre explication peut concerner la sensibilité des observations d'OMPS dans les conditions de contenu faible en aérosols stratosphériques. A noter que l'on retrouve pour chaque année le cycle saisonnier tropical de la SAOD de fond mis en évidence sur la Figure 4.1. Les phases où la SAOD est impactée par les éruptions principales présentent des résultats de comparaisons WACCM-OMPS disparates. Elles sont présentées dans la Figure 4.10 et sont discutées au cas par cas dans la suite de ce document.

4.2.3 Variabilité spatio-temporelle des panaches d'aérosols sulfatés

4.2.3.1 Variation latitudinale du signal des aérosols

La distribution temporelle de la moyenne zonale de la SAOD pour les observations OMPS et les simulations WACCM-CARMA pour les deux hémisphères est présentée à la Figure 4.11. Globalement, le modèle simule avec une assez bonne précision les positions observées des panaches volcaniques. L'augmentation de la

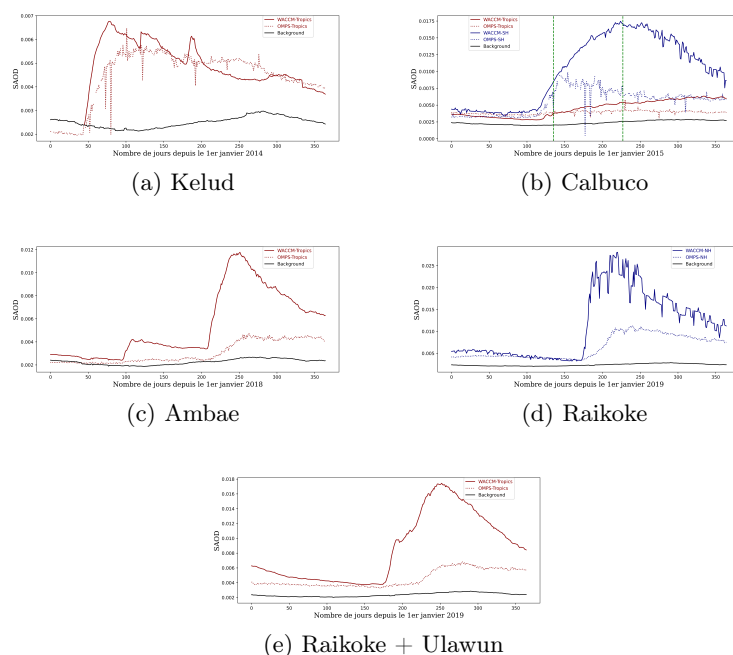


FIGURE 4.10 – Séries temporelles de SAOD pour les différentes éruptions volcaniques dérivées des observations OMPS (lignes pointillées) et de la simulation WACCM-CARMA avec éruptions volcaniques (lignes pleines). Les évolutions de la SAOD sont dérivées sur les bandes latitudinales en fonction de la latitude d’émission, c’est-à-dire NH pour Raikoke, SH pour Calbuco (avec une limite à 80°N et 80°S car OMPS n’observe pas au-delà) et sont montrées dans les tropiques pour toutes les éruptions. Les lignes noires représentent les résultats de la simulation de référence (sans éruption). La SAOD a été calculée de 1 km au-dessus de la tropopause à 30 km .

SAOD des aérosols dans la simulation entre 40°S et 60°S est attribuée à la propagation du signal des événements d’injections directe dans la stratosphère tropicale (Kelud et Ambae) depuis les tropiques vers les latitudes moyennes de l’hémisphère sud (SH), mais cette caractéristique est moins évidente dans les observations OMPS.

L’occurrence d’un tel transport méridien dépendrait de la phase de la QBO [Trepte and Hitchman, 1992, Baldwin and Dunkerton, 2001] et des variations saisonnières des barrières dynamiques tropicales [Berthet et al., 2007, Bègue et al., 2017]. Les aérosols volcaniques sont un « marqueur » intéressant de l’effet de la phase de la QBO sur l’occurrence du transport méridional des masses d’air des tropiques vers les latitudes moyennes en fonction de l’altitude. Quand une injection volcanique se produit au sein de la ceinture intertropicale durant la phase d’est de la QBO, il a été montré qu’un certain confinement des aérosols volcaniques est favo-

risé [Pitari et al., 2016]. Lorsque la phase de vents d’est descend aux plus basses altitudes dans les tropiques, la propagation des ondes planétaires vers cette région est inhibée, ce qui limite l’ampleur avec laquelle ces ondes peuvent transporter les aérosols latéralement depuis le réservoir tropical [Trepte et al., 1993]. Par exemple, cela correspond à la situation en avril-mai 2015 pour le panache du Calbuco (Figure 4.6). Pendant la phase d’ouest de la QBO, le mélange à travers les régions subtropicales est favorisé, surtout en hiver [Trepte et al., 1993]. La propagation méridionale des aérosols vers les moyennes latitudes de l’hémisphère sud montrée au-dessus de 21 km sur la Figure 4.6 (période 16-31 août 2015) est cohérente avec l’inversion de phase de la QBO, des vents d’est aux vents d’ouest, observée à partir de mi-2015 (jour \approx 910 sur la Figure 4.2).

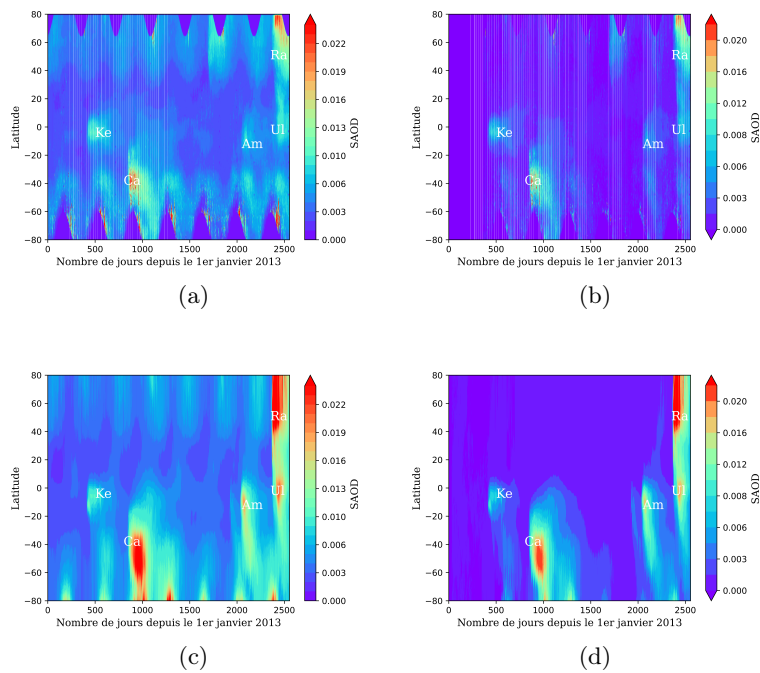


FIGURE 4.11 – Comparaisons de l’évolution temporelle moyenne journalière et zonale de la SAOD à différentes latitudes telle que mesurée par OMPS (a) et simulée par WACCM-CARMA (c). La SAOD a été calculée de 1 km au-dessus de la tropopause à 30 km. Les anomalies sont présentées sur le panneau de droite (b) OMPS et (d) WACCM-CARMA.

4.2.3.2 Variation du contenu en aérosols aux latitudes tropicales

La Figure 4.12 présente une série chronologique des moyennes d’extinction quotidiennes et zonales à 675 nm sous les tropiques (20°S à 20°N) de 2013 à 2019 sur

la base des mesures OMPS et des simulations WACCM-CARMA. Les anomalies d'extinction OMPS sont calculées par rapport à l'année 2013 sans événement volcanique stratosphérique (Figure 4.3 i) tandis que les anomalies WACCM-CARMA sont dérivées de la simulation avec injection volcanique moins la simulation de référence (sans volcan). Notez que les anomalies simulées donnent des valeurs très proches lorsqu'elles sont calculées par rapport à l'année 2013 comme pour OMPS (non illustré ici).

Dans l'ensemble, les maxima d'extinction simulés liées à la formation d'aérosols d'acide sulfurique volcanique correspondent aux maxima d'extinction mis en évidence par OMPS dans la stratosphère. Les extensions verticales des panaches sont globalement bien reproduites par le modèle aussi bien pour les valeurs absolues des extinctions que pour les anomalies.

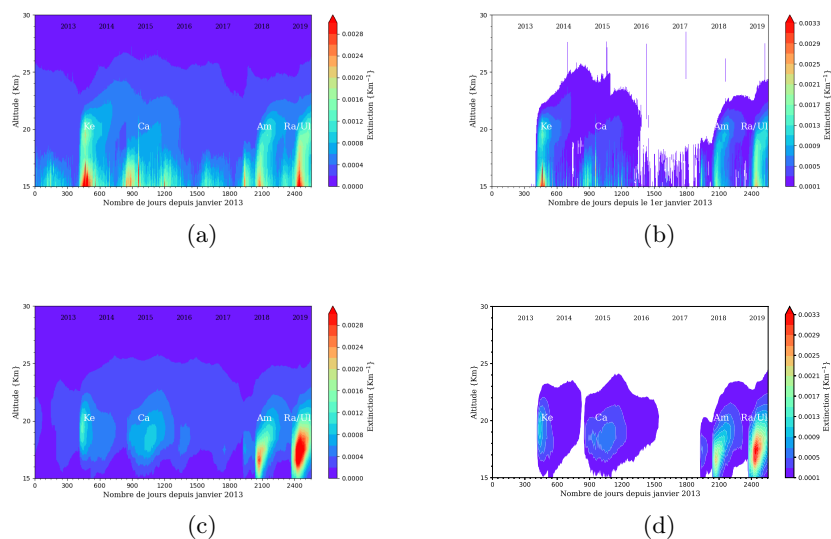


FIGURE 4.12 – Comparaisons de l'évolution temporelle moyenne journalière et zonale de la SAOD à différentes latitudes telle que mesurée par OMPS (a) et simulée par WACCM-CARMA (c). La SAOD a été calculée de 1 *km* au-dessus de la tropopause à 30 km. Les anomalies sont présentées sur le panneau de droite (b) OMPS et (d) WACCM-CARMA).

Les éruptions des volcans Kelud et Ambae localisées dans les tropiques montrent une signature claire avec un schéma de propagation verticale similaire dans les observations et dans les simulations (4.12 a et 4.12 (c)). Le transport ascendant des panaches (ayant atteint les tropiques depuis les latitudes moyennes ou qui ont été émis directement) traduisant un effet « tape recorder », déjà mis en évidence par

[Vernier et al., 2011a] dans les anciennes éruptions tropicales, montre un signal plus visible dans les observations OMPS. Les extinctions modélisées pour le Kelud sont $\approx 25\%$ plus élevées que les valeurs observées OMPS. Vers 15 *km*, on remarque qu'une signature de nuages de haute altitude est toujours présente dans les données OMPS mais est exclue dans les simulations WACCM-CARMA. Les nuages ne sont pas correctement supprimés des anomalies OMPS dans la méthodologie utilisée ici en prenant une année précise (ici 2013) comme référence.

4.2.3.3 Cas du Kelud

Comparaisons avec les mesures satellites

L'évolution de la SAOD intégrée de l'éruption du Kelud (Figure 4.10 a) montre une augmentation plus rapide du modèle à un stade précoce de la formation du panache d'aérosol et un comportement très similaire entre OMPS et WACCM-CARMA pendant la phase de déclin. En moyenne sur la période post-injection, le modèle surestime les mesures de SAOD de 6%. Environ 60 jours après l'éruption, le modèle et les observations concordent bien en termes de valeurs absolues de SAOD. Les résultats de [Zhu et al., 2020] montrent une teneur en aérosols modélisée en moyenne zonale dans les 20 % des valeurs CALIOP entre 20 et 60 jours après l'éruption du Kelud, lorsque l'on considère les interactions physico-chimiques soufre/cendres. Dans ce cas, la production de sulfate est largement contrôlée par la réaction chimique du SO_2 à la surface des particules de cendre plutôt que par la perte microphysique directe du sulfate et du gaz H_2SO_4 (c'est-à-dire par des processus de nucléation et de coagulation hétérogènes) par les cendres, ce qui a un impact significatif sur l'évolution temporelle du contenu en sulfate. Sur la base des résultats de [Zhu et al., 2020], nous nous attendons à une production plus rapide de sulfate (l'oxydation du SO_2 en sulfate en phase gazeuse) au cours des premiers jours de la formation du panache, mais à une évolution plus aplatie et des valeurs maximales réduites de la SAOD au cours des 60 jours suivant l'éruption du Kelud. Sur la Figure 4.11, l'intensité du signal Kelud et son étendue spatio-temporelle semblent bien reproduites par le modèle.

Comparaisons avec mesures in situ - campagne K1Ash

Durant les dix premiers jours après l'éruption, les observations spatiales de CALIOP ont révélé un signal d'extinction maximum à 20 *km* [Vernier et al., 2016], soit l'altitude d'injection de soufre calculé dans le modèle WACCM-CARMA. Une signature significative de cendres dans le panache de Kelud a été observée par CALIOP, culminant dans la plage d'altitude de 18,5-19,5 *km*, c'est-à-dire en dessous du signal maximal de sulfate à 20 *km*, avec des valeurs d'extinction et une altitude de cendres diminuant avec le temps. Environ trois mois après l'éruption du Kelud, des mesures du profil des aérosols ont été effectuées lors de la campagne de terrain KIAsh (Kelud-Ash) en mai 2014 dans la région de Darwin, au nord de l'Australie (12,4°S ; 130,8°E), en utilisant la sonde de rétrodiffusion COBALD et le compteur WOPC de l'université du Wyoming, deux instruments embarqués sous ballon [Vernier et al., 2016].

La Figure 4.13 présente quatre profils d'extinction dérivés des observations de rétrodiffusion COBALD en utilisant un rapport lidar de $45sr \pm 10$ calculé en faisant la moyenne des rapports lidar typiques de particules de sulfate et de cendres, à savoir respectivement 50 sr et 40 sr [Vernier et al., 2016].

Les sorties du modèle WACCM-CARMA concordent bien avec les observations COBALD en restant dans la plage d'incertitude. En dessous de 20 *km*, les observations COBALD reflètent une certaine variabilité à court terme qui est partiellement simulée par le modèle. Cependant, les comparaisons avec WACCM-CARMA montrent une bonne concordance globale en termes de forme de profil et d'altitude de pic d'extinction, trois mois après l'éruption, c'est-à-dire une période pendant laquelle les SAOD observés et simulés concordent bien (Figure 4.10 (a)). Pendant la période de la campagne KIAsh, le signal moyen dû aux cendres détectées par CALIOP sous les tropiques (20°S-20°N) était beaucoup plus faible qu'à un stade précoce du panache avec une fraction de cendres à la fois estimée par CALIOP et le WOPC de seulement 10-11 % de la SAOD totale ou 20-25% de la SAOD excluant la contribution des aérosols non-volcaniques [Vernier et al., 2016]. Cela peut expliquer pourquoi les profils d'extinction dus au sulfate pur calculés par le modèle reproduisent les profils d'extinction observés en mai 2014.

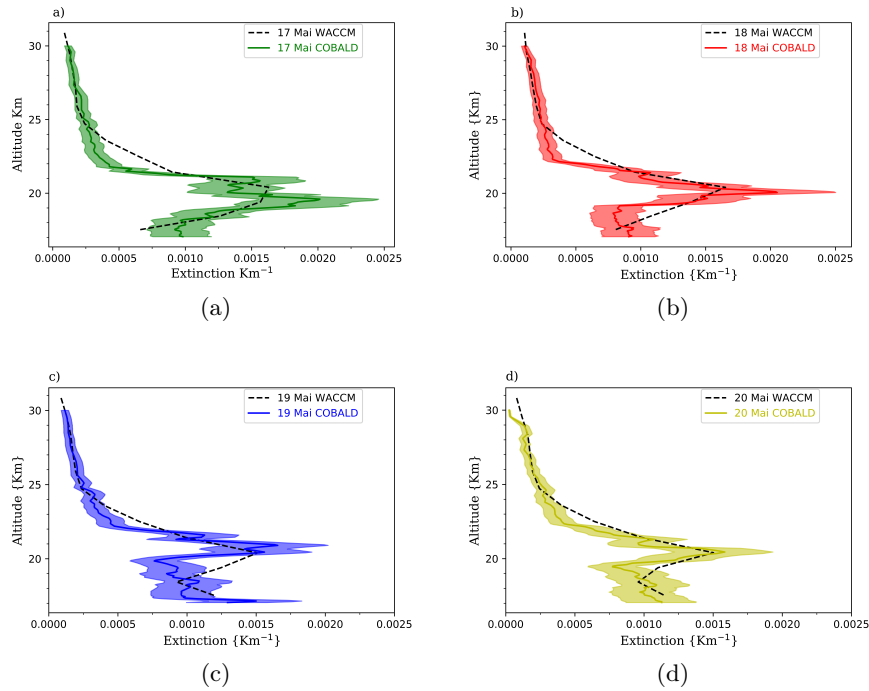


FIGURE 4.13 – Profils d’extinction à 532 nm observés par l’instrument COBALD lors de la campagne Klash de mai 2014 (traits pleins) et comparés aux sorties WACCM-CARMA de la simulation avec injection volcanique (tirets) au point de grille le plus proche. Les incertitudes de COBALD (zones ombrées) sont obtenues en tenant compte d’un rapport lidar de $45sr \pm 10$ tel qu’utilisé dans [Vernier et al., 2016]

Les observations des propriétés optiques et des distributions de tailles du 20 mai 2014 ont montré une contribution dominante des particules non volatiles (très probablement associées aux cendres) en dessous de 20 km pour des tailles supérieures à $0,5 \mu m$ mais avec une large dominance des particules volatiles associées à l’acide sulfurique en terme de la concentration totale pour toute la gamme d’altitude [Vernier et al., 2016]. Les Figures 4.14 a et 4.14 b montrent les concentrations en nombre de particules d’aérosol pour deux gammes de tailles : rayons (r) $> 10 nm$ (correspondant aux noyaux de condensation(CN)) et $r > 0,15 \mu m$. Il existe un très bon accord entre les valeurs simulées et mesurées par WOPC pour les particules de rayon supérieur au rayon des CN et pour toutes les altitudes, ce qui indique que les processus de nucléation et de coagulation des aérosols stratosphériques sont correctement simulés par le modèle, comme l’ont déjà souligné [English et al., 2011]. Notons que les différences entre les valeurs du modèle et les mesures WOPC sont plus importantes dans la troposphère puisque seules les

particules d'acide sulfurique sont simulées. Pour les particules avec $r > 0,15 \mu m$, les concentrations simulées augmentent d'un facteur 6 par rapport aux conditions de fond ; le modèle montre un assez bon accord avec les mesures in situ pour les valeurs de concentration maximale et reproduit globalement bien la forme du profil. Cependant, il montre un pic de panache plus large et a tendance à surestimer significativement le profil observé. Ces différences peuvent découler des incertitudes dans l'altitude d'initialisation et de la faible résolution du modèle qui peut conduire à une structure de panache de sulfate anormale au point de grille le plus proche de la mesure in situ, comme l'ont souligné [Lurton et al., 2018], pour un exercice de comparaison similaire pour le panache volcanique du volcan Sarychev.

