



**UNIVERSITÉ DE LILLE**

**FACULTÉ DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

**École doctorale** : Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

**Unité de Recherche** : Laboratoire d'Optique Atmosphérique – LOA UMR 8518

**Thèse présentée par Alexandre SIMÉON**

Pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de Lille

**Discipline** : Optique et Lasers, Physico-Chimie, Atmosphère

---

**Modélisation régionale et télédétection spatiale des propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse dans la région de l'Atlantique Sud-Est**

---

Soutenue publiquement le 09 octobre 2020 devant le jury composé de :

|                      |                        |              |                     |
|----------------------|------------------------|--------------|---------------------|
| BOUCHER Olivier      | Directeur de Recherche | CNRS, IPSL   | Rapporteur          |
| CHIAPELLO Isabelle   | Chargée de Recherche   | CNRS, LOA    | Directrice de thèse |
| DUBOVIK Oleg         | Directeur de Recherche | CNRS, LOA    | Examineur           |
| FLAMANT Cyrille      | Directeur de Recherche | CNRS, LATMOS | Examineur           |
|                      |                        |              | Président du jury   |
| MALLET Marc          | Chargé de Recherche    | CNRS, CNRM   | Rapporteur          |
| PÉRÉ Jean-Christophe | Maître de Conférences  | LOA          | Co-encadrant        |
| TURQUETY Solène      | Professeur             | LMD          | Examinatrice        |
| WAQUET Fabien        | Maître de Conférences  | LOA          | Co-encadrant        |
| YON Jérôme           | Maître de Conférences  | CORIA        | Invité              |



# Résumé

L'absorption des aérosols est une propriété clé pour évaluer les impacts radiatifs des aérosols, tant directs que sur les propriétés des nuages, sur le climat à l'échelle régionale. Des études récentes ont montré que certains composés d'aérosols organiques (OC), appelés « carbone brun » (BrOC), émis principalement par la combustion de biomasse, peuvent absorber de manière significative le rayonnement solaire dans le spectre ultraviolet-visible-proche infrarouge. L'objectif principal de ce travail est d'améliorer la représentation des propriétés d'absorption des aérosols dans les modèles de climat régionaux. Nous nous concentrons sur les panaches de particules de feux de biomasse transportés au-dessus des nuages dans la région de l'Atlantique Sud-Est, au large de la côte ouest de l'Afrique. C'est une région présentée comme un laboratoire naturel pour mieux comprendre la complexité des interactions aérosol-nuage. La méthodologie repose sur des simulations numériques régionales d'aérosols à partir du modèle couplé météorologie-chimie WRF-Chem, combinées à un inventaire détaillé des émissions de feux de biomasse et à différents ensembles d'observations innovants de télédétection des aérosols, à la fois par ciel clair et nuageux à partir du capteur spatial POLDER-3/PARASOL. La littérature actuelle indique que le carbone brun absorbe plus efficacement le rayonnement UV-bleu que le carbone suie pur (BC). L'idée est d'exploiter cette spécificité en comparant la dépendance spectrale de l'albédo de simple diffusion issue des observations POLDER-3 dans la gamme de longueurs d'onde 443-1 020 nm avec celle simulée pour différentes proportions de BC, OC et BrOC. Ces tests de sensibilité reposent sur deux principales contraintes : le maintien d'une épaisseur optique aérosol par ciel dégagé/au-dessus des nuages et d'un rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$  réalistes. Des expériences de modélisation sont présentées et discutées afin de fournir de nouvelles estimations de la teneur en carbone suie, carbone organique et carbone brun dans les panaches d'aérosols de feux de biomasse africains transportés dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

Mots clés : aérosols de feux de biomasse africaine, propriétés d'absorption, carbone brun, modélisation régionale, télédétection spatiale, Atlantique Sud-Est