Le 26 novembre 2014, un vol ballon avec le compteur optique LOAC a été effectué depuis l'île de la Réunion. La Figure 4.14 (c) et 4.14 (d) montrent respectivement les comparaisons de profil d'extinction et de concentration des particules entre LOAC et WACCM-CARMA. Les valeurs de SAOD mesurées par OMPS et simulées par WACCM-CARMA comparées aux conditions de fond confirment qu'à cette période les latitudes tropicales étaient toujours impactées par le panache du Kelud (jour 330 sur la Figure 4.10 (a)). Les résultats du modèle montrent une augmentation des concentrations en particules entre 17 et 27 km signant la présence du panache du Kelud à cette période (Figure 4.14 (d)). L'extinction simulée présente une augmentation dans la stratosphère avec un maximum vers 18 km. A noter que les allures des profils d'extinction et de concentration mesurés diffèrent dû au fait que ce sont les petites particules qui dominent les valeurs de concentrations totales et les grosses pour le calcul d'extinction (même une faible quantité de particules de tailles supérieures à 1 μm peuvent augmenter significativement les valeurs d'extinction). Les mesures in situ par LOAC présentent des concentrations élevées sur l'ensemble du profil puisque l'on s'attend à des valeurs de l'ordre de quelques particules par cm^{-3} , avec un minimum local de concentrations non présent dans les valeurs simulées. Les raisons de ces différences ne sont pas claires et il n'est pas à exclure que l'instrument a souffert d'un problème de bruit comme cela s'est produit à plusieurs reprises pour cette version v1.2 (remplacée en 2019 par la par la v1.5).

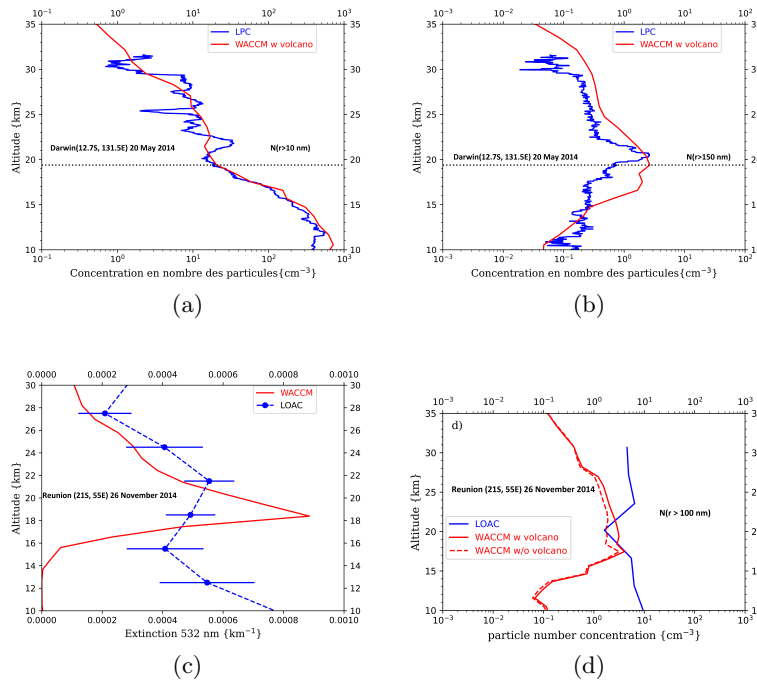


FIGURE 4.14 – (a) et (b) profils de concentration totale (c’est-à-dire au-dessus de la taille minimale mesurable par l’instrument) en nombre de particules obtenus lors du vol en ballon UWOPC près de Darwin le 20 mai 2014 (bleu) et simulé par le modèle WACCM-CARMA (rouge trait plein pour avec volcan et rouge pointillé pour sans volcan) au point de grille le plus proche. Les concentrations sont indiquées pour les particules avec des rayons $r > 0,01 \mu m$ (CN) et $r > 0,15 \mu m$. Les barres d’incertitudes des mesures ne sont pas incluses pour plus de clarté sur la Figure (échelle log). (c) et (d) profils d’extinction (532 nm) et de concentration totale (c’est-à-dire au-dessus de la taille minimale mesurable par l’instrument) en nombre de particules obtenus lors du vol sous ballon de LOAC à l’île de la Réunion le 26 novembre 2014 (bleu) et simulés par le modèle WACCM-CARMA (rouge trait plein pour la simulation avec volcan et rouge pointillé pour la simulation sans volcan) au point de grille le plus proche. Les mesures de LOAC sont intégrées sur 10 minutes pour augmenter le rapport signal-sur-bruit. L’extinction du modèle est calculée pour les mêmes gammes de taille que l’instrument ballon, à savoir pour des diamètres $\geq 0,2 \mu m$.

4.2.3.4 Cas du Calbuco

Comparaisons avec mesures satellites

L’étendue spatio-temporelle du panache de Calbuco est bien reproduite par WACCM-CARMA bien que les valeurs absolues d’extinction moyenne soient sur-estimées d’environ 25% par le modèle (Figure 4.12). Le signal des aérosols volcaniques, qui dure jusqu’à l’été 2016, est plus prononcé dans le modèle que dans OMPS à toutes les latitudes; le modèle tend à simuler des SAOD en augmenta-

tion aux latitudes tropicales jusqu'à la fin 2015 alors qu'une évolution stable est observée par OMPS (Figure 4.10 (b)). Les anomalies montrées dans les Figures 4.12 et 4.11 indiquent qu'un léger signal restant du Kelud provenant des observations OMPS peut avoir interféré avec celui du Calbuco à l'échelle zonale. Sur la Figure 4.10, on remarque que la différence de $2,5 \cdot 10^{-3}$ en terme de SAOD entre simulations avec et sans aérosols volcaniques indique une signature demeurante du Kelud aux latitudes tropicales au moment de l'éruption du Calbuco. Une telle signature n'est pas clairement visible sur les anomalies modélisées de l'extinction et de la SAOD (Figures 4.11 (d) et 4.12 (d)). Nous notons que le signal d'aérosol le plus important s'est propagé vers le pôle, ce qui a eu tendance à renforcer la formation de nuages stratosphériques polaires dans le vortex polaire antarctique [Zhu et al., 2018]. Les aérosols de Calbuco sont toujours présents dans l'hémisphère sud aux latitudes moyennes environ un an après l'éruption (Figure 4.11).

Comparaisons avec mesures in situ sous ballons – campagne MORGANE

Le panache du Calbuco a été étudié à partir d'observations lidar au sol, de mesures in situ sous ballon et d'observations satellitaires à la Réunion (Observatoire de Maïdo ; 20.5°S , 55.5°E) notamment dans le cadre de la campagne MORGANE (Maïdo ObservatoRy Gas Aerosols NDACC Experiment) en 2015. Des détails sur les divers instruments peuvent être trouvés dans [Bègue et al., 2017]. Au même titre que la campagne KIAsh, les observations in situ des aérosols stratosphériques sont rares aux tropiques et permet des comparaisons uniques avec les résultats de simulations en terme de microphysique. Le compteur d'aérosols LOAC (ancienne version v1.2) a été lancé le 19 mai 2015 environ un mois après l'éruption. Un deuxième vol a été effectué le 19 août 2015 pour explorer le déclin du panache volcanique. Les deux profils de concentration sont comparés aux sorties WACCM-CARMA au point de grille le plus proche de l'observation (Figure 4.15).

Le 19 mai, la signature observée du panache de Calbuco culmine à $17,5 \text{ km}$, ce qui est reproduit par le modèle. Les concentrations simulées par WACCM-CARMA à l'altitude du pic sont d'un facteur 10 inférieures aux valeurs observées par l'OPC. Au-dessus, à des altitudes non impactées par les aérosols volcaniques, l'écart peut

atteindre un facteur supérieur à 10 et les valeurs de concentration observées par LOAC à ces altitudes dépassent largement les concentrations en conditions de fond sous les tropiques (voir Figure 10 dans [Bègue et al., 2017]). Notons que les comparaisons utilisant d'autres points de grille du modèle montrent des différences similaires (non présentées ici).

Le 19 août, localement le panache de Calbuco s'était étalé verticalement et le modèle calcule une augmentation d'un facteur ≈ 5 quand les aérosols volcaniques sont présents. Une bonne concordance est observée entre le modèle et l'OPC, sauf au-dessus de 25 km où la forte augmentation (déviant d'un facteur 10 par rapport à l'allure générale du profil observé) n'est pas reproduite par le modèle. Notons qu'une telle caractéristique de haute altitude est occasionnellement observée par les compteurs optiques du LPC2E depuis leur mise en œuvre au début des années 2000 et n'a pas encore été clairement attribuée à un phénomène spécifique comme par exemple les épisodes météoritiques saisonniers [Renard et al., 2010, Renard et al., 2020]. On remarque que les différences WACCM-OPC sur les valeurs de concentration ne correspondent pas à celles pour la SAOD entre le modèles et OMPS (Figure 4.10 (b), montrant une meilleure concordance au 19 mai qu'au 19 août 2015 (Figure 4.15 (b)).

Les distributions en taille reflètent la formation et l'évolution microphysique des particules. Elles sont présentées dans le mode d'accumulation sur la Figure 4.15 (c),(d) pour les vols du 19 mai et 19 août 2015 aux altitudes correspondant aux maximums de concentration des aérosols volcaniques. Contrairement aux aérosols de l'éruption majeure du Pinatubo qui ont révélé des spectres de taille de forme bimodale au moins dans les premiers mois de l'événement, les distributions en taille du panache du Calbuco apparaissent clairement comme monomodales comme cela avait été mis en évidence pour les particules issues d'une autre éruption modérée, celle du Sarychev en 2009 [Lurton et al., 2018].

Le 19 mai, dans l'exemple donné ici autour de 19 km d'altitude, la forme de la distribution diffère clairement entre WACCM-CARMA et la mesure in situ. Le modèle notamment sous-estime les valeurs de concentrations mesurées pour la première gammes de taille de LOAC (0,2-0,3 μm) ce qui démontre que ce sont spé-

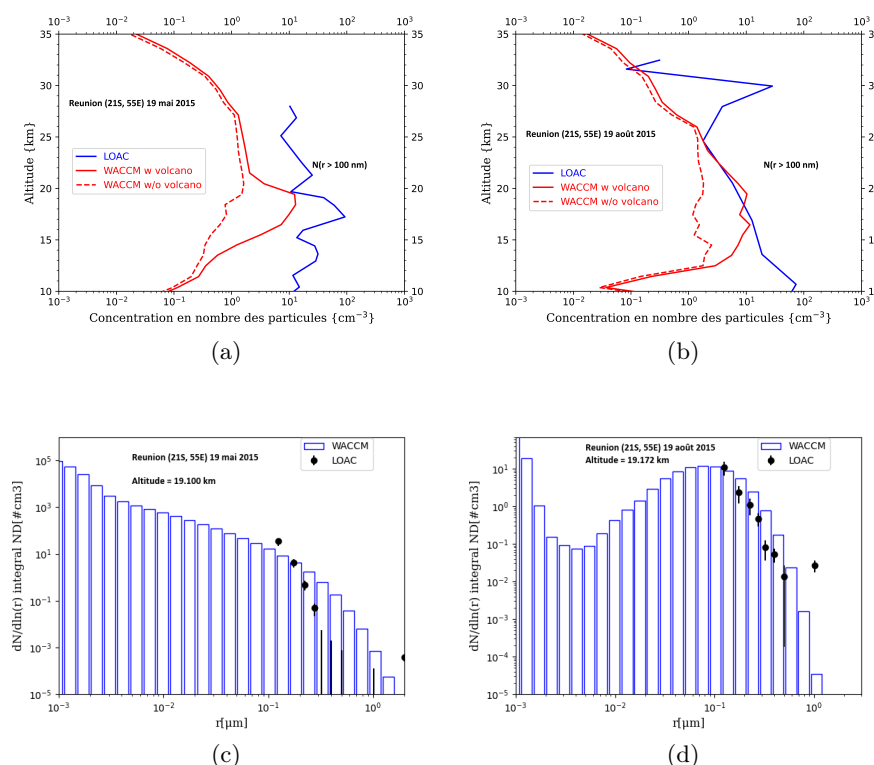


FIGURE 4.15 – (a) et (b) profils de concentration en nombre de particules obtenus lors d’un vol en ballon depuis La Réunion les 19 mai et 19 août 2015 par l’instrument LOAC (bleu) et simulés par le modèle WACCM-CARMA au point de grille le plus proche (rouge). Les profils issus des simulations avec et sans aérosols volcaniques sont présentés respectivement en traits pleins et tirets. Les concentrations sont indiquées pour les particules avec des rayons $r > 0,10 \mu\text{m}$. L’altitude de la tropopause locale dérivée de la température observée est d’environ $15,5 \text{ km}$ et d’environ $16,5 \text{ km}$ le 19 mai 2015 et le 19 août 2015 respectivement. (c) et (d) distributions en taille des particules (points noirs pour LOAC et histogrammes pour WACCM-CARMA) à des altitudes correspondant aux pics de concentrations pour les profils du 19 mai et du 19 août 2015. Les gammes de tailles sur les histogrammes du modèle sont calculées de manière dynamique par le modèle à mesure que les aérosols grossissent par condensation de l’eau après application du post-traitement utilisant le formalisme de [Tabazadeh et al., 1997] (cf chapitre 3).

cifiquement ces tailles qui expliquent la différence mesure-modèle sur la Figure 4.15 (c). Des caractéristiques similaires sont données pour les autres niveaux d’altitude. Pour les particules plus grosses que $0,4 \mu\text{m}$, le modèle simule des concentrations supérieures à celles observées par LOAC et ce, pour chaque gamme de taille, avec une forme de distribution en taille moins « plongeante » que la mesure in situ à mesure que les tailles augmentent. Le cas du 19 août (là aussi autour de 19 km d’altitude) est révélateur de résultats de comparaison différents avec des valeurs pour la plus petite gamme de taille plutôt mieux représentées dans le modèle que pour

le cas du 19 mai et avec une surestimation de moindre ampleur des observations pour les particules plus grosses que $0,4 \mu m$. Ces résultats indiquent que le modèle reproduit l'évolution microphysique des aérosols du Calbuco de manière inégale sur la période de 3 mois séparant les 2 observations, avec cependant une meilleure prise en compte d'un panache plus âgé. Sur la Figure 4.15, on voit également dans les distributions en taille simulées que les noyaux de condensation (aérosols jeunes ; tailles plus petites que $10_{-2} \mu m$) sont moins présents le 19 août par rapport au 19 mai et donc que les aérosols dominant dans le mode d'accumulation sans doute par effets de grossissement par condensation et coagulation. Notons que l'utilisation d'autres points de grille du modèle mène aux mêmes conclusions.

[Zhu et al., 2018] ont effectué leur propre simulation avec leur version de CESM1 (un peu plus ancienne que la notre) en injectant $0.4 Tg$ de SO_2 (contre $0,36 Tg$ dans notre cas) entre $17,4$ et $21 km$ (contre 17 et $20 km$ dans notre étude) avec le même timing que notre initialisation. Ils ont obtenu une différence similaire à nos résultats entre les distributions mesurées par LOAC le 19 août 2015 et les simulations pour les premières gammes de taille (Figure 4.16). Pour les tailles supérieures à $0,4 \mu m$, [Zhu et al., 2018] ont obtenu un accord modèle-mesure un peu meilleur que notre étude. La raison de cette différence de résultats n'est pas claire à ce jour au vu de l'utilisation de codes et formalismes censés être les mêmes et des tests de sensibilité seraient nécessaires (vérification des calculs des rayons humides avec le formalisme de [Tabazadeh et al., 1997], utilisation des mêmes versions de CESM1 et des mêmes paramètres d'injection). [Zhu et al., 2018] ne montrent malheureusement pas leurs résultats de simulation pour le cas observé par LOAC du 19 mai 2015, ce qui aurait permis d'analyser la façon dont l'évolution microphysique des aérosols du Calbuco est modélisée dans leur étude.

A noter que les distributions simulées avec WACCM-CARMA pour des tailles inférieures à $0,06 \mu m$ (Figures 4.15 (c),(d)) et 4.16 montrent des valeurs très supérieures aux conditions de fond (non présenté ici mais dans [Zhu et al., 2018]), reflétant les processus de nucléation des aérosols d'acide sulfurique aux tropiques pour lesquels le site de la Réunion présente un intérêt clair.

Comparaisons avec mesures lidar sol

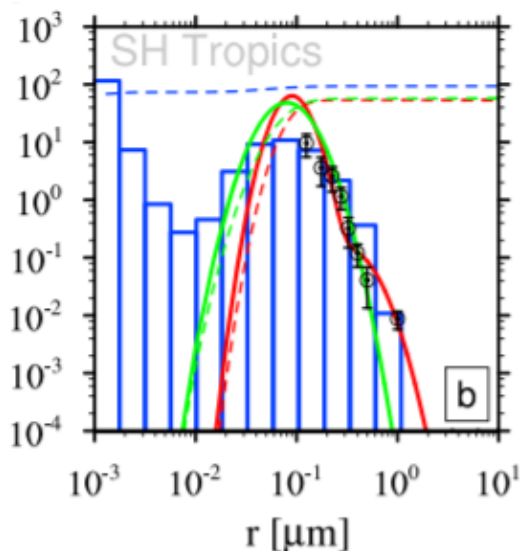


FIGURE 4.16 – Distributions en taille simulées par [Zhu et al., 2018] avec WACCM-CARMA (histogramme bleu) le 19 août 2015 au point de grille 21°S- 55°E à 20 km et comparées aux observations LOAC le même jour depuis la Réunion (cercles noirs). Les distributions en trait plein correspondent aux a priori utilisés dans le traitement des données spatiales OMPS (rouge) et OSIRIS (vert).

L'évolution locale de l'épaisseur optique intégrée entre 17 et 30 km sur le site de l'Observatoire du Maïdo (20,5°S ; 55,5°E) de l'île de la Réunion entre le 1^{er} avril 2014 et le 1^{er} janvier 2017 est présentée sur la Figure 4.17. Les observations lidar à La Réunion et celles du satellite OMPS dans une grille de 10°x 10° de latitude et de longitude autour du site lidar sont comparées aux résultats du modèle. La conversion des longueurs d'onde de 675 nm et 532 nm a été effectuée en utilisant les exposants d'Angström [Jäger and Deshler, 2002], de manière similaire à [Bègue et al., 2017].

Une forte augmentation de la charge en aérosols stratosphériques a été observée au-dessus de la Réunion quelques semaines après l'éruption de Calbuco (vers le 400 ème jour). Les pics de valeurs SAOD observées sont d'un facteur 2-3 par rapport au début de 2014 et d'un facteur ≈ 4 par rapport à la fin de 2016. Globalement, un bon accord est observé entre les différents jeux de données en ce qui concerne l'occurrence du signal maximal du Calbuco au-dessus de la Réunion et la tendance à la décroissance. À la fin de 2016, la teneur en aérosols semblait revenir à des conditions de fond, ce que les différents ensembles de données montrent. L'importante variabilité à court terme (c'est-à-dire quotidienne ; Figure 4.17 (a))

des observations lidar et des sorties du modèle reflète un comportement transitoire des couches d'aérosols au-dessus de l'île de la Réunion et une distribution spatio-temporelle inhomogène du panache de Calbuco contrôlée par les fluctuations de la barrière dynamique subtropicale [Bègue et al., 2017]. Ceci peut expliquer les différences entre le modèle et les observations in situ dans la Figure 4.11. Certaines périodes montrent des divergences en termes de valeurs absolues de SAOD, le modèle ayant tendance à surestimer les SAOD observées autour du jour 300, et entre 400 et 700 jours après l'éruption, ce qui est particulièrement visible sur les moyennes mensuelles de la Figure 4.17 (b). À la période des premières observations in situ par LOAC (autour du jour 414), les simulations et les autres ensembles de données montrent une SAOD très variable reflétant la présence de couches transitoires (avec de possibles structures filamentaires) mises en évidence par [Bègue et al., 2017].

Pendant la période précédant l'éruption de Calbuco, le contenu en aérosols a montré une plus grande variabilité et des niveaux plus élevés que fin 2016, sans doute en raison d'une signature demeurante des aérosols du Kelud, estimée à $3 \cdot 10^{-3}$ à partir des anomalies OMPS moyennées zonalement (Figures 4.11 et 4.12) pour les jours 0-200, c'est-à-dire proche des valeurs de fond de $4 \cdot 10^{-3}$ indiquées pour le jour 1000. Les divergences entre OMPS et les autres ensembles de données sur les échelles de temps cour-terme (Figure 4.17 (a)) sont sans doute multiples mais peuvent s'expliquer en partie par la différence de zone géographique utilisée pour calculer la SAOD. De plus, les différences en termes de résolutions horizontale et verticale notamment entre le lidar sol du Maïdo et OMPS constituent une des causes probables de ces divergences. La résolution verticale d'OMPS est 10 fois plus faible que celle du lidar sol, à 1,5 et 0,15 *km* respectivement. Contrairement aux observations globales d'OMPS, le système lidar au sol permet d'observer les aérosols à un endroit spécifique. OMPS observe le limbe de la Terre en regardant vers l'arrière le long de la trajectoire de l'orbite avec une résolution horizontale de 50 *km*. Il est donc difficile pour OMPS de détecter avec précision de petites quantités d'aérosols en un point local avec ces faibles résolutions verticale et horizontale et le faible signal pour chaque profil individuel inhérent aux techniques de

télé-détection au limbe (contrairement à un instrument tel SAGE III qui utilise un pointage solaire). De son côté, le modèle WACCM-CARMA a une résolution typique de celle utilisée pour les modèles globaux, bien loin de ce qui est utilisé pour les modèles régionaux. Ces problèmes reflètent la difficulté de comparer des jeux de données aux caractéristiques (échantillonnage spatio-temporel, rapport signal-sur-bruit, résolution spatiale) très différentes surtout pour étudier un panache d'aérosol susceptible d'être réparti de manière inhomogène spatialement, avec des bouffées d'aérosols ou des structures filamentaires par ailleurs pas forcément simulées par un modèle global, ce qui est particulièrement le cas aux stades jeunes des panaches volcaniques stratosphériques.

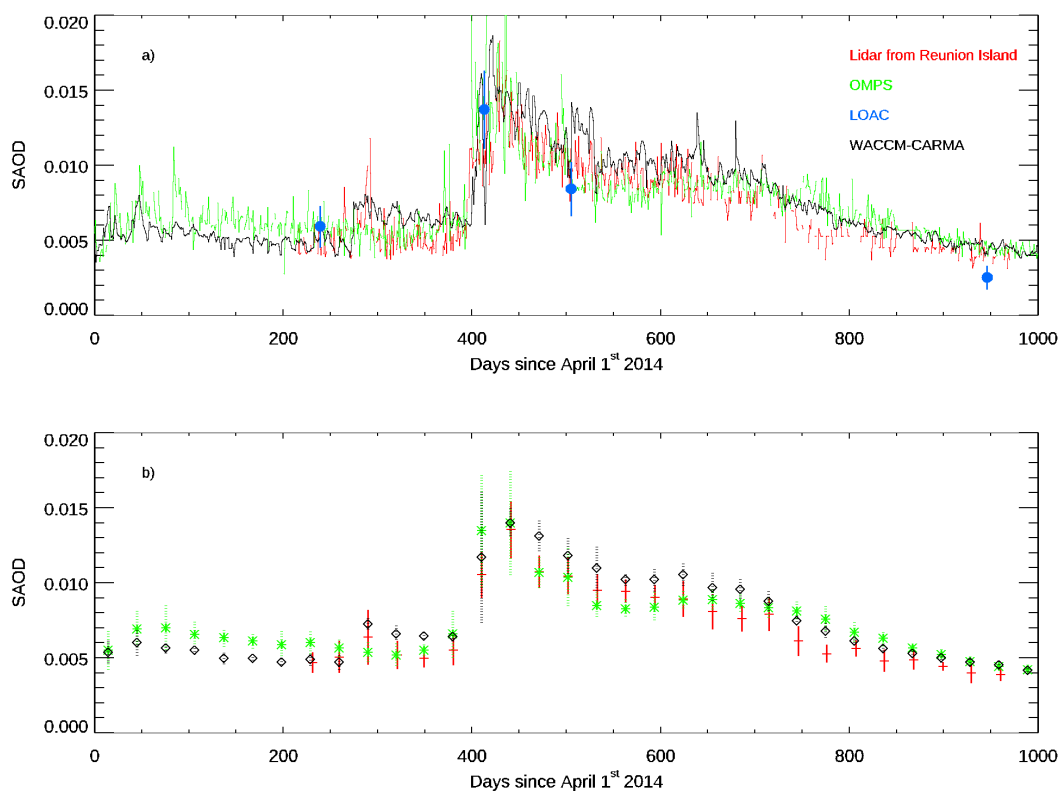


FIGURE 4.17 – Evolution temporelle de SAOD entre 17 et 30 km à 532 nm entre le 1^{er} avril 2014 et le 1^{er} janvier 2017 au-dessus de l'île de la Réunion en (a) moyenne journalière et (b) moyenne mensuelle. Les observations moyennées quotidiennement par le lidar au sol de l'Observatoire du Maïdo (rouge), OMPS (vert) et LOAC (bleu) sont comparées à la simulation WACCM-CARMA (noir) à 12 :00 TU prise au point de grille le plus proche du site lidar. Les données OMPS ont été moyennées dans une grille de $\pm 10^\circ$ de latitude et de longitude autour de La Réunion.

4.2.3.5 Cas du Ambae

Le cas du panache de l'Ambae présente, en moyenne sur la période post-injection, les différences les plus importantes entre WACCM-CARMA et OMPS en terme de SAOD (Figure 4.10 (c)), avec une différence moyenne entre WACCM-CARMA et OMPS de $4,3 \pm 2,8 \cdot 10^{-3}$ pour la période allant de la date de l'éruption au 31 décembre 2018 et le modèle surestimant globalement les mesures de SAOD de 200%.

Les différences modèle-observation sont très prononcées pour l'éruption d'Ambae à la fois pour les phases de formation et de dissipation du panache d'aérosols. Le modèle WACCM-CARMA montre des valeurs d'extinction et de SAOD beaucoup plus fortes (Figures 4.11 et 4.12). Un certain transport des latitudes tropicales vers le SH du panache d'aérosols d'Ambae est simulé par le modèle (Figure 4.11 (c)). Cependant, comme pour le cas Kelud, cela est moins clair dans les anomalies observées par l'OMPS.

Les résultats pour cet événement spécifique peuvent refléter de la connaissance inexacte de la charge en SO_2 injectée (comme le montre la comparaison avec IASI dans la Figure 4.9) ainsi que du moment et de l'altitude de l'injection pour une éruption qui n'a pas été largement documentée, si ce n'est au moins dans [Kloss et al., 2020].

Mesures in situ

Depuis 2015, les campagnes du projet Batal en saison de mousson sont menées depuis la base de lancement de ballons située aux latitudes tropicales, à Hyderabad ($17,5^\circ N$; $78,6^\circ E$) en Inde [Vernier et al., 2018]. Ces observations ont pour objectif l'étude de la couche ATAL en termes de propriétés microphysiques (distributions en tailles) et chimiques (analyses de composition d'échantillons d'aérosols collectés), les mécanismes d'évolution et leurs liens avec les mécanismes de transport (convection, transport depuis des sources lointaines). L'ATAL se retrouve piégée au sein de l'anticyclone de la mousson asiatique (nommé AMA), situé au niveau de la haute troposphère et basse stratosphère [Vernier et al., 2011a], ce qui a tendance à isoler des masses d'air extérieures à la barrière de l'AMA marquée par des gradients de vortacité potentielle significatifs. Cependant, ces gradients

ne sont pas suffisamment forts et constants toute la saison ce qui laisse pénétrer des masses d'air extérieures susceptibles de se mélanger à l'ATAL, notamment des panaches de fumées [Kloss et al., 2019] ou volcaniques [Wu et al., 2017], et ce d'autant plus favorablement en dehors de la zone du cœur de l'AMA. La position d'Hyderabad étant au sud du cœur de l'AMA semble plus encline à permettre l'observation de tels épisodes.

Un an après son éruption du 27 juillet 2018, le panache de l'Ambae a pu être observé dans la région de l'AMA [Kloss et al., 2020]. La Figure 4.18 montre l'influence des aérosols volcaniques dans la zone de Hyderabad d'octobre 2018 à juillet 2019. On a donc une période de 2 mois minimum pour que le panache soit transporté au-dessus de ce site et une signature persistante en juillet 2019 entre 18 et 24 km (à la résolution de OMPS près).

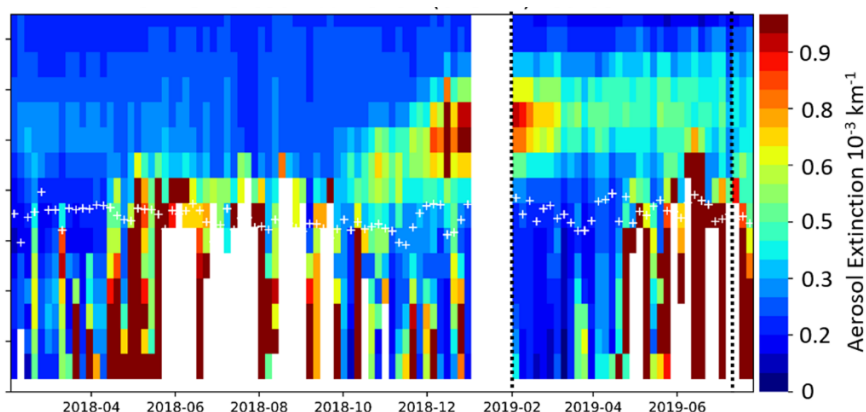


FIGURE 4.18 – Mesures de l'extinction des aérosols par OMPS (à 675 nm), moyennées sur la région 17-21°N ; 76-82°E (autour du site de Hyderabad en Inde) et sur 5 jours. Les lignes verticales en pointillés noirs représentent les dates de campagnes de mesures in situ sous ballons depuis Hyderabad en février 2018 et juillet 2019 dans le cadre du projet BATAL. Les signes plus blancs représentent l'altitude moyenne de la tropopause pour les moyennes des profils. D'après [Kloss et al., 2020]

Différentes mesures du compteur d'aérosols POPS dans le cadre de la campagne BATAL de juillet 2019 ont été effectués depuis Hyderabad. Les profils de concentrations totaux (pour des tailles $\geq 0,15 \mu m$) comparés aux résultats de WACCM-CARMA pour les simulations avec et sans aérosols volcaniques sont présentés sur la Figure 19. Les mesures POPS du 18 juillet 2019 montrent une couche épaisse d'aérosols stratosphériques au-dessus de 16 km avec maximum de concentration

vers 19 *km* (Figure 4.19 (a)). Cette couche peut être attribuée aux aérosols de l’Ambae si on se fie à l’augmentation de concentrations modélisée par WACCM-CARMA par rapport à la simulation de référence sans injection volcanique. La couche volcanique simulée est clairement moins étendue verticalement que sur le profil mesuré mais de manière intéressante, WACCM-CARMA simule des valeurs de concentrations maximales très similaires aux observations.

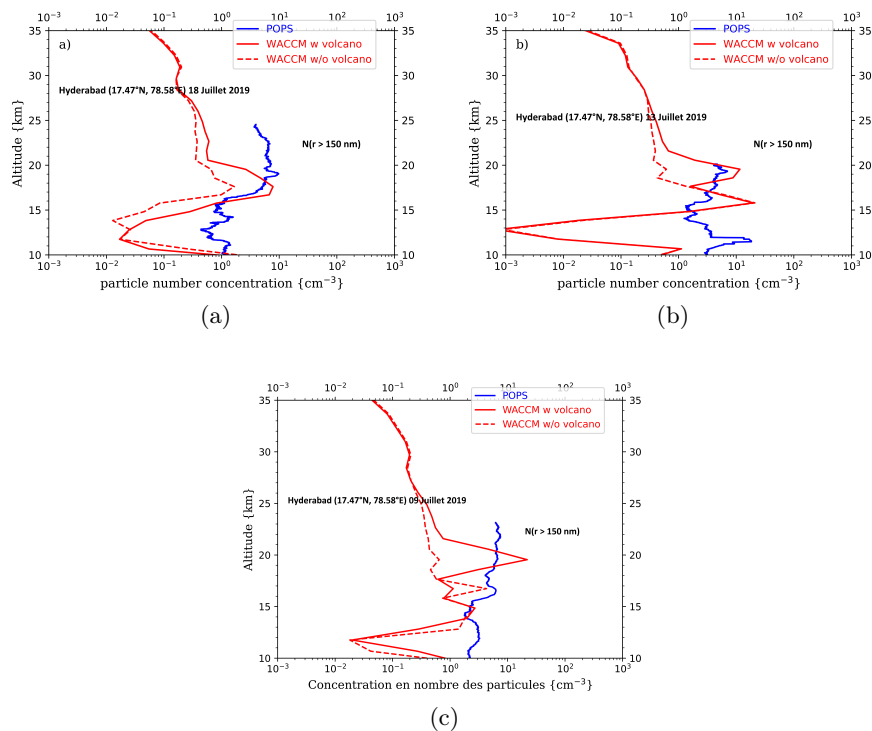


FIGURE 4.19 – Profils de concentration totale en nombre de particules (pour des tailles $\geq 0,15 \mu m$) obtenus lors de vols en ballon depuis Hyderabad les 09, 13 et 17 juillet 2019. Les résultats de simulation par le modèle WACCM-CARMA au point de grille le plus proche (rouge) issus des simulations avec et sans aérosols volcaniques sont présentés respectivement en traits pleins et tirets. La tropopause se situe entre 16 et 17 *km*.