# Abstract

Aerosol absorption is a key property to assess aerosol radiative impacts, both direct and on cloud properties, on regional climate. Recent studies have shown that some aerosol organic compounds (OC) called "brown carbon" (BrOC), mainly emitted by biomass burning, can absorb radiation significantly in the ultraviolet-visible-near-infrared spectrum. The main objective of this work is to improve the representation of the absorption properties of aerosols in regional climate models. We focus on biomass burning particles plumes transported above clouds in the Southeast Atlantic region, off the west coast of Africa. This is a region highlighted as a natural laboratory to better understand the complexity of aerosol-cloud interactions. The methodology relies on regional aerosol numerical simulations from the coupled meteorology-chemistry WRF-Chem model combined with a detailed state-of-the-art biomass burning emission inventory and different sets of innovative aerosol remote sensing observations, both in clear and cloudy skies from the POLDER-3/PARASOL satellite sensor. Current literature indicates that brown carbon absorbs more efficiently UV-blue radiation than pure black carbon (BC). The idea is to exploit this specificity by comparing the spectral dependence of the single scattering albedo retrieved from POLDER-3 observations in the 443-1,020 nm to the one simulated for different proportions of BC, OC and BrOC. Two main constraints are used to build up these sensitivity tests: keeping realistic clear-sky/above-cloud aerosol optical thickness and BC-to-OC mass ratio. Modeling experiments are presented and discussed to provide new estimates of the black, organic and brown carbon contents in the African biomass burning aerosol plumes transported over the Southeastern Atlantic region.

Keywords: African biomass burning aerosols, absorption properties, brown carbon, regional modelling, satellite remote sensing, Southeast Atlantic



# Remerciements

Il est temps pour moi de finaliser la rédaction de ce manuscrit de thèse en remerciant toutes les personnes qui m'ont permis de mener cette thèse à son terme. J'espère n'oublier personne, auquel cas, veuillez m'en excuser.

Tout d'abord, je remercie chaleureusement ma directrice de thèse, Isabelle Chiapello, Chargée de Recherche au LOA, et mes deux encadrants de thèse, Jean-Christophe Péré et Fabien Waquet, Maîtres de Conférences au LOA, pour leur gentillesse, leur disponibilité, leur aide, leur écoute et leur compréhension. Je suis ravi d'avoir travaillé en leur compagnie car ils ont toujours été là pour me soutenir et me conseiller tout au long de cette thèse grâce à leur expertise scientifique et technique de haut niveau. Je les remercie notamment pour les nombreuses relectures et corrections du manuscrit qui m'ont permis de le parfaire.

J'adresse également mes remerciements à Frédéric Parol, Directeur du LOA lors de mon arrivée au laboratoire, pour son accueil et pour les bonnes conditions de travail.

Je remercie grandement le Labex CaPPa et l'Université de Lille pour le soutien financier de ma thèse.

Je remercie cordialement Olivier Boucher, Directeur de Recherche à l'IPSL, et Marc Mallet, Chargé de Recherche au CNRM, qui m'ont fait l'honneur d'être rapporteurs de ma thèse et qui m'ont permis d'envisager mon travail sous un autre angle grâce à leurs remarques et suggestions pertinentes.

J'exprime ma gratitude à Cyrille Flamant, Directeur de Recherche au LATMOS, à Oleg Dubovik, Directeur de Recherche au LOA, et à Solène Turquety, Professeure au LMD, qui ont accepté d'être examinateurs de ma thèse et pour l'appréciation scientifique de mes travaux de thèse. En particulier, je remercie Cyrille Flamant qui a bien voulu être Président du jury lors de ma soutenance de thèse.

Je tiens à remercier personnellement Jérôme Yon, Maître de Conférences au CORIA et mon Maître de stage de Master 2, pour m'avoir inculqué les premières connaissances sur la thématique des aérosols et pour avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Merci à toute l'équipe informatique du LOA, Christine Deroo, Romain de Filippi, Jean-Jacques Marécaille, François Thieuleux et Fabrice Ducos, pour les échanges instructifs, leur aide et les débogages, entre autres.

Merci à Anne Priem et Marie-Lyse Liévin pour leur bonne humeur quotidienne et pour leur grande aide sur les questions et les démarches administratives.

Merci à tous les collègues du LOA qui ont facilité mon intégration au sein du laboratoire et pour la bonne ambiance générale rendant le travail plus agréable au quotidien.

Merci à Rouba, camarade de bureau et de thèse, pour nos échanges, nos bons moments, nos « quelques » fous rires et le soutien dans les moments difficiles.

Mes derniers remerciements vont à ma famille qui a tout fait pour m'aider, qui m'a toujours soutenu et supporté dans tout ce que j'ai entrepris. Enfin, un grand merci aussi à mes amis lillois, normands et oisiens pour les bonnes soirées passées ensemble qui m'ont aidé à décompresser et à déstresser notamment en fin de thèse.