Les 2 autres vols ballons ne sont pas allés suffisamment haut en altitude pour couvrir la couche de particules dans son ensemble comme pour le cas du 18 juillet mais confirment des valeurs de concentrations élevées et de même amplitude. Sur la Figure 4.10 (c), on constate que pour un panache plus âgé, la différence entre les SAOD modélisées par WACCM-CARMA et observées par OMPS se réduit significativement avec le temps ce qui peut expliquer en partie pourquoi les simulations et mesures in situ sont en accord en terme de contenu en particules. La couche

ATAL dont le maximum se localise en moyenne plus bas (16-18 *km*), est en général plus fine [Vernier et al., 2018] et s'avère diluée pour le cas du 18 juillet. Cependant, elle pourrait être bien présente à 16 *km* pour les cas des 9 et 13 juillet dans les résultats du modèle WACCM-CARMA (même si partiellement représentative de la réalité dans la mesure où seules les émissions de soufre sont considérées dans ce modèle contrairement au travail de [Bossolasco et al., 2021] et dans les observations in situ avec une amplitude bien plus restreinte. Ces résultats traduisent d'un certain caractère transitoire des couches contenant les aérosols volcaniques dans cette région, avec une répartition verticale variable à court-terme, alors que pour un panache âgé l'on attendait plutôt à un panache géographiquement homogénéisé à ce stade de son évolution. Dans cette thèse, nous n'avons pas poussé le travail plus loin concernant l'ATAL et ses interactions avec les aérosols volcaniques.

4.2.3.6 Cas du Raikoke et du Ulawun

L'éruption du Raikoke a été signalé comme le plus grand événement volcanique depuis l'éruption du Mont Pinatubo en 1991 en termes de contenu en aérosols produit dans la stratosphère (même si celle du Nabro en 2011 peut être comparable). La Figure 4.20 montre que le panache s'est principalement étendu dans les moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère nord mais une partie a été transportée vers les tropiques. Les deux éruptions tropicales d'Ulawun se sont produites à peu près à la même période et leur signal dans la bande de latitude 20°S-20°N ne peut pas être distingué de celui du Raikoke sur une vue zonale de l'extinction, à la fois dans les données satellite OMPS et les résultats du modèle WACCM-CARMA (Figure 4.12). La Figure 4.11 confirme le schéma de propagation du panache de Raikoke des latitudes moyennes vers les tropiques et le mélange ultérieur de tous les panaches volcaniques. Pour la période précédant l'éruption du Raikoke, le signal simulé est plus élevé que le signal de fond, certainement en raison des aérosols restants de l'Ambae (Figure 4.10 (d),(e)).

Des différences significatives sont observées entre OMPS et WACCM-CARMA pour les valeurs d'extinction (Figure 4.12 (a) et 4.12 (b) et pour l'évolution spatio-temporelle des panaches (4.10 (d) et 4.10 (e)). Les SAOD simulées ont tendance à

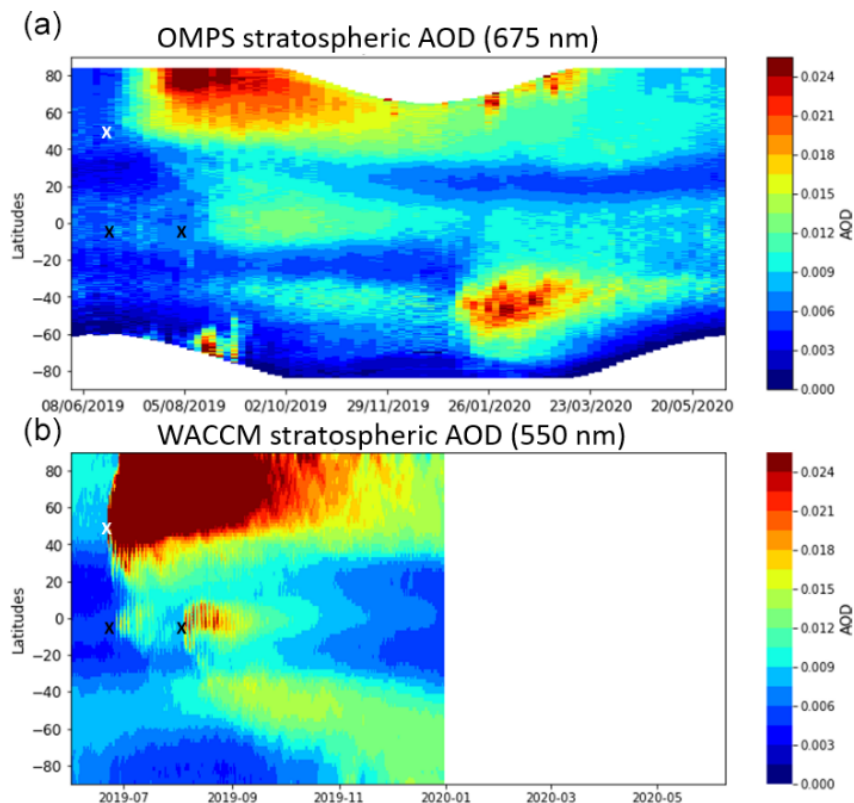


FIGURE 4.20 – Epaisseur optique en fonction du temps et de la latitude observée par OMPS à 675 nm (a) et simulée par WACCM-CARMA à 550 nm (b). La simulation est présentée ici en terme d’aérosols « secs » c’est-à-dire sans calcul de la condensation de l’eau sur les gouttelettes d’acide sulfurique afin de s’affranchir du signal des PSC du vortex antarctique. La SAOD est ici calculée entre 1 km au-dessus de la tropopause et jusqu’à 30 km . Les croix désignent la position et la date des éruptions du Raikoke (en blanc) et du Ulawun (en noir). Issu de [Kloss et al., 2021]

augmenter plus rapidement pointant vers une formation plus forte et plus rapide des aérosols d’acide sulfurique dans le modèle, et présentent une décroissance plus lente. Des différences moyennes de $8,8 \pm 5,010^{-3}$ et $6,8 \pm 2,910^{-3}$ sont calculées entre WACCM-CARMA et OMPS pour la période suivant l’injection de soufre pour Raikoke dans le NH (Figure 4.10 (d)) et Raikoke+Ulawun dans les tropiques (Figure 4.10 (e)) respectivement. Cela se traduit par des différences dans les temps de résidence du SO_2 (table 4.2).

Même si aucun vol de compteur d’aérosols du LPC2E n’a été conduit depuis l’île de la Réunion sur la période impactée par les éruptions du Raikoke et de l’Ulawun, nous disposons en revanche de mesures in situ avec la version améliorée de LOAC (v1.5) aux moyennes latitudes depuis le site de la société MeteoModem à Ury

(8,3°N ; 2,6°E). Des vols sur l'année 2019 ont été effectués dans le but d'observer le panache du Raikoke et son évolution. Les résultats sont montrés sur la Figure 4.21. Le vol du 22 mars 2019 (Figure 4.21 (a)) est une opportunité de comparer les sorties du modèle avec les observations en conditions pré-éruption du Raikoke mais pas tout à fait en conditions non-volcaniques du fait que l'hémisphère nord était encore quelque peu influencé par les aérosols de l'Ambae, en tout cas dans la simulation WACCM-CARMA (Figure 4.10 (c)). La Figure 4.10 (a) confirme cette influence demeurante au vu de la différence d'un facteur 1,5 entre profil modélisé sans et avec injections volcaniques. A partir du 29 août, le modèle montre une signature du panache du Raikoke jusqu'à 24 km et tend à surestimer les valeurs de concentrations observées à mesure que le panache vieillit. Cela confirme les résultats des Figures 4.10 d et Figure 4.21 qui montrent un panache modélisé dont le contenu reste longtemps plus important que dans les observations satellites. Globalement, les comparaisons en situation de fond (aux altitudes au-dessus du panache) présentent des différences plutôt aléatoires entre le modèle et la mesure in situ d'un vol à l'autre (un profil sur deux présente des accords satisfaisants) rendant compliqué de tirer des conclusions définitives sur la pertinence des simulations en conditions non perturbées.

Des tests de sensibilité ont été effectués pour étudier les raisons des divergences modèle-OMPS pour le panache de Raikoke. Le fait de modifier l'altitude et le moment de l'injection dans la configuration du modèle ne réduit pas de manière significative les différences dans le contenu des aérosols, le modèle calculant toujours une production d'aérosols plus rapide pendant les semaines suivant l'éruption (non présenté ici). L'injection de 1,5 Tg de SO_2 semble être une valeur correcte parmi les diverses études publiées et en cours concernant cette éruption [De Leeuw et al., 2021]; et voir l'initiative VolRes). Comme nous l'avons vu pour l'éruption de Kelud, la présence collatérale de cendres devrait diminuer la durée de vie du SO_2 ainsi que les valeurs maximales de SAOD. La différence entre profils de SO_2 de IASI et de WACCM-CARMA serait accrue due à une action chimique et microphysique des cendres dont la présence n'explique donc pas de manière satisfaisante la divergence entre OMPS et le modèle pour l'extinction des

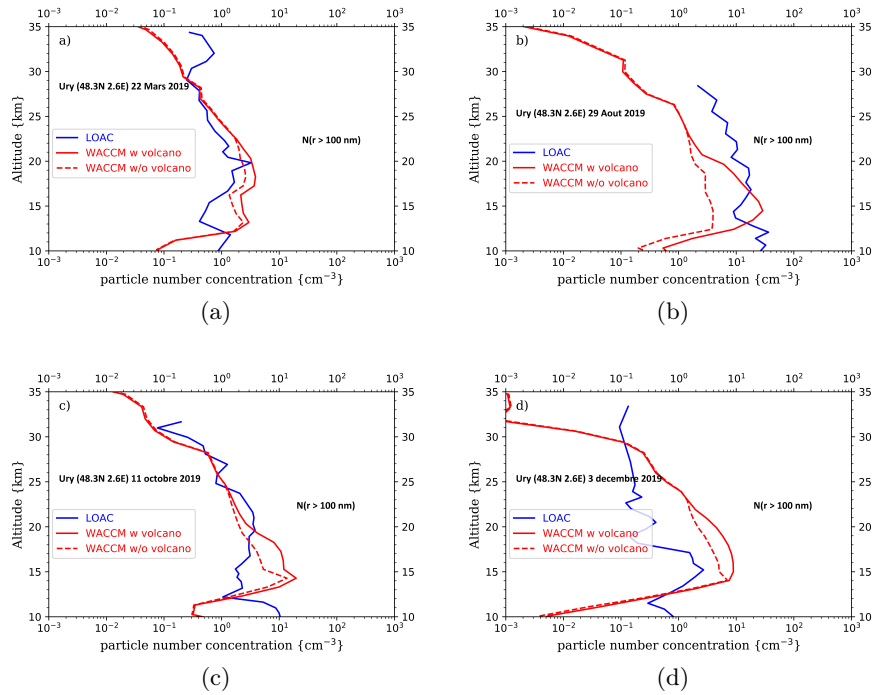


FIGURE 4.21 – Profils de concentration en nombre de particules obtenus par LOAC lors de vols ballon depuis le site de la société MeteoModem à Ury (48,3°N; 2,6°E) près de Fontainebleau les 22 mars, 29 août, 11 octobre et 3 décembre 2019 (bleu). Les profils simulés par le modèle WACCM-CARMA au point de grille le plus proche avec et sans aérosols volcaniques sont présentés respectivement en traits pleins et tirets rouges. Les concentrations sont indiquées pour les particules avec des rayons $r > 0,10 \mu m$. La tropopause se situe en général entre 12 et 14 km .

aérosols et le SAOD, du moins dans la configuration de notre modèle. Cependant, [Muser et al., 2020] ont montré que les interactions aérosol-rayonnement en présence de cendres ont eu un impact sur la dispersion du panache de Raikoke. Ce processus aurait favorisé l’élévation du panache quelques jours après l’éruption, plus haut que ce qui est simulé par le modèle, surtout si des particules de fumée provenant d’incendie de forêts étaient simultanément présentes. Par conséquent, nous ne pouvons pas exclure des problèmes dans le calcul du transport par le modèle si les particules de cendres ne sont pas prises en compte. Cela suggère peut-être que notre profil vertical d’injection n’est pas adéquat.

Enfin, une injection d’eau dans la stratosphère par le volcan Raikoke peut avoir augmenté la production de OH et ensuite réduit la durée de vie du SO_2 , mais en renforçant une fois de plus la différence modèle-IASI. Cette hypothèse n’est peut-être pas plausible car de grandes quantités d’eau injectées seraient nécessaires pour

réduire de manière significative le contenu en aérosols sulfatés, comme cela a été testé pour l'éruption de Kelud [Zhu et al., 2020]. La raison de la divergence modèle-observation pour le cas du Raikoke reste à déterminer. Pour le cas de l'Ulawun, nous soupçonnons fortement que les informations sur les paramètres d'injection (quantité de SO_2 , altitude, moment de l'injection) ne sont pas suffisamment précises.

4.2.4 Bilan du chapitre

Dans ce chapitre nous avons montré que les observations spatiales sont utiles aux études de modélisation de manière duale, c'est-à-dire que certaines (IASI dans le cadre de notre étude ou d'autres présentées dans la littérature) permettent d'initialiser les simulations et d'autres (OMPS) de les évaluer. Au travers de comparaisons, ces données satellites permettent une évaluation macroscopique du modèle sans sa capacité à représenter les processus liés aux injections volcaniques aux larges échelles spatio-temporelles : contenu et évolution des aérosols et du précurseur SO_2 , transports hémisphériques et méridiens. De manière complémentaire, ce travail de thèse a pu bénéficier d'un certain nombre d'observations in situ sous ballons, majoritairement propres au LPC2E, pour évaluer les capacités du modèle global à simuler les panaches volcaniques de manière plus fine. Ces données sont uniques dans la communauté scientifique de par la possibilité de réactivité de lancement sous ballons météorologiques (LOAC et POPS) qui a permis de répondre par l'observation aux injections volcaniques sur la période considérée ici et le nombre important de cas d'étude aux latitudes tropicales trop peu couvertes par ce type de mesures. Elles permettent une évaluation du modèle au-delà de paramètres intégrés ou nécessitant des hypothèses a priori que sont l'extinction ou l'épaisseur optique typiquement fournies par les données satellites : concentrations, distributions en taille. Tous ces paramètres sont particulièrement importants si l'on veut de manière la plus pertinente possible estimer les impacts radiatifs (climat) et chimiques (couche d'ozone) des aérosols stratosphériques avec les modèles de chimie-climat.

Discussion générale et Conclusion

Le thème principal de cette thèse porte sur l'étude des aérosols dans l'UTLS sous l'influence des éruptions volcaniques de la dernière décennie à partir de différents jeux d'observations et de travaux de modélisation. Le but scientifique est de quantifier l'influence de ces événements sur la variabilité du contenu en aérosols dans l'UTLS tout en testant la capacité d'un modèle global à reproduire ces impacts, avec un focus sur les latitudes tropicales moins couvertes par les observations notamment in situ et au sol. En nous basant sur les travaux publiés dans la littérature scientifique, notamment pour les plus récents par l'équipe SAMPLE du LPC2E dans laquelle s'inscrit cette thèse, nous avons identifié cinq volcans avec des éruptions d'amplitude modérée qui ont eu un impact sur la charge d'aérosols stratosphériques dans les tropiques au cours de la période 2013-2019, dépassant largement le signal des aérosols stratosphériques dans des conditions non perturbées dites « de fond ». Des simulations avec le modèle de chimie-climat CESM1(WACCM) -CARMA ont été utilisées pour étudier l'évolution et les caractéristiques de transport des panaches de sulfate produits par les injections de SO_2 directement dans l'UTLS. Ce modèle communautaire, développé à l'université du Colorado et au NCAR, est disponible au LPC2E depuis 2015. Les résultats principaux de ces simulations comparées aux observations sont présentés dans le manuscrit Tidiga et al. (2021), Variability of the aerosol content in the tropical lower stratosphere from 2013 to 2019, soumis à la revue Atmosphere. Trois de ces volcans (Kelud en 2014, Ambae en 2018 et Ulawun en 2019) ont directement injecté du matériel dans la stratosphère tropicale tandis que deux autres (Calbuco en 2015 et Raikoke en 2019) sont localisés dans des latitudes extra-tropicales avec du matériel transporté ensuite vers les tropiques. Les paramètres d'injection du

modèle sont issus des informations disponibles dans la littérature ou dans les communications scientifiques en termes de charge en SO_2 , de profil d'altitude et de moment de l'injection.

Le modèle reproduit assez bien la plupart des pics de SO_2 même si on observe une décroissance plus rapide du profil de SO_2 simulé, une caractéristique déjà observée pour le panache des latitudes moyennes du Sarychev en 2009 [Haywood et al., 2010, Lurton et al., 2018]. Les auteurs, citehaywood2010observations et [Lurton et al., 2018] avaient lié ce phénomène à la faible résolution du modèle qui induit une plus grande dispersion du transport du panache de SO_2 dans les de grille du modèle. Dans le cadre d'une collaboration avec Lieven Clarisse (ULB, Belgique), nous avons utilisé le nouvel algorithme IASI de détection du SO_2 , pour la première fois dans une étude scientifique sur les panaches volcaniques dans la stratosphère (Tidiga et al., 2021). Le seuil de détection du SO_2 du nouvel algorithme IASI est estimé à environ 0,1 DU, c'est-à-dire inférieur à la valeur de 0,3 DU utilisée dans les anciennes études de [Haywood et al., 2010] et [Lurton et al., 2018]. L'ajustement des sorties du modèle WACCM-CARMA au seuil de 0,1 DU SO_2 de IASI conduit clairement à une décroissance plus rapide des colonnes de SO_2 pour toutes les éruptions et réduit les temps e-folding associés, sans toutefois correspondre de manière robuste à l'évolution observée du SO_2 , sauf pour le cas du Kelud. L'ajustement à un seuil de 0,3 DU SO_2 conduit à une décroissance encore plus rapide du profil simulé, conduisant à une sous-estimation par le modèle. La comparaison pour le panache du Raikoke montre un comportement différent, le modèle diminuant plus rapidement dans tous les cas. Les amplitudes simulées et observées des pics de SO_2 ne correspondent pas parfaitement pour certaines éruptions (en particulier pour l'Am-bae et l'Ulawun), probablement en raison d'informations imprécises voire inexactes disponibles dans la littérature. Enfin, les différents temps de résidence des éruptions peuvent indiquer une dépendance de la durée de vie du SO_2 à la latitude d'injection d'après [Carn et al., 2016]. Bien que les simulations WACCM-CARMA tendent à reproduire les observations de l'instrument satellite OMPS pour l'étendue spatiale des panaches (en moyenne zonale), des différences significatives sont montrées en termes de valeurs absolues de contenu en aérosols (extinction et SAOD), en par-

ticulier pour les éruptions Ambae, Raikoke et Ulawun, indiquant à nouveau que les informations sur les paramètres d'injection disponibles pour certaines de ces éruptions devraient être reconsidérées.

Les divergences entre les simulations et les mesures sont susceptibles de provenir de différentes sources d'incertitudes liées à l'interaction complexe entre les paramètres d'injection, la dynamique et la chimie spécifique à chaque panache. La connaissance du moment de l'injection (surtout si l'éruption est caractérisée par une série d'impulsions, c'est-à-dire des injections multiples) et des profils des altitudes d'injection utilisés pour initialiser le modèle est d'une grande importance pour la durée de vie du SO_2 et l'évolution du panache d'aérosol. Cependant, les altitudes d'injection de SO_2 sont susceptibles de différer entre les diverses observations satellitaires [Kloss et al., 2021] en raison d'une résolution verticale insuffisante pour déterminer la distribution de masse du SO_2 par rapport à la tropopause. L'étendue horizontale de l'injection de SO_2 peut être un facteur limitant la capacité du modèle à correspondre aux observations et la résolution horizontale plus grossière du modèle peut conduire à une structure anormale du panache de sulfate. Alors que nous avons choisi d'injecter le soufre sur un point de grille donné du modèle (le plus proche de l'emplacement du volcan), [Zhu et al., 2020] ont réparti l'injection sur une bande latitude-longitude donnée afin de capturer un cisaillement de vent suffisant pour prendre en compte les structures horizontales de SO_2 observés par l'instrument satellite (en l'occurrence TROPOMI dans leur étude). Cette configuration, ainsi que l'augmentation de la résolution horizontale des simulations, pourraient être testées à l'avenir. Une autre façon d'améliorer l'initialisation du modèle serait d'utiliser les profils résolus verticalement de SO_2 reconstruits par la combinaison des observations spatiales de la colonne de SO_2 et des profils verticaux d'aérosols (provenant de CALIOP) en utilisant [Heng et al., 2016]. Enfin, l'utilisation de WACCM-CARMA en mode libre avec différents facteurs de pondération vers différentes analyses ou réanalyses opérationnelles (par ex. MERRA2, ERA-5, JRA-55) qui ont montré certaines divergences dans la représentation des vents stratosphériques [Kawatani et al., 2016, Long et al., 2017, Hoffmann et al., 2019] pourraient être des tests intéressants pour étudier la capacité du modèle à simuler

le transport stratosphérique et l'impact sur la dynamique du panache volcanique (étalement hémisphérique, transport méridional vers les tropiques, mouvement vertical entraîné par la circulation de Brewer-Dobson, effets des barrières dynamiques et de la QBO, phase etc.).

Les comparaisons des sorties du modèle avec les observations in situ montrent des résultats contrastés et peuvent illustrer des problèmes liés aux résolutions horizontales et verticales différentes entre les ensembles de données. Un bon accord est obtenu avec les sondes de rétrodiffusion COBALD (extinction) et le WOPC (concentrations) dans les couches impactées par le panache Kelud. Pour les aérosols du Calbuco, de fortes différences sont montrées entre les simulations de WACCM et les mesures OPC du LOAC à un stade précoce de la propagation du panache (≈ 4 semaines après l'injection initiale) alors qu'un bon accord est observé à la période où le panache s'est propagé dans tout l'hémisphère sud (≈ 4 mois après). Ce résultat, également reflété dans les comparaisons avec les observations lidar de l'île de la Réunion, illustre la difficulté d'un modèle global à simuler des structures d'aérosols transitoires à une échelle plus locale. Les différences d'altitude maximale entre le modèle et les données in situ peuvent être causées par la résolution verticale du modèle qui est de ≈ 1 km dans la stratosphère ainsi que par l'imprécision des paramètres d'injection. Pour les niveaux d'altitude exempts d'influence volcanique, le modèle tend à montrer des divergences significatives (même si pas systématiques) avec les concentrations observées in situ, ce qui démontre la difficulté du modèle à simuler le contenu de l'aérosol "de fond" dans le mode d'accumulation, alors que les comparaisons utilisant des paramètres intégrant l'ensemble du spectre de taille de l'aérosol (comme les concentrations totales et l'extinction) montrent de manière intéressante un bon accord. La simulation plus fine de la microphysique peut être examinée à partir des distributions en taille et les comparaisons avec LOAC montrent clairement des divergences si l'on considère l'ensemble du spectre de taille. Cela dit, au final, l'inconvénient des mesures in situ est qu'elles ne permettent des comparaisons qu'en un seul point de grille et nécessitent d'être répétées pour une évaluation statistiquement significative du modèle global. Dans ce travail de thèse, ces comparaisons ont été multipliées (pour différents panaches,

à différents stades d'évolution) mais révèlent des résultats disparates, avec de bons accords ou des différences significatives d'un vol à l'autre, qui plus est avec des instruments aux spécificités et performances différentes voire évolutives (cf par exemple la transition de LOAC v1.2 vers v1.5), rendant complexe les conclusions dont on peut tirer d'une telle forme d'évaluation entre mesures locales et modèle grande échelle.

La co-injection de cendres est susceptible de jouer un rôle important dans la production d'aérosols et l'évolution du panache en absorbant du SO_2 [Zhu et al., 2020]. La présence de cendres a été signalée pour l'éruption du Kelud [Vernier et al., 2016, Zhu et al., 2020] et pourrait expliquer pourquoi les sorties WACCM-CARMA surestiment la SAOD au cours des premières semaines après l'émission (si l'on suppose que les paramètres d'injection utilisés pour piloter la simulation sont corrects). En ce qui concerne le panache du Raikoke, certaines preuves de la présence de cendres ont été récemment mises en évidence [De Leeuw et al., 2021, Muser et al., 2020]. A la suite des travaux de [Zhu et al., 2020], il faudrait étudier l'effet des cendres du Raikoke sur l'évolution des aérosols simulés, bien que l'on puisse s'attendre à des différences accrues entre le SO_2 simulé et observé dans ce cas, ce qui souligne la spécificité de cette éruption. À ce stade, les contributions significatives des cendres des autres éruptions étudiées dans cette thèse n'ont pas encore été rapportées dans la littérature. L'interaction aérosol-rayonnement en présence de cendres et de particules de fumée optiquement absorbantes (régulièrement présentes simultanément en été dans l'UTLS) peut également être un facteur majeur de la dynamique du panache et doit être étudiée.

Enfin, ce travail de thèse met en évidence certaines difficultés pour nos simulations de modèles globaux à reproduire les panaches volcaniques pour diverses raisons proposées ci-dessus. L'étude de cas du panache du Sarychev de 2009 précédemment rapportée par [Lurton et al., 2018] en utilisant WACCM-CARMA a montré un bon accord avec les observations en utilisant une séquence d'injection simple, mais nos résultats tendent à indiquer que cette stratégie peut ne pas être appropriée pour chaque événement. La combinaison de diverses observations spatiales pour connaître l'ensemble de la séquence d'injection est un prérequis pour

piloter et évaluer de manière robuste les simulations du modèle. De plus, des observations in situ utilisant des ballons légers plus régulièrement conduits au cours des périodes impactées par les panaches volcaniques, en raison de leur grande flexibilité opérationnelle, seraient particulièrement précieuses pour évaluer le modèle en termes de processus microphysiques.

Les perspectives pour la suite de notre étude sont en particulier d'une part de faire des tests de sensibilité sur les paramètres d'injection pour chaque éruption volcanique et aussi d'évaluer l'impact radiatif associé. D'autre part, il s'agira de modifier le code microphysique de CARMA dans CESM1.2 pour prendre en compte l'impact des cendres et éventuellement des particules de fumée pour le cas de l'éruption spécifique du Raikoke et ensuite faire une comparaison entre cette éruption et le Calbuco, qui sont deux éruptions de latitude moyenne situées dans deux hémisphères différents. Nous avons déjà commencé à faire des tests de sensibilité notamment sur les paramètres d'injection de l'éruption de l'Ambae, à poursuivre les simulations sur l'année 2020 et à mener des calculs d'impacts radiatifs mais ces simulations n'ont pas pu être finalisées à temps dû à l'arrêt du calculateur Artemis de l'Observatoire des Sciences de l'Univers en région Centre (OSUC). Ces simulations, même si partielles, sont aujourd'hui perdues et donc à refaire. Les tentatives pour les reprendre sur le nouveau calculateur Leto sont restées vaines car les bibliothèques nécessaires au fonctionnement de CESM1.2 n'ont pas été correctement installées sur Leto. Cela a provoqué des erreurs énormes de compilation du modèle et des erreurs de version de bibliothèques qui n'ont pas pu trouver de solution à temps. Ce problème aurait pu être évité si le temps de migration de l'ancien vers le nouveau calculateur avait été plus adéquat pour nous permettre tester le modèle sur la nouvelle machine. Il faut aussi noter l'impact de la pandémie COVID sur les délais de livraison de nos disques de stockage ce qui a été un frein majeur aux différents tests de sensibilité que nous avons prévu de faire.

Publications

Les travaux menés au cours de cette thèse ont été publiés dans des conférences internationales ainsi que dans des revues internationales. Nous présentons ci-dessous une liste exhaustive de ces différentes publications.

Revues Internationales

- **Mariam Tidiga**, Gwenaël Berthet, Fabrice Jégou, Corinna Kloss, Nelson Bègue, Jean-Paul Vernier, Jean-Baptiste Renard, Adriana Bossolasco, Lieven Clarisse, Ghassan Taha, Thierry Portafaix, Sophie Godin-Beekmann, Guillaume Payen, Jean-Marc Metzger, Valentin Duflot, Nicolas Marques-taut. Variability of the aerosol content in the tropical lower stratosphere from 2013 to 2019 : evidence of volcanic eruption impacts
- Corinna Kloss, Gwenaël Berthet, Pasquale Sellitto, Felix Ploeger, Ghassan Taha, **Mariam Tidiga**, Maxim Eremenko, Adriana Bossolasco, Fabrice Jégou, Jean-Baptiste Renard, and Bernard Legras. Stratospheric aerosol layer perturbation caused by the 2019 Raikoke and Ulawun eruptions and their radiative forcing

Conférences Internationales

- **Mariam Tidiga**, Gwenaël Berthet, Fabrice Jégou, Adriana Bossolasco, Corinna Kloss, Nelson Bègue, Jean-Baptiste Renard, Jean-Paul Vernier, Lieven Clarisse, Ghassan Taha, Thierry Portafaix, Jean-Marc Metzger, et Guillaume Payen. Variability of the aerosol content in the tropical lower stratosphere from 2013 to 2019 as influenced by moderate volcanic eruptions, Présentation Orale à l'EGU General Assembly 2021.
- **Mariam Tidiga**, Gwenaël Berthet, Fabrice Jégou, Corinna Kloss, Adriana

Bossolasco et Nelson Begue. Variability of the aerosol content in the tropical lower stratosphere from 2013 to 2019 : impacts of volcanic eruptions, Présentation Orale à l'AGU Fall Meeting 2020.

Bibliographie

- [Andres and Kasgnoc, 1998] Andres, R. and Kasgnoc, A. (1998). A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D19) :25251–25261.
- [Arfeuille et al., 2014] Arfeuille, F., Weisenstein, D., Mack, H., Rozanov, E., Peter, T., and Brönnimann, S. (2014). Volcanic forcing for climate modeling : a new microphysics-based data set covering years 1600–present. *Climate of the Past*, 10(1) :359–375.
- [Atticks and Robinson, 1983] Atticks, M. and Robinson, G. (1983). Some features of the structure of the tropical tropopause. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 109(460) :295–308.
- [Ayers et al., 1980] Ayers, G., Gillett, R., and Gras, J. (1980). On the vapor pressure of sulfuric acid. *Geophysical Research Letters*, 7(6) :433–436.
- [Baldwin and Dunkerton, 2001] Baldwin, M. P. and Dunkerton, T. J. (2001). Stratospheric harbingers of anomalous weather regimes. *Science*, 294(5542) :581–584.
- [Bardeen et al., 2010] Bardeen, C., Toon, O., Jensen, E., Hervig, M., Randall, C., Benze, S., Marsh, D., and Merkel, A. (2010). Numerical simulations of the three-dimensional distribution of polar mesospheric clouds and comparisons with cloud imaging and particle size (cips) experiment and the solar occultation for ice experiment (sofie) observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D10).
- [Bardeen et al., 2008] Bardeen, C., Toon, O., Jensen, E., Marsh, D., and Harvey, V. (2008). Numerical simulations of the three-dimensional distribution of me-

- teoric dust in the mesosphere and upper stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D17).
- [Barth et al., 2000] Barth, M., Rasch, P., Kiehl, J., Benkovitz, C., and Schwartz, S. (2000). Sulfur chemistry in the national center for atmospheric research community climate model : Description, evaluation, features, and sensitivity to aqueous chemistry. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D1) :1387–1415.
- [Bauman et al., 2003] Bauman, J., Russell, P., Geller, M., and Hamill, P. (2003). A stratospheric aerosol climatology from sage ii and claes measurements : 2. results and comparisons, 1984–1999. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D13).
- [Baumgardner et al., 2004] Baumgardner, D., Kok, G., and Raga, G. (2004). Warming of the arctic lower stratosphere by light absorbing particles. *Geophysical Research Letters*, 31(6).
- [Bègue et al., 2017] Bègue, N., Vignelles, D., Berthet, G., Portafaix, T., Payen, G., Jégou, F., Bencherif, H., Jumelet, J., Vernier, J.-P., Lurton, T., et al. (2017). Long-range transport of stratospheric aerosols in the southern hemisphere following the 2015 calbuco eruption. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(24) :15019–15036.
- [Berthet et al., 2007] Berthet, G., Esler, J., and Haynes, P. (2007). A lagrangian perspective of the tropopause and the ventilation of the lowermost stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D18).
- [Berthet et al., 2017] Berthet, G., Jégou, F., Catoire, V., Krysztofiak, G., Renard, J.-B., Bourassa, A. E., Degenstein, D. A., Brogniez, C., Dorf, M., Kreycy, S., et al. (2017). Impact of a moderate volcanic eruption on chemistry in the lower stratosphere : balloon-borne observations and model calculations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(3) :2229–2253.
- [Bingen et al., 2004a] Bingen, C., Fussen, D., and Vanhellemont, F. (2004a). A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from sage ii data over the period 1984–2000 : 1. methodology and climatological observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D6).

- [Bingen et al., 2004b] Bingen, C., Fussen, D., and Vanhellemont, F. (2004b). A global climatology of stratospheric aerosol size distribution parameters derived from sage ii data over the period 1984–2000 : 2. reference data. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D6).
- [Blake and Kato, 1995] Blake, D. F. and Kato, K. (1995). Latitudinal distribution of black carbon soot in the upper troposphere and lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D4) :7195–7202.
- [Blake et al., 2004] Blake, N. J., Streets, D. G., Woo, J.-H., Simpson, I. J., Green, J., Meinardi, S., Kita, K., Atlas, E., Fuelberg, H. E., Sachse, G., et al. (2004). Carbonyl sulfide and carbon disulfide : Large-scale distributions over the western pacific and emissions from asia during trace-p. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D15).
- [Bohren and Huffman, 1983] Bohren, C. F. and Huffman, D. R. (1983). Absorption and scattering of. *Light by Small*.
- [Bond and Bergstrom, 2006] Bond, T. C. and Bergstrom, R. W. (2006). Light absorption by carbonaceous particles : An investigative review. *Aerosol science and technology*, 40(1) :27–67.
- [Bossolasco et al., 2021] Bossolasco, A., Jegou, F., Sellitto, P., Berthet, G., Kloss, C., and Legras, B. (2021). Global modeling studies of composition and decadal trends of the asian tropopause aerosol layer. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(4) :2745–2764.
- [Bourassa et al., 2008] Bourassa, A., Degenstein, D., and Llewellyn, E. (2008). Retrieval of stratospheric aerosol size information from osiris limb scattered sunlight spectra. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(21) :6375–6380.
- [Brasseur and Solomon, 2005] Brasseur, G. P. and Solomon, S. (2005). Dynamics and transport. *Aeronomy of the Middle Atmosphere : Chemistry and Physics of the Stratosphere and Mesosphere*, pages 51–149.
- [Buontempo et al., 2006] Buontempo, C., Cairo, F., Di Donfrancesco, G., Morbidini, R., Viterbini, M., and Adriani, A. (2006). Optical measurements of atmos-

- pheric particles from airborne platforms : in situ and remote sensing instruments for balloons and aircrafts. *Annals of Geophysics*, 49(1).
- [Butchart, 2014] Butchart, N. (2014). The brewer-dobson circulation. *Reviews of geophysics*, 52(2) :157–184.
- [Butchart and Remsberg, 1986] Butchart, N. and Remsberg, E. E. (1986). The area of the stratospheric polar vortex as a diagnostic for tracer transport on an isentropic surface. *Journal of Atmospheric Sciences*, 43(13) :1319–1339.
- [Canty et al., 2013] Canty, T., Mascioli, N., Smarte, M., and Salawitch, R. (2013). An empirical model of global climate—part 1 : A critical evaluation of volcanic cooling. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(8) :3997–4031.
- [Carn et al., 2016] Carn, S., Clarisse, L., and Prata, A. J. (2016). Multi-decadal satellite measurements of global volcanic degassing. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 311 :99–134.
- [Chan and Mozurkewich, 2001] Chan, T. W. and Mozurkewich, M. (2001). Measurement of the coagulation rate constant for sulphuric acid particles as a function of particle size.
- [Chen et al., 2020] Chen, Z., Bhartia, P. K., Torres, O., Jaross, G., Loughman, R., DeLand, M., Colarco, P., Damadeo, R., and Taha, G. (2020). Evaluation of the omps/lp stratospheric aerosol extinction product using sage iii/iss observations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 13(6) :3471–3485.
- [Chen et al., 2016] Chen, Z., DeLand, M., and Bhartia, P. K. (2016). A new algorithm for detecting cloud height using omps/lp measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(3) :1239–1246.
- [Chin and Davis, 1995] Chin, M. and Davis, D. (1995). A reanalysis of carbonyl sulfide as a source of stratospheric background sulfur aerosol. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D5) :8993–9005.
- [Chin et al., 2000] Chin, M., Rood, R. B., Lin, S.-J., Müller, J.-F., and Thompson, A. M. (2000). Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model gocart :