# Table des matières

|                                                                                                 |           |
|-------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>Table des matières .....</b>                                                                 | <b>8</b>  |
| <b>1 Contexte et objectifs scientifiques.....</b>                                               | <b>12</b> |
| 1.1 Les aérosols de feux de biomasse.....                                                       | 12        |
| 1.2 Problématique.....                                                                          | 16        |
| 1.3 Objectifs et structure de la thèse .....                                                    | 22        |
| <b>2 Généralités sur les aérosols atmosphériques .....</b>                                      | <b>24</b> |
| 2.1 Cycle des aérosols .....                                                                    | 24        |
| 2.1.1 Sources et mécanismes de formation.....                                                   | 24        |
| 2.1.2 Processus de vieillissement et dépôts .....                                               | 26        |
| 2.2 Propriétés chimiques et microphysiques des aérosols .....                                   | 27        |
| 2.2.1 Composition chimique .....                                                                | 27        |
| 2.2.2 Distribution en taille.....                                                               | 30        |
| 2.3 Propriétés optiques des aérosols .....                                                      | 35        |
| 2.3.1 Indice de réfraction .....                                                                | 35        |
| 2.3.2 Extinction, diffusion et absorption du rayonnement par les particules atmosphériques      | 37        |
| 2.3.3 Épaisseur optique aérosol .....                                                           | 39        |
| 2.3.4 Albédo de simple diffusion.....                                                           | 39        |
| 2.3.5 Fonction de phase et paramètre d'asymétrie.....                                           | 43        |
| 2.4 Propriétés radiatives des aérosols.....                                                     | 45        |
| 2.4.1 Effet radiatif direct .....                                                               | 46        |
| 2.4.2 Effets radiatifs semi-directs.....                                                        | 48        |
| 2.4.3 Effets radiatifs indirects .....                                                          | 49        |
| <b>3 Méthodologie basée sur les outils d'observations satellitaires et de modélisation.....</b> | <b>52</b> |
| 3.1 Données d'observations satellitaires .....                                                  | 52        |
| 3.1.1 Introduction sur les méthodes de télédétection .....                                      | 52        |
| 3.1.2 Télédétection passive et active : l'A-Train.....                                          | 56        |
| 3.1.3 La mission PARASOL .....                                                                  | 59        |
| 3.1.3.1 Le polarimètre POLDER-3.....                                                            | 59        |
| 3.1.3.2 Restitution des propriétés des aérosols en ciel clair par POLDER-3/GRASP .....          | 62        |
| 3.1.3.3 Restitution des propriétés des aérosols au-dessus des nuages par POLDER-3/AERO-AC ..... | 64        |
| 3.1.4 Caractérisations des aérosols et des nuages par le lidar CALIOP .....                     | 69        |
| 3.1.5 Sensibilité des aérosols absorbants dans l'ultraviolet par OMI/OMAERUV .....              | 71        |
| 3.2 WRF-Chem : modèle régional de météorologie couplée à la chimie .....                        | 73        |
| 3.2.1 Présentation générale .....                                                               | 74        |
| 3.2.2 Initialisation de la météorologie.....                                                    | 77        |
| 3.2.3 Initialisation de la chimie .....                                                         | 78        |
| 3.2.4 Mécanismes physico-chimiques des aérosols et des gaz traces .....                         | 80        |
| 3.2.5 Calcul des propriétés radiatives des aérosols .....                                       | 85        |