- Model description and global properties. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D20) :24671–24687.
- [Chu et al., 1989] Chu, W., McCormick, M., Lenoble, J., Brogniez, C., and Pruvost, P. (1989). Sage ii inversion algorithm. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94(D6) :8339–8351.
- [Clarisse et al., 2014] Clarisse, L., Coheur, P.-F., Theys, N., Hurtmans, D., and Clerbaux, C. (2014). The 2011 nabro eruption, a so 2 plume height analysis usingiasi measurements. *Atmospheric chemistry and physics*, 14(6) :3095–3111.
- [Clerbaux et al., 2009] Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., et al. (2009). Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrarediasi/metop sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16) :6041–6054.
- [Colella and Woodward, 1984] Colella, P. and Woodward, P. R. (1984). The piecewise parabolic method (ppm) for gas-dynamical simulations. *Journal of computational physics*, 54(1) :174–201.
- [Curtius et al., 2005] Curtius, J., Weigel, R., Vössing, H.-J., Wernli, H., Werner, A., Volk, C.-M., Konopka, P., Krebsbach, M., Schiller, C., Roiger, A., et al. (2005). Observations of meteoric material and implications for aerosol nucleation in the winter arctic lower stratosphere derived from in situ particle measurements. *Atmospheric chemistry and physics*, 5(11) :3053–3069.
- [Daniel et al., 1989] Daniel, J., Gérard, M., Mauffret, A., BOULANGER, D., CANTIN, B., ves COLLOT, J.-Y., Durand, J., FISHER, M., GREENE, H. G., MICHAUX, P., et al. (1989). Déformation compressive d’un bassin intra-arc dans un contexte de collision ride-arc : Le bassin d’aoba, arc des nouvelles-hébrides. *CR Acad. Sci., Ser. II*, 308 :239–245.
- [De Leeuw et al., 2021] De Leeuw, J., Schmidt, A., Witham, C. S., Theys, N., Taylor, I. A., Grainger, R. G., Pope, R. J., Haywood, J., Osborne, M., and Kristiansen, N. I. (2021). The 2019 raikoke volcanic eruption–part 1 : Dispersion model simulations and satellite retrievals of volcanic sulfur dioxide. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(14) :10851–10879.

- [Delmas et al., 2005] Delmas, R., Megie, G., and Peuch, V. (2005). Atmosphere physics and chemistry ; physique et chimie de l’atmosphère.
- [Deshler, 2008] Deshler, T. (2008). A review of global stratospheric aerosol : Measurements, importance, life cycle, and local stratospheric aerosol. *Atmospheric Research*, 90(2-4) :223–232.
- [Diallo et al., 2012] Diallo, M., Legras, B., and Chédin, A. (2012). Age of stratospheric air in the era-interim. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(24) :12133–12154.
- [Diallo et al., 2017] Diallo, M., Ploeger, F., Konopka, P., Birner, T., Müller, R., Riese, M., Garny, H., Legras, B., Ray, E., Berthet, G., et al. (2017). Significant contributions of volcanic aerosols to decadal changes in the stratospheric circulation. *Geophysical research letters*, 44(20) :10–780.
- [Diehl et al., 2012] Diehl, M., Ostermeier, D., and Schäfer, A. (2012). Elements of a theory for multiparton interactions in qcd. *Journal of High Energy Physics*, 2012(3) :1–145.
- [Dowdy et al., 2004] Dowdy, A. J., Vincent, R. A., Murphy, D. J., Tsutsumi, M., Riggan, D. M., and Jarvis, M. J. (2004). The large-scale dynamics of the mesosphere–lower thermosphere during the southern hemisphere stratospheric warming of 2002. *Geophysical Research Letters*, 31(14).
- [Duprat et al., 2007] Duprat, J., Engrand, C., Maurette, M., Kurat, G., Gounelle, M., and Hammer, C. (2007). Micrometeorites from central antarctic snow : The concordia collection. *Advances in Space Research*, 39(4) :605–611.
- [Ebert et al., 2016] Ebert, M., Weigel, R., Kandler, K., Günther, G., Molleker, S., Grooß, J.-U., Vogel, B., Weinbruch, S., and Borrmann, S. (2016). Chemical analysis of refractory stratospheric aerosol particles collected within the arctic vortex and inside polar stratospheric clouds. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(13) :8405–8421.

- [English et al., 2011] English, J., Toon, O., Mills, M., and Yu, F. (2011). Microphysical simulations of new particle formation in the upper troposphere and lower stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(17) :9303–9322.
- [Fahey et al., 1993] Fahey, D., Kawa, S., Woodbridge, E., Tin, P., Wilson, J., Jonsson, H., Dye, J., Baumgardner, D., Borrmann, S., Toohey, D., et al. (1993). In situ measurements constraining the role of sulphate aerosols in mid-latitude ozone depletion. *Nature*, 363(6429) :509–514.
- [Fan and Toon, 2011] Fan, T. and Toon, O. (2011). Modeling sea-salt aerosol in a coupled climate and sectional microphysical model : mass, optical depth and number concentration. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(9) :4587–4610.
- [Flagan, 2001] Flagan, R. C. (2001). History of aerosol science : Othmar Preining and E. James Davis (eds.) ; Verlag der Österreichischen Akademie der Wissenschaften, Vienna, Austria, 2000. *Journal of Aerosol Science*, 32(9) :1131–1132.
- [Flood, 1934] Flood, H. (1934). Droplet formation in oversaturated ethanol-water vapour mixtures. *Z. Phys. Chem. A-Chem. T*, 170 :286–294.
- [Froyd et al., 2009] Froyd, K., Murphy, D., Sanford, T., Thomson, D., Wilson, J., Pfister, L., and Lait, L. (2009). Aerosol composition of the tropical upper troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(13) :4363–4385.
- [Fuchs et al., 1965] Fuchs, N. A., Daisley, R., Fuchs, M., Davies, C., and Straumanis, M. (1965). The mechanics of aerosols. *Physics Today*, 18(4) :73.
- [Fueglistaler et al., 2009] Fueglistaler, S., Dessler, A., Dunkerton, T., Folkins, I., Fu, Q., and Mote, P. W. (2009). Tropical tropopause layer. *Reviews of Geophysics*, 47(1).
- [Gao et al., 2016] Gao, R., Telg, H., McLaughlin, R., Ciciora, S., Watts, L., Richardson, M., Schwarz, J., Perring, A., Thornberry, T., Rollins, A., et al. (2016). A light-weight, high-sensitivity particle spectrometer for pm_{2.5} aerosol measurements. *Aerosol Science and Technology*, 50(1) :88–99.

- [Garcia et al., 2007] Garcia, R., Marsh, D., Kinnison, D., Boville, B., and Sassi, F. (2007). Simulation of secular trends in the middle atmosphere, 1950–2003. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D9).
- [Gettelman, 2002] Gettelman, A. (2002). de pm & forster f. *A climatology of the tropical tropopause layer. J. Meteorol. Soc. Jpn*, 80 :911–942.
- [Gettelman et al., 2004] Gettelman, A., Forster, P. M. d. F., Fujiwara, M., Fu, Q., Vömel, H., Gohar, L. K., Johanson, C., and Ammerman, M. (2004). Radiation balance of the tropical tropopause layer. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109(D7).
- [Giauque et al., 1960] Giauque, W., Hornung, E., Kunzler, J., and Rubin, T. (1960). The thermodynamic properties of aqueous sulfuric acid solutions and hydrates from 15 to 300° k. *Journal of the American Chemical Society*, 82(1) :62–70.
- [Goitom et al., 2015] Goitom, B., Oppenheimer, C., Hammond, J. O., Grandin, R., Barnie, T., Donovan, A., Ogubazghi, G., Yohannes, E., Kibrom, G., Kendall, J.-M., et al. (2015). First recorded eruption of nabro volcano, eritrea, 2011. *Bulletin of Volcanology*, 77(10) :1–21.
- [Hall et al., 1999] Hall, T. M., Waugh, D. W., Boering, K. A., and Plumb, R. A. (1999). Evaluation of transport in stratospheric models. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D15) :18815–18839.
- [Hamill et al., 1977] Hamill, P., Toon, O., and Kiang, C. (1977). Microphysical processes affecting stratospheric aerosol particles. *Journal of Atmospheric Sciences*, 34(7) :1104–1119.
- [Hamill et al., 1990] Hamill, P., Toon, O., and Turco, R. (1990). Aerosol nucleation in the winter arctic and antarctic stratospheres. *Geophysical Research Letters*, 17(4) :417–420.
- [Hamilton, 2002] Hamilton, K. (2002). On the quasi-decadal modulation of the stratospheric qbo period. *Journal of climate*, 15(17) :2562–2565.

- [Haynes and Shuckburgh, 2000] Haynes, P. and Shuckburgh, E. (2000). Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport : 2. troposphere and lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D18) :22795–22810.
- [Haywood and Boucher, 2000] Haywood, J. and Boucher, O. (2000). Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols : A review. *Reviews of geophysics*, 38(4) :513–543.
- [Haywood et al., 2010] Haywood, J. M., Jones, A., Clarisse, L., Bourassa, A., Barnes, J., Telford, P., Bellouin, N., Boucher, O., Agnew, P., Clerbaux, C., et al. (2010). Observations of the eruption of the sarychev volcano and simulations using the hadgem2 climate model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D21).
- [Hedelt et al., 2019] Hedelt, P., Efremenko, D. S., Loyola, D. G., Spurr, R., and Clarisse, L. (2019). Sulfur dioxide layer height retrieval from sentinel-5 precursor/tropomi using fp_ilm. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(10) :5503–5517.
- [Heng et al., 2016] Heng, Y., Hoffmann, L., Griessbach, S., Rößler, T., and Stein, O. (2016). Inverse transport modeling of volcanic sulfur dioxide emissions using large-scale simulations. *Geoscientific model development*, 9(4) :1627–1645.
- [Hitchman et al., 1994] Hitchman, M. H., McKay, M., and Treppe, C. R. (1994). A climatology of stratospheric aerosol. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D10) :20689–20700.
- [Hoffmann et al., 2019] Hoffmann, L., Günther, G., Li, D., Stein, O., Wu, X., Griessbach, S., Heng, Y., Konopka, P., Müller, R., Vogel, B., et al. (2019). From era-interim to era5 : the considerable impact of ecmwf’s next-generation reanalysis on lagrangian transport simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(5) :3097–3124.
- [Hofmann et al., 2009] Hofmann, D., Barnes, J., O’Neill, M., Trudeau, M., and Neely, R. (2009). Increase in background stratospheric aerosol observed with

- lidar at mauna loa observatory and boulder, colorado. *Geophysical Research Letters*, 36(15).
- [Holton, 2004] Holton, J. R. (2004). An introduction to dynamic meteorology fourth edition. *Department of Atmo.*
- [Holton et al., 1995] Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B., and Pfister, L. (1995). Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of geophysics*, 33(4) :403–439.
- [Holton and Tan, 1980] Holton, J. R. and Tan, H.-C. (1980). The influence of the equatorial quasi-biennial oscillation on the global circulation at 50 mb. *Journal of Atmospheric Sciences*, 37(10) :2200–2208.
- [Hoskins, 1991] Hoskins, B. J. (1991). Towards a $pv-\theta$ view of the general circulation. *Tellus A : Dynamic Meteorology and Oceanography*, 43(4) :27–36.
- [Hurrell et al., 2013] Hurrell, J. W., Holland, M. M., Gent, P. R., Ghan, S., Kay, J. E., Kushner, P. J., Lamarque, J.-F., Large, W. G., Lawrence, D., Lindsay, K., et al. (2013). The community earth system model : a framework for collaborative research. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 94(9) :1339–1360.
- [Jäger and Deshler, 2002] Jäger, H. and Deshler, T. (2002). Lidar backscatter to extinction, mass and area conversions for stratospheric aerosols based on midlatitude balloonborne size distribution measurements. *Geophysical Research Letters*, 29(19) :35–1.
- [James et al., 2003] James, P., Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Seibert, P., and Frank, A. (2003). A 15-year climatology of stratosphere–troposphere exchange with a lagrangian particle dispersion model 2. mean climate and seasonal variability. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D12).
- [Junge et al., 1961] Junge, C. E., Chagnon, C. W., and Manson, J. E. (1961). Stratospheric aerosols. *Journal of Atmospheric Sciences*, 18(1) :81–108.
- [Junge and Manson, 1961] Junge, C. E. and Manson, J. E. (1961). Stratospheric aerosol studies. *Journal of Geophysical Research*, 66(7) :2163–2182.

- [Karagulian et al., 2010] Karagulian, F., Clarisse, L., Clerbaux, C., Prata, A. J., Hurtmans, D., and Coheur, P.-F. (2010). Detection of volcanic so₂, ash, and h₂so₄ using the infrared atmospheric sounding interferometer (iasi). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D2).
- [Kawatani et al., 2016] Kawatani, Y., Hamilton, K., Miyazaki, K., Fujiwara, M., and Anstey, J. A. (2016). Representation of the tropical stratospheric zonal wind in global atmospheric reanalyses. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(11) :6681–6699.
- [Kesavan and Stuebing, 2009] Kesavan, J. and Stuebing, E. (2009). Atmospheric and biological environmental monitoring. *Atmospheric and Biological Environmental Monitoring*, pages 83–103.
- [Kettle et al., 2002] Kettle, A., Kuhn, U., von Hobe, M. v., Kesselmeier, J., and Andreae, M. (2002). Global budget of atmospheric carbonyl sulfide : Temporal and spatial variations of the dominant sources and sinks. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D22) :ACH–25.
- [Khaykin et al., 2018] Khaykin, S., Godin-Beekmann, S., Hauchecorne, A., Pelon, J., Ravetta, F., and Keckhut, P. (2018). Stratospheric smoke with unprecedentedly high backscatter observed by lidars above southern france. *Geophysical Research Letters*, 45(3) :1639–1646.
- [Khaykin et al., 2020] Khaykin, S., Legras, B., Bucci, S., Sellitto, P., Isaksen, L., Tence, F., Bekki, S., Bourassa, A., Rieger, L., Zawada, D., et al. (2020). The 2019/20 australian wildfires generated a persistent smoke-charged vortex rising up to 35 km altitude. *Communications Earth & Environment*, 1(1) :1–12.
- [Khaykin et al., 2017] Khaykin, S. M., Godin-Beekmann, S., Keckhut, P., Hauchecorne, A., Jumelet, J., Vernier, J.-P., Bourassa, A., Degenstein, D. A., Rieger, L. A., Bingen, C., et al. (2017). Variability and evolution of the midlatitude stratospheric aerosol budget from 22 years of ground-based lidar and satellite observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(3) :1829–1845.

- [Kiehl and Briegleb, 1993] Kiehl, J. and Briegleb, B. (1993). The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing. *Science*, 260(5106) :311–314.
- [Kinnison et al., 2007] Kinnison, D., Brasseur, G. P., Walters, S., Garcia, R., Marsh, D., Sassi, F., Harvey, V., Randall, C., Emmons, L., Lamarque, J., et al. (2007). Sensitivity of chemical tracers to meteorological parameters in the moztart-3 chemical transport model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D20).
- [Kloss et al., 2019] Kloss, C., Berthet, G., Sellitto, P., Ploeger, F., Bucci, S., Khaykin, S., Jégou, F., Taha, G., Thomason, L. W., Barret, B., et al. (2019). Transport of the 2017 canadian wildfire plume to the tropics via the asian monsoon circulation. *Atmospheric chemistry and physics*, 19(21) :13547–13567.
- [Kloss et al., 2021] Kloss, C., Berthet, G., Sellitto, P., Ploeger, F., Taha, G., Tiddiga, M., Eremenko, M., Bossolasco, A., Jegou, F., Renard, J.-B., et al. (2021). Stratospheric aerosol layer perturbation caused by the 2019 raikoke and ulawun eruptions and their radiative forcing. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(1) :535–560.
- [Kloss et al., 2020] Kloss, C., Sellitto, P., Legras, B., Vernier, J.-P., Jegou, F., Venkat Ratnam, M., Suneel Kumar, B., Lakshmi Madhavan, B., and Berthet, G. (2020). Impact of the 2018 ambae eruption on the global stratospheric aerosol layer and climate. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(14) :e2020JD032410.
- [Korolev et al., 1999] Korolev, A., Isaac, G., and Hallett, J. (1999). Ice particle habits in arctic clouds. *Geophysical research letters*, 26(9) :1299–1302.
- [Kravitz et al., 2010] Kravitz, B., Robock, A., and Bourassa, A. (2010). Negligible climatic effects from the 2008 okmok and kasatochi volcanic eruptions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D2).
- [Kremser et al., 2016] Kremser, S., Thomason, L. W., von Hobe, M., Hermann, M., Deshler, T., Timmreck, C., Toohey, M., Stenke, A., Schwarz, J. P., Weigel,

- R., et al. (2016). Stratospheric aerosol—observations, processes, and impact on climate. *Reviews of Geophysics*, 54(2) :278–335.
- [Kristiansen et al., 2015] Kristiansen, N. I., Prata, A., Stohl, A., and Carn, S. A. (2015). Stratospheric volcanic ash emissions from the 13 february 2014 kelut eruption. *Geophysical Research Letters*, 42(2) :588–596.
- [Kuai et al., 2009] Kuai, L., Shia, R.-L., Jiang, X., Tung, K.-K., and Yung, Y. L. (2009). Nonstationary synchronization of equatorial qbo with sao in observations and a model. *Journal of the atmospheric sciences*, 66(6) :1654–1664.
- [Kulmala and Laaksonen, 1990] Kulmala, M. and Laaksonen, A. (1990). Binary nucleation of water–sulfuric acid system : Comparison of classical theories with different h₂so₄ saturation vapor pressures. *The Journal of chemical physics*, 93(1) :696–701.
- [Kunz et al., 2011] Kunz, A., Konopka, P., Müller, R., and Pan, L. (2011). Dynamical tropopause based on isentropic potential vorticity gradients. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D1).
- [Lait, 1994] Lait, L. R. (1994). An alternative form for potential vorticity. *Journal of Atmospheric Sciences*, 51(12) :1754–1759.
- [Lamarque et al., 2010] Lamarque, J.-F., Bond, T. C., Eyring, V., Granier, C., Heil, A., Klimont, Z., Lee, D., Lioussse, C., Mieville, A., Owen, B., et al. (2010). Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols : methodology and application. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(15) :7017–7039.
- [Lestrelin et al., 2021] Lestrelin, H., Legras, B., Podglajen, A., and Salihoglu, M. (2021). Smoke-charged vortices in the stratosphere generated by wildfires and their behaviour in both hemispheres : comparing australia 2020 to canada 2017. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(9) :7113–7134.
- [Lin and Tabazadeh, 2001] Lin, J.-S. and Tabazadeh, A. (2001). A parameterization of an aerosol physical chemistry model for the nh₃/h₂so₄/hno₃/h₂o

- system at cold temperatures. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D5) :4815–4829.
- [Lin and Rood, 1996] Lin, S.-J. and Rood, R. B. (1996). Multidimensional flux-form semi-lagrangian transport schemes. *Monthly Weather Review*, 124(9) :2046–2070.
- [Lin and Rood, 1997] Lin, S.-J. and Rood, R. B. (1997). An explicit flux-form semi-lagrangian shallow-water model on the sphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 123(544) :2477–2498.
- [Long et al., 2017] Long, C. S., Fujiwara, M., Davis, S., Mitchell, D. M., and Wright, C. J. (2017). Climatology and interannual variability of dynamic variables in multiple reanalyses evaluated by the sparcs reanalysis intercomparison project (s-rip). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(23) :14593–14629.
- [Loughman et al., 2018] Loughman, R., Bhartia, P. K., Chen, Z., Xu, P., Nyaku, E., and Taha, G. (2018). The ozone mapping and profiler suite (omps) limb profiler (lp) version 1 aerosol extinction retrieval algorithm : Theoretical basis. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(5) :2633–2651.
- [Love and Brownlee, 1993] Love, S. and Brownlee, D. (1993). A direct measurement of the terrestrial mass accretion rate of cosmic dust. *Science*, 262(5133) :550–553.
- [Lurton et al., 2018] Lurton, T., Jégou, F., Berthet, G., Renard, J.-B., Clarisse, L., Schmidt, A., Brogniez, C., and Roberts, T. J. (2018). Model simulations of the chemical and aerosol microphysical evolution of the sarychev peak 2009 eruption cloud compared to in situ and satellite observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(5) :3223–3247.
- [Ma et al., 2019] Ma, J., Brühl, C., He, Q., Steil, B., Karydis, V. A., Klingmüller, K., Tost, H., Chen, B., Jin, Y., Liu, N., et al. (2019). Modeling the aerosol chemical composition of the tropopause over the tibetan plateau during the asian summer monsoon. *Atmospheric chemistry and physics*, 19(17) :11587–11612.

- [Manney et al., 2015] Manney, G. L., Lawrence, Z. D., Santee, M. L., Read, W. G., Livesey, N. J., Lambert, A., Froidevaux, L., Pumphrey, H. C., and Schwartz, M. J. (2015). A minor sudden stratospheric warming with a major impact : Transport and polar processing in the 2014/2015 arctic winter. *Geophysical Research Letters*, 42(18) :7808–7816.
- [Marsh et al., 2013] Marsh, D. R., Mills, M. J., Kinnison, D. E., Lamarque, J.-F., Calvo, N., and Polvani, L. M. (2013). Climate change from 1850 to 2005 simulated in cesm1 (waccm). *Journal of climate*, 26(19) :7372–7391.
- [Martin et al., 2011] Martin, M., Chang, R.-W., Sierau, B., Sjogren, S., Swietlicki, E., Abbatt, J. P., Leck, C., and Lohmann, U. (2011). Cloud condensation nuclei closure study on summer arctic aerosol. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(22) :11335–11350.
- [Masclat and Cachier, 1998] Masclat, P. and Cachier, H. (1998). Atmospheric particles. physicochemical characteristics (in french). *Analusis*, 26(9) :11–16.
- [Mateshvili et al., 2020] Mateshvili, N., Fussen, D., Mateshvili, I., Vanhellefont, F., Bingen, C., Paataashvili, T., Kyrölä, E., Robert, C., and Dekemper, E. (2020). Raikoke aerosol clouds observed from tbilisi, georgia and halle, belgium using ground-based twilight sky brightness spectral measurements. In *EGU General Assembly Conference Abstracts*, page 7548.
- [Mather et al., 2003] Mather, T., Pyle, D., and Oppenheimer, C. (2003). Tropospheric volcanic aerosol. *Geophysical Monograph-American Geophysical Union*, 139 :189–212.
- [Maurette et al., 1991] Maurette, M., Olinger, C., Michel-Levy, M. C., Kurat, G., Pourchet, M., Brandstätter, F., and Bourot-Denise, M. (1991). A collection of diverse micrometeorites recovered from 100 tonnes of antarctic blue ice. *Nature*, 351(6321) :44–47.
- [McCormick et al., 1981] McCormick, M., Chu, W., Grams, G., Hamill, P., Herman, B., McMaster, L. R., Pepin, T., Russell, P., Steele, H., and Swissler, T. (1981). High-latitude stratospheric aerosols measured by the sam ii satellite system in 1978 and 1979. *Science*, pages 328–331.

- [McCormick et al., 1979] McCormick, M., Hamill, P., Pepin, T., Chu, W., Swissler, T., and McMaster, L. (1979). Satellite studies of the stratospheric aerosol. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 60(9) :1038–1047.
- [McCormick et al., 1982] McCormick, M., Steele, H., Hamill, P., Chu, W., and Swissler, T. (1982). Polar stratospheric cloud sightings by sam ii. *Journal of Atmospheric Sciences*, 39(6) :1387–1397.
- [McCormick et al., 1995] McCormick, M. P., Thomason, L. W., and Trepte, C. R. (1995). Atmospheric effects of the mt pinatubo eruption. *Nature*, 373(6513) :399–404.
- [McCormick and Trepte, 1986] McCormick, M. P. and Trepte, C. R. (1986). Sam ii measurements of antarctic psc’s and aerosols. *Geophysical research letters*, 13(12) :1276–1279.
- [Michel, 2012] Michel, C. (2012). *Rôle du déferlement des ondes de Rossby dans la variabilité climatique aux latitudes tempérées*. PhD thesis, Toulouse, INPT.
- [Mills et al., 2016] Mills, M. J., Schmidt, A., Easter, R., Solomon, S., Kinnison, D. E., Ghan, S. J., Neely III, R. R., Marsh, D. R., Conley, A., Bardeen, C. G., et al. (2016). Global volcanic aerosol properties derived from emissions, 1990–2014, using cesm1 (waccm). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 121(5) :2332–2348.
- [Mills et al., 2008] Mills, M. J., Toon, O. B., Turco, R. P., Kinnison, D. E., and Garcia, R. R. (2008). Massive global ozone loss predicted following regional nuclear conflict. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 105(14) :5307–5312.
- [Moussallam et al., 2019] Moussallam, Y., Longpré, M.-A., McCammon, C., Gomez-Ulla, A., Rose-Koga, E. F., Scaillet, B., Peters, N., Gennaro, E., Paris, R., and Oppenheimer, C. (2019). Mantle plumes are oxidised. *Earth and Planetary Science Letters*, 527 :115798.

- [Murphy et al., 2007] Murphy, D., Cziczo, D., Hudson, P., and Thomson, D. (2007). Carbonaceous material in aerosol particles in the lower stratosphere and tropopause region. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D4).
- [Murphy et al., 1998] Murphy, D., Thomson, D., and Mahoney, M. (1998). In situ measurements of organics, meteoritic material, mercury, and other elements in aerosols at 5 to 19 kilometers. *Science*, 282(5394) :1664–1669.
- [Murphy and Koop, 2005] Murphy, D. M. and Koop, T. (2005). Review of the vapour pressures of ice and supercooled water for atmospheric applications. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society : A journal of the atmospheric sciences, applied meteorology and physical oceanography*, 131(608) :1539–1565.
- [Muser et al., 2020] Muser, L. O., Hoshyaripour, G. A., Bruckert, J., Horváth, Á., Malinina, E., Wallis, S., Prata, F. J., Rozanov, A., von Savigny, C., Vogel, H., et al. (2020). Particle aging and aerosol–radiation interaction affect volcanic plume dispersion : evidence from the raikoke 2019 eruption. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(23) :15015–15036.
- [Neale et al., 2013] Neale, R. B., Richter, J., Park, S., Lauritzen, P. H., Vavrus, S. J., Rasch, P. J., and Zhang, M. (2013). The mean climate of the community atmosphere model (cam4) in forced sst and fully coupled experiments. *Journal of Climate*, 26(14) :5150–5168.
- [Neely III et al., 2013] Neely III, R., Toon, O., Solomon, S., Vernier, J.-P., Alvarez, C., English, J., Rosenlof, K., Mills, M., Bardeen, C., Daniel, J., et al. (2013). Recent anthropogenic increases in so₂ from asia have minimal impact on stratospheric aerosol. *Geophysical Research Letters*, 40(5) :999–1004.
- [Neely III et al., 2011] Neely III, R. R., English, J. M., Toon, O. B., Solomon, S., Mills, M., and Thayer, J. P. (2011). Implications of extinction due to meteoritic smoke in the upper stratosphere. *Geophysical research letters*, 38(24).
- [Niemeier et al., 2009] Niemeier, U., Timmreck, C., Graf, H.-F., Kinne, S., Rast, S., and Self, S. (2009). Initial fate of fine ash and sulfur from large volcanic eruptions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(22) :9043–9057.

- [Niwano et al., 2009] Niwano, M., Hayashida, S., Akiyoshi, H., and Takahashi, M. (2009). Seasonal cycles of stratospheric aerosol and gas experiment ii near-background aerosol in the lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D14).
- [Notholt et al., 2005] Notholt, J., Luo, B., Fueglistaler, S., Weisenstein, D., Rex, M., Lawrence, M., Bingemer, H., Wohltmann, I., Corti, T., Warneke, T., et al. (2005). Influence of tropospheric so₂ emissions on particle formation and the stratospheric humidity. *Geophysical Research Letters*, 32(7).
- [Oman et al., 2005] Oman, L., Robock, A., Stenchikov, G., Schmidt, G. A., and Ruedy, R. (2005). Climatic response to high-latitude volcanic eruptions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D13).
- [O’Neill et al., 2001] O’Neill, N., Eck, T., Holben, B., Smirnov, A., Dubovik, O., and Royer, A. (2001). Bimodal size distribution influences on the variation of angstrom derivatives in spectral and optical depth space. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D9) :9787–9806.
- [Pascoe et al., 2005] Pascoe, C. L., Gray, L. J., Crooks, S. A., Jukes, M. N., and Baldwin, M. P. (2005). The quasi-biennial oscillation : Analysis using era-40 data. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D8).
- [Pitari et al., 2016] Pitari, G., Di Genova, G., Mancini, E., Visioni, D., Gandolfi, I., and Cionni, I. (2016). Stratospheric aerosols from major volcanic eruptions : A composition-climate model study of the aerosol cloud dispersal and e-folding time. *Atmosphere*, 7(6) :75.
- [Plane et al., 2018] Plane, J. M., Flynn, G. J., Määttänen, A., Moores, J. E., Poppe, A. R., Carrillo-Sanchez, J. D., and Listowski, C. (2018). Impacts of cosmic dust on planetary atmospheres and surfaces. *Space Science Reviews*, 214(1) :23.
- [Plumb, 1996] Plumb, R. A. (1996). A “tropical pipe” model of stratospheric transport. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D2) :3957–3972.

- [Plumb and Bell, 1982] Plumb, R. A. and Bell, R. C. (1982). A model of the quasi-biennial oscillation on an equatorial beta-plane. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 108(456) :335–352.
- [Poole and Pitts, 1994] Poole, L. R. and Pitts, M. C. (1994). Polar stratospheric cloud climatology based on stratospheric aerosol measurement ii observations from 1978 to 1989. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D6) :13083–13089.
- [Randel et al., 2001] Randel, W., Holton, J., Alexander, M., Hirota, I., Horinouchi, T., Jones, D., Kinnersley, J., Marquardt, C., Sato, K., and Takahashi, M. (2001). The quasi-biennial oscillation. *Rev Geophys*, 39(179229) :407Cecere.
- [Randel et al., 2010] Randel, W. J., Park, M., Emmons, L., Kinnison, D., Bernath, P., Walker, K. A., Boone, C., and Pumphrey, H. (2010). Asian monsoon transport of pollution to the stratosphere. *Science*, 328(5978) :611–613.
- [Randel et al., 1995] Randel, W. J., Wu, F., Russell III, J., Waters, J., and Froidevaux, L. (1995). Ozone and temperature changes in the stratosphere following the eruption of mount pinatubo. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D8) :16753–16764.
- [Reed, 1955] Reed, R. J. (1955). A study of a characteristic type of upper-level frontogenesis. *Journal of Atmospheric Sciences*, 12(3) :226–237.
- [Reiss, 1950] Reiss, H. (1950). The kinetics of phase transitions in binary systems. *The Journal of Chemical Physics*, 18(6) :840–848.
- [Renard et al., 2019] Renard, J.-B., Berthet, G., Levasseur-Regourd, A.-C., Beresnev, S., Miffre, A., Rairoux, P., Vignelles, D., and Jégou, F. (2019). The complex origin and spatial distribution of non-pure sulfate particles (nsps) in the stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, pages 1–42.
- [Renard et al., 2010] Renard, J.-B., Berthet, G., Salazar, V., Catoire, V., Tagger, M., Gaubicher, B., and Robert, C. (2010). In situ detection of aerosol layers in the middle stratosphere. *Geophysical research letters*, 37(20).

- [Renard et al., 2016a] Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelles, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., et al. (2016a). Loac : a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles—part 1 : Principle of measurements and instrument evaluation. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(4) :1721–1742.
- [Renard et al., 2016b] Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelles, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., et al. (2016b). Loac : a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles—part 2 : First results from balloon and unmanned aerial vehicle flights. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(8) :3673–3686.
- [Renard et al., 2020] Renard, J.-B., Michoud, V., and Giacomoni, J. (2020). Vertical profiles of pollution particle concentrations in the boundary layer above paris (france) from the optical aerosol counter loac onboard a touristic balloon. *Sensors*, 20(4) :1111.
- [Renard et al., 2005] Renard, J.-B., Ovarlez, J., Berthet, G., Fussen, D., Vanhellemont, F., Brogniez, C., Hadamcik, E., Chartier, M., and Ovarlez, H. (2005). Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domains. iii. presence of aerosols in the middle stratosphere. *Applied optics*, 44(19) :4086–4095.
- [Riahi et al., 2011] Riahi, K., Rao, S., Krey, V., Cho, C., Chirkov, V., Fischer, G., Kindermann, G., Nakicenovic, N., and Rafaj, P. (2011). Rcp 8.5—a scenario of comparatively high greenhouse gas emissions. *Climatic change*, 109(1) :33–57.
- [Ricaud et al., 2005] Ricaud, P., Lefèvre, F., Berthet, G., Murtagh, D., Llewellyn, E., Mégie, G., Kyrölä, E., Leppelmeier, G., Auvinen, H., Boonne, C., et al. (2005). Polar vortex evolution during the 2002 antarctic major warming as observed by the odin satellite. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D5).