|            |                                                                                                                               |            |
|------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| 3.2.6      | Paramètres météorologiques et propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols et des nuages en sortie de WRF-Chem ..... | 88         |
| 3.2.7      | Configuration technique du modèle numérique WRF-Chem pour l'étude .....                                                       | 90         |
| <b>3.3</b> | <b>Post-traitement des simulations numériques de WRF-Chem.....</b>                                                            | <b>95</b>  |
| 3.3.1      | Procédé .....                                                                                                                 | 95         |
| 3.3.2      | Estimateurs statistiques utilisés pour l'évaluation des simulations numériques du modèle WRF-Chem.....                        | 96         |
| 3.3.3      | Approche scientifique .....                                                                                                   | 97         |
| <b>4</b>   | <b>Évaluations des simulations numériques : mise en place de la configuration de référence de WRF-Chem.....</b>               | <b>100</b> |
| <b>4.1</b> | <b>Évaluation de l'épaisseur optique aérosol totale (AOD) en ciel clair .....</b>                                             | <b>100</b> |
| 4.1.1      | Cadastre d'émissions de feux de biomasse africaine .....                                                                      | 100        |
| 4.1.2      | De la configuration de base de WRF-Chem à la configuration de référence.....                                                  | 102        |
| <b>4.2</b> | <b>Évaluation de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages (ACAOD).105</b>                                             |            |
| 4.2.1      | Transport horizontal et vertical du panache d'aérosols de feux de biomasse .....                                              | 106        |
| 4.2.1.1    | Altitude du sommet des nuages d'eau liquide .....                                                                             | 106        |
| 4.2.1.2    | Hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse.....                                                                     | 113        |
| 4.2.1.3    | Distribution verticale des aérosols et des nuages.....                                                                        | 115        |
| 4.2.2      | Contenu des aérosols transportés au-dessus des nuages.....                                                                    | 117        |
| <b>4.3</b> | <b>Taille, composition chimique et absorption des aérosols en ciel clair et au-dessus des nuages .....</b>                    | <b>118</b> |
| 4.3.1      | Taille des aérosols .....                                                                                                     | 118        |
| 4.3.2      | Composition chimique des aérosols.....                                                                                        | 122        |
| 4.3.3      | Absorption des aérosols.....                                                                                                  | 127        |
| <b>4.4</b> | <b>Conclusions .....</b>                                                                                                      | <b>130</b> |
| <b>5</b>   | <b>Étude des propriétés d'absorption du panache d'aérosols de feux de biomasse.....</b>                                       | <b>132</b> |
| <b>5.1</b> | <b>Mise en place des tests de sensibilité .....</b>                                                                           | <b>132</b> |
| 5.1.1      | Rapport de mélange en aérosols carbonés .....                                                                                 | 133        |
| 5.1.2      | Indice de réfraction du carbone suie (BC).....                                                                                | 134        |
| 5.1.3      | Présence et indice de réfraction du carbone brun (BrOC).....                                                                  | 137        |
| <b>5.2</b> | <b>Étude de la dépendance spectrale des propriétés optiques des aérosols .....</b>                                            | <b>139</b> |
| 5.2.1      | Sensibilité à la composition des aérosols de feux de biomasse .....                                                           | 139        |
| 5.2.2      | Analyse des données OMI/OMAERUV coïncidentes .....                                                                            | 145        |
| 5.2.3      | Généralisation des tests de sensibilité.....                                                                                  | 148        |
| 5.2.3.1    | Premier jeu de simulations numériques .....                                                                                   | 151        |
| 5.2.3.2    | Second jeu de simulations numériques.....                                                                                     | 155        |
| <b>5.3</b> | <b>Analyse de la configuration optimisée de WRF-Chem .....</b>                                                                | <b>161</b> |
| 5.3.1      | Sur la période 1-15 juillet 2008 .....                                                                                        | 161        |
| 5.3.2      | Sur la période juillet-septembre 2008 .....                                                                                   | 168        |
| <b>5.4</b> | <b>Conclusions .....</b>                                                                                                      | <b>170</b> |
| <b>6</b>   | <b>Conclusions et perspectives.....</b>                                                                                       | <b>172</b> |
| <b>6.1</b> | <b>Synthèse générale.....</b>                                                                                                 | <b>172</b> |
| <b>6.2</b> | <b>Applications et voies d'améliorations .....</b>                                                                            | <b>176</b> |
| <b>7</b>   | <b>Annexes .....</b>                                                                                                          | <b>178</b> |

|     |                                                                                                                                     |     |
|-----|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 7.1 | Annexe A1 : incertitudes associées à l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) restitué par POLDER-3/GRASP en ciel clair..... | 178 |
| 7.2 | Annexe A2 : étalonnage du polarimètre POLDER-3.....                                                                                 | 182 |
| 7.3 | Annexe B : résultats et discussion du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem .....                                       | 184 |
| 7.4 | Annexe C : résultats et discussion du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem .....                                        | 192 |
| 7.5 | Annexe D (supplément) : résultats du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem .....                                        | 200 |
| 7.6 | Annexe E (supplément) : résultats du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem .....                                         | 210 |
| 8   | <i>Bibliographie</i> .....                                                                                                          | 220 |