- [Ridley et al., 2014] Ridley, D., Solomon, S., Barnes, J., Burlakov, V., Deshler, T., Dolgii, S., Herber, A. B., Nagai, T., Neely III, R., Nevzorov, A., et al. (2014). Total volcanic stratospheric aerosol optical depths and implications for global climate change. *Geophysical Research Letters*, 41(22) :7763–7769.
- [Riviere et al., 2000] Riviere, E., Huret, N., G.-Taupin, F., Renard, J.-B., Pirre, M., Eckermann, S., Larsen, N., Deshler, T., Lefèvre, F., Payan, S., et al. (2000). Role of lee waves in the formation of solid polar stratospheric clouds : Case studies from february 1997. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D5) :6845–6853.
- [Rohatschek, 1996] Rohatschek, H. (1996). Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis. *Journal of aerosol science*, 27(3) :467–475.
- [Rosen, 1971] Rosen, J. M. (1971). The boiling point of stratospheric aerosols. *Journal of Applied Meteorology (1962-1982)*, 10(5) :1044–1046.
- [Rosen and Kjome, 1991] Rosen, J. M. and Kjome, N. T. (1991). Backscatter-sonde : a new instrument for atmospheric aerosol research. *Applied Optics*, 30(12) :1552–1561.
- [Ross et al., 2010] Ross, M., Mills, M., and Toohey, D. (2010). Potential climate impact of black carbon emitted by rockets. *Geophysical Research Letters*, 37(24).
- [Russell et al., 1996] Russell, P., Livingston, J., Pueschel, R., Bauman, J., Pollack, J., Brooks, S., Hamill, P., Thomason, L., Stowe, L., Deshler, T., et al. (1996). Global to microscale evolution of the pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D13) :18745–18763.
- [Sabinina and Turpugow, 1935] Sabinina, L. and Turpugow, L. (1935). The surface tension of the system sulfuric acid-water. *Z. Phys. Chem. A*, 173 :237–241.
- [Salazar, 2010] Salazar, V. (2010). *Etude des propriétés physiques des aérosols de la moyenne et haute atmosphère à partir d’une nouvelle analyse des observa-*

- tions du GOMOS-ENVISAT pour la période 2002-2006*. PhD thesis, Université d'Orléans.
- [Salby and Callaghan, 2000] Salby, M. and Callaghan, P. (2000). Connection between the solar cycle and the qbo : The missing link. *Journal of Climate*, 13(2) :328–338.
- [Schauer et al., 1996] Schauer, J. J., Rogge, W. F., Hildemann, L. M., Mazurek, M. A., Cass, G. R., and Simoneit, B. R. (1996). Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers. *Atmospheric Environment*, 30(22) :3837–3855.
- [Scherhag, 1960] Scherhag, R. (1960). *Einführung in die Klimatologie*. G. Westermann.
- [Schwarz et al., 2006] Schwarz, J. P., Gao, R., Fahey, D., Thomson, D., Watts, L., Wilson, J., Reeves, J., Darbeheshti, M., Baumgardner, D., Kok, G., et al. (2006). Single-particle measurements of midlatitude black carbon and light-scattering aerosols from the boundary layer to the lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D16).
- [Seinfeld and Pandis, 2006] Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (2006). Atmospheric chemistry and physics from air pollution to climate change.
- [Seinfeld and Pandis, 2016] Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (2016). *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.
- [Selkirk, 1993] Selkirk, H. B. (1993). The tropopause cold trap in the australian monsoon during step/amex 1987. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D5) :8591–8610.
- [Sellitto et al., 2017] Sellitto, P., Salerno, G., La Spina, A., Caltabiano, T., Terray, L., Gauthier, P.-J., and Briole, P. (2017). A novel methodology to determine volcanic aerosols optical properties in the uv and nir and ångström parameters using sun photometry. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 122(18) :9803–9815.

- [Sheng et al., 2015] Sheng, J.-X., Weisenstein, D. K., Luo, B.-P., Rozanov, E., Stenke, A., Anet, J., Bingemer, H., and Peter, T. (2015). Global atmospheric sulfur budget under volcanically quiescent conditions : Aerosol-chemistry-climate model predictions and validation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 120(1) :256–276.
- [Shibata et al., 2016] Shibata, Y., Abo, M., and Nagasawa, C. (2016). Volcanic stratospheric aerosol layer over equator observed by the spaceborne lidar caliop and ground based lidar at kototabang, indonesia. In *AGU Fall Meeting Abstracts*, volume 2016, pages A31G–0136.
- [Simoneit, 1986] Simoneit, B. R. (1986). Characterization of organic constituents in aerosols in relation to their origin and transport : a review. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 23(3) :207–237.
- [Simoneit and Mazurek, 1989] Simoneit, B. R. and Mazurek, M. (1989). Organic tracers in ambient aerosols and rain. *Aerosol science and technology*, 10(2) :267–291.
- [Sindelarova et al., 2014] Sindelarova, K., Granier, C., Bouarar, I., Guenther, A., Tilmes, S., Stavrou, T., Müller, J.-F., Kuhn, U., Stefani, P., and Knorr, W. (2014). Global data set of biogenic voc emissions calculated by the megan model over the last 30 years. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(17) :9317–9341.
- [Solomon, 1999] Solomon, S. (1999). Stratospheric ozone depletion : A review of concepts and history. *Reviews of Geophysics*, 37(3) :275–316.
- [Solomon et al., 2011] Solomon, S., Daniel, J. S., Neely, R. R., Vernier, J.-P., Dutton, E. G., and Thomason, L. W. (2011). The persistently variable “background” stratospheric aerosol layer and global climate change. *Science*, 333(6044) :866–870.
- [Steele and Hamill, 1981] Steele, H. M. and Hamill, P. (1981). Effects of temperature and humidity on the growth and optical properties of sulphuric acid—water droplets in the stratosphere. *Journal of aerosol science*, 12(6) :517–528.

- [Stickel et al., 1993] Stickel, R., Chin, M., Daykin, E., Hynes, A. J., Wine, P., and Wallington, T. (1993). Mechanistic studies of the hydroxyl-initiated oxidation of carbon disulfide in the presence of oxygen. *The Journal of Physical Chemistry*, 97(51) :13653–13661.
- [Stothers, 2001] Stothers, R. B. (2001). A chronology of annual mean effective radii of stratospheric aerosols from volcanic eruptions during the twentieth century as derived from ground-based spectral extinction measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D23) :32043–32049.
- [Su and Toon, 2011] Su, L. and Toon, O. (2011). Saharan and asian dust : similarities and differences determined by calipso, aeronet, and a coupled climate-aerosol microphysical model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(7) :3263–3280.
- [Tabazadeh et al., 1997] Tabazadeh, A., Toon, O. B., Clegg, S. L., and Hamill, P. (1997). A new parameterization of h₂so₄/h₂o aerosol composition : Atmospheric implications. *Geophysical Research Letters*, 24(15) :1931–1934.
- [Taha et al., 2021] Taha, G., Loughman, R., Zhu, T., Thomason, L., Kar, J., Rieger, L., and Bourassa, A. (2021). Omeps lp version 2.0 multi-wavelength aerosol extinction coefficient retrieval algorithm. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(2) :1015–1036.
- [Tao et al., 2015] Tao, M., Konopka, P., Ploeger, F., Grooß, J.-U., Müller, R., Volk, C. M., Walker, K. A., and Riese, M. (2015). Impact of the 2009 major sudden stratospheric warming on the composition of the stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(15) :8695–8715.
- [Thomas and Watson, 2010] Thomas, H. E. and Watson, I. (2010). Observations of volcanic emissions from space : current and future perspectives. *Natural Hazards*, 54(2) :323–354.
- [Thomason et al., 1997a] Thomason, L., Kent, G., Trepte, C., and Poole, L. (1997a). A comparison of the stratospheric aerosol background periods of 1979 and 1989–1991. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D3) :3611–3616.

- [Thomason et al., 1997b] Thomason, L., Poole, L., and Deshler, T. (1997b). A global climatology of stratospheric aerosol surface area density deduced from stratospheric aerosol and gas experiment ii measurements : 1984–1994. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D7) :8967–8976.
- [Thomason and Taha, 2003] Thomason, L. W. and Taha, G. (2003). Sage iii aerosol extinction measurements : Initial results. *Geophysical Research Letters*, 30(12).
- [Thuburn and Craig, 1997] Thuburn, J. and Craig, G. C. (1997). Gcm tests of theories for the height of the tropopause. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 54(7) :869–882.
- [Toon et al., 1979] Toon, O. B., Turco, R., Hamill, P., Kiang, C., and Whitten, R. (1979). A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere : Ii. sensitivity studies and comparison with observations. *Journal of Atmospheric Sciences*, 36(4) :718–736.
- [Toon et al., 1988] Toon, O. B., Turco, R., Westphal, D., Malone, R., and Liu, M. (1988). A multidimensional model for aerosols : Description of computational analogs. *Journal of Atmospheric Sciences*, 45(15) :2123–2144.
- [Torres et al., 2020] Torres, O., Bhartia, P. K., Taha, G., Jethva, H., Das, S., Colarco, P., Krotkov, N., Omar, A., and Ahn, C. (2020). Stratospheric injection of massive smoke plume from canadian boreal fires in 2017 as seen by dscovr-epic, caliop, and omps-lp observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(10) :e2020JD032579.
- [Trenberth and Smith, 2009] Trenberth, K. E. and Smith, L. (2009). Variations in the three-dimensional structure of the atmospheric circulation with different flavors of el niño. *Journal of Climate*, 22(11) :2978–2991.
- [Trepte and Hitchman, 1992] Trepte, C. R. and Hitchman, M. H. (1992). Tropical stratospheric circulation deduced from satellite aerosol data. *Nature*, 355(6361) :626–628.

- [Trepte et al., 1994] Trepte, C. R., Thomason, L. W., and Kent, G. S. (1994). Banded structures in stratospheric aerosol distributions. *Geophysical research letters*, 21(22) :2397–2400.
- [Trepte et al., 1993] Trepte, C. R., Veiga, R. E., and McCormick, M. P. (1993). The poleward dispersal of mount pinatubo volcanic aerosol. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D10) :18563–18573.
- [Trickl et al., 2013] Trickl, T., Giehl, H., Jäger, H., and Vogelmann, H. (2013). 35 yr of stratospheric aerosol measurements at garmisch-partenkirchen : from fuego to eyjafjallajökull, and beyond. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(10) :5205–5225.
- [Turco et al., 1979] Turco, R., Hamill, P., Toon, O., Whitten, R., and Kiang, C. (1979). A one-dimensional model describing aerosol formation and evolution in the stratosphere : I. physical processes and mathematical analogs. *Journal of Atmospheric Sciences*, 36(4) :699–717.
- [Van der Werf et al., 2010] Van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., DeFries, R., Jin, Y. v., and van Leeuwen, T. T. (2010). Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009). *Atmospheric chemistry and physics*, 10(23) :11707–11735.
- [van der Werf et al., 2006] van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and Arellano Jr, A. F. (2006). Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11) :3423–3441.
- [VanderWood et al., 1996] VanderWood, T., Maurette, M., Bradley, J., Engrand, C., Kurat, G., Petit, J., and Barkov, N. (1996). Automated sem analysis of fine-grained dust from antarctica ice cores. In *Lunar and Planetary Science Conference*, volume 27.
- [Vaughan et al., 2021] Vaughan, G., Wareing, D., and Ricketts, H. (2021). Measurement report : Lidar measurements of stratospheric aerosol following the 2019

- raikoke and ulawun volcanic eruptions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(7) :5597–5604.
- [Vernier et al., 2018] Vernier, J.-P., Fairlie, T., Deshler, T., Ratnam, M. V., Gadhavi, H., Kumar, B., Natarajan, M., Pandit, A., Raj, S. A., Kumar, A. H., et al. (2018). Batal : The balloon measurement campaigns of the asian tropopause aerosol layer. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 99(5) :955–973.
- [Vernier et al., 2016] Vernier, J.-P., Fairlie, T. D., Deshler, T., Natarajan, M., Knepp, T., Foster, K., Wienhold, F. G., Bedka, K. M., Thomason, L., and Trepte, C. (2016). In situ and space-based observations of the kelud volcanic plume : The persistence of ash in the lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 121(18) :11–104.
- [Vernier et al., 2009] Vernier, J.-P., Pommereau, J.-P., Garnier, A., Pelon, J., Larsen, N., Nielsen, J., Christensen, T., Cairo, F., Thomason, L. W., Leblanc, T., et al. (2009). Tropical stratospheric aerosol layer from calipso lidar observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D4).
- [Vernier et al., 2011a] Vernier, J.-P., Thomason, L., and Kar, J. (2011a). Calipso detection of an asian tropopause aerosol layer. *Geophysical Research Letters*, 38(7).
- [Vernier et al., 2011b] Vernier, J.-P., Thomason, L. W., Pommereau, J.-P., Bourassa, A., Pelon, J., Garnier, A., Hauchecorne, A., Blanot, L., Trepte, C., Degenstein, D., et al. (2011b). Major influence of tropical volcanic eruptions on the stratospheric aerosol layer during the last decade. *Geophysical Research Letters*, 38(12).
- [Watson and Gray, 2014] Watson, P. A. and Gray, L. J. (2014). How does the quasi-biennial oscillation affect the stratospheric polar vortex? *Journal of the Atmospheric Sciences*, 71(1) :391–409.
- [Watts, 2000] Watts, S. F. (2000). The mass budgets of carbonyl sulfide, dimethyl sulfide, carbon disulfide and hydrogen sulfide. *Atmospheric Environment*, 34(5) :761–779.

- [Waugh and Hall, 2002] Waugh, D. and Hall, T. (2002). Age of stratospheric air : Theory, observations, and models. *Reviews of Geophysics*, 40(4) :1–1.
- [Waugh and Polvani, 2010] Waugh, D. W. and Polvani, L. M. (2010). *Stratospheric Polar Vortices*, pages 43–57. American Geophysical Union (AGU).
- [Webb and Coe, 2003] Webb, A. R. and Coe, H. (2003). Atmospheric energy and the structure of the atmosphere. *Handbook of Atmospheric Science : Principles and Applications*, pages 35–58.
- [Weigel et al., 2011] Weigel, R., Borrmann, S., Kazil, J., Minikin, A., Stohl, A., Wilson, J. C., Reeves, J., Kunkel, D., Reus, M. d., Frey, W., et al. (2011). In situ observations of new particle formation in the tropical upper troposphere : the role of clouds and the nucleation mechanism. *Atmospheric chemistry and physics*, 11(18) :9983–10010.
- [Weigel et al., 2014] Weigel, R., Volk, C. M., Kandler, K., Hösen, E., Günther, G., Vogel, B., Groß, J.-U., Khaykin, S., Belyaev, G. V., and Borrmann, S. (2014). Enhancements of the refractory submicron aerosol fraction in the arctic polar vortex : feature or exception? *Atmospheric chemistry and physics*, 14(22) :12319–12342.
- [Wigder et al., 2013] Wigder, N., Jaffe, D., and Saketa, F. (2013). Ozone and particulate matter enhancements from regional wildfires observed at mount bachelor during 2004–2011. *Atmospheric Environment*, 75 :24–31.
- [Winker et al., 2012] Winker, D., Liu, Z., Omar, A., Tackett, J., and Fairlie, D. (2012). Caliop observations of the transport of ash from the eyjafjallajökull volcano in april 2010. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D20).
- [Wu et al., 2017] Wu, X., Griessbach, S., and Hoffmann, L. (2017). Equatorward dispersion of a high-latitude volcanic plume and its relation to the asian summer monsoon : a case study of the sarychev eruption in 2009. *Atmospheric chemistry and physics*, 17(21) :13439–13455.
- [Young et al., 1994] Young, R. E., Houben, H., and Toon, O. B. (1994). Radiatively forced dispersion of the mt. pinatubo volcanic cloud and induced tempera-

- ture perturbations in the stratosphere during the first few months following the eruption. *Geophysical Research Letters*, 21(5) :369–372.
- [Yu, 2008] Yu, F. (2008). Updated h₂so₄-h₂o binary homogeneous nucleation lookup tables. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D24).
- [Yue et al., 1994] Yue, G., Poole, L., Wang, P.-H., and Chiou, E. (1994). Stratospheric aerosol acidity, density, and refractive index deduced from sage ii and nmc temperature data. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D2) :3727–3738.
- [Zhao and Turco, 1995] Zhao, J. and Turco, R. (1995). Nucleation simulations in the wake of a jet aircraft in stratospheric flight. *Journal of aerosol science*, 26(5) :779–795.
- [Zhu et al., 2020] Zhu, Y., Toon, O. B., Jensen, E. J., Bardeen, C. G., Mills, M. J., Tolbert, M. A., Yu, P., and Woods, S. (2020). Persisting volcanic ash particles impact stratospheric so₂ lifetime and aerosol optical properties. *Nature communications*, 11(1) :1–11.
- [Zhu et al., 2018] Zhu, Y., Toon, O. B., Kinnison, D., Harvey, V. L., Mills, M. J., Bardeen, C. G., Pitts, M., Bègue, N., Renard, J.-B., Berthet, G., et al. (2018). Stratospheric aerosols, polar stratospheric clouds, and polar ozone depletion after the mount calbuco eruption in 2015. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 123(21) :12–308.

Mariam Tidiga

Contenu et variabilité des aérosols de la stratosphère : impact des éruptions volcaniques sur la période 2013-2019

Les grandes éruptions volcaniques affectent le climat en injectant du dioxyde de soufre gazeux dans la stratosphère qui se transforme en aérosols sulfatés. Ces aérosols ont le pouvoir de réchauffer la stratosphère entraînant un refroidissement de la troposphère en réfléchissant le rayonnement solaire. Depuis l'éruption du Pinatubo en 1991, qui a entraîné un refroidissement global de 0,4°C, les observations ont montré que la stratosphère a été régulièrement impactée par des éruptions volcaniques de magnitude modérée à l'échelle de l'hémisphère, mais que ces événements ont été moins bien documentés dans les tropiques. Des simulations par le modèle global WACCM-CARMA incluant les cycles chimiques et microphysiques du soufre, ont été effectuées durant nos travaux de thèse pour étudier la variabilité de la teneur en aérosols stratosphériques dans les tropiques sur la période 2013-2019. Il ressort des simulations que les événements volcaniques de la période (Kelud, Calbuco, Ambae, Raikoke et Ulawun) ont influencé de manière significative la couche d'aérosols dans les tropiques, soit par injection directe, soit par transport depuis des latitudes éloignées.

Mots clés : Aérosols, basse stratosphère, haute troposphère, Climat, chimie de l'ozone, pollution, modélisation

Content and variability of stratospheric aerosols : impact of 2013-2019 volcanic eruptions

Large volcanic eruptions affect the climate by injecting sulphur dioxide gas into the stratosphere which is converted to sulphate aerosols. These aerosols have the power to warm the stratosphere, cooling the troposphere by reflecting solar radiation. Since the Pinatubo eruption in 1991, which resulted in a global cooling of 0.4°C, observations have shown that the stratosphere has been regularly impacted by volcanic eruptions of moderate magnitude on a hemispheric scale, but that these events have been less well documented in the tropics. During our research, we carried out simulations by the global model WACCM-CARMA, including chemical and microphysical cycles of Sulphur to study the variability of stratospheric aerosol content in the tropics over the period 2013-2019. The simulations show that the volcanic events of the period (Kelud, Calbuco, Ambae, Raikoke and Ulawun) have significantly influenced the aerosol layer in the tropics, either by direct injection or by transport from distant latitudes.

Keywords : Aerosols, lower Stratosphere, upper Troposphere, Climate, Ozone chemistry, pollution, modeling



Laboratoire LPC2E, 3A Avenue de la
Recherche Scientifique , 45071 Orléans