# 1 Contexte et objectifs scientifiques

## 1.1 Les aérosols de feux de biomasse

2019 est considérée par les scientifiques du programme Européen de surveillance de la Terre Copernicus (CAMS, pour Copernicus Atmosphere Monitoring Service, mis en œuvre par le Centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme, CEPMMT) comme une année exceptionnellement active au niveau de l'activité des feux de forêts à l'échelle mondiale<sup>1</sup>. Les incendies en Amazonie, en Indonésie, en Arctique et en Australie ont particulièrement marqué l'actualité de 2019 en raison de leur intensité exceptionnelle, de leur étendue remarquable et de leur impact sanitaire inhabituellement fort. En particulier, les feux de forêt australienne qui ont débuté en juin 2019 ont fait la une des journaux du monde entier jusqu'en février 2020, à cause de la poursuite des incendies favorisée par la sécheresse marquée et de la destruction sans précédent de la faune et de la flore locales.

Les feux de biomasse correspondent au brûlage de tout type de végétations mortes ou vivantes et comprennent par exemple, les feux de forêts, de savanes, de prairies et les cultures agricoles (Andreae, 1991 ; Andreae et Merlet 2001). La combustion de la biomasse est considérée comme l'une des plus grandes sources d'émissions d'espèces gazeuses et d'aérosols dans l'atmosphère (Andreae, 2019 ; Pan et al. 2019). En effet, les feux de biomasse sont la principale source d'émissions d'aérosols carbonés en contribuant annuellement à environ 85 % des émissions mondiales de carbone organique primaire (OC) et à 59 % de celles de carbone suie (BC) (Bond et al. 2013). Les feux de biomasse sont aussi la deuxième source mondiale de gaz organiques non méthaniques aussi appelés composés organiques volatils (COV) (Yokelson et al. 2008 ; Akagi et al. 2011). La combustion à ciel ouvert telle que le défrichage ou le brûlage des résidus de cultures représente à elle seule environ un tiers à la moitié des émissions mondiales de monoxyde de carbone (CO) et 20 % des oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) émis (Olivier et al. 2005 ; Wiedinmyer et al. 2011). Elle génère également d'importantes quantités de gaz à effet de serre comme le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), le méthane (CH<sub>4</sub>) et le protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O) (Ciais et al. 2014 ; Tian

---

<sup>1</sup> <https://reporterre.net/2019-niveau-record-des-feux-de-foret-dans-le-monde>

et al. 2016 ; Quéré et al. 2018). Les aérosols de feux de biomasse causent également des problèmes sanitaires très importants pour les populations locales. L'exposition aux fumées des feux de forêt provoque de graves difficultés respiratoires par l'inhalation des  $PM_{2,5}$  qui constituent environ 80 à 90 % des particules contenues dans les fumées produites par la combustion de biomasse (Naeher et al. 2007 ; Dennekamp et al. 2015 ; Reid et al. 2016 ; Knorr et al. 2017 ; Apte et al. 2018), entraînant directement ou indirectement environ 600 000 décès par an à l'échelle mondiale (Johnston et al. 2012).

En plus de leur impacts sanitaires et environnementaux, les feux de biomasse peuvent affecter l'équilibre du bilan énergétique terrestre en interagissant avec le rayonnement solaire et tellurique via les processus de diffusion et d'absorption (Solomon et al. 2007 ; Trenberth et al. 2009). Cette perturbation du bilan énergétique peut être positive, si l'absorption par les gaz et particules domine la diffusion, ou négative dans le cas contraire, entraînant respectivement une augmentation ou une réduction de la température de la surface terrestre.

Depuis plusieurs décennies, les modèles numériques de climat sont devenus des outils essentiels pour évaluer les forçages radiatifs (perturbations de l'équilibre énergétique du système terre-atmosphère) des différents gaz à effet de serre et aérosols ainsi que leurs conséquences sur la machine climatique et son évolution future. Cependant, l'influence des aérosols de feux de biomasse, entre autres, est encore mal prise en compte dans ces modèles de climat régionaux et globaux, du fait notamment de la distribution spatio-temporelle très hétérogène des feux et de leur puissance très variable. En effet, de grandes incertitudes persistent concernant l'intensité des incendies, leur localisation, leur durée, le type de combustion (rapide avec flammes ou lente sans flammes) et les espèces végétales brûlées (Hyer et al. 2011). À l'heure actuelle, les incertitudes sur les estimations des quantités globales de carbone émises annuellement par les feux de biomasse restent bien trop élevées, d'environ un facteur 3, malgré des systèmes d'observations de plus en plus élaborés (Ichoku et Ellison 2014 ; Chuvieco et al. 2016 ; van der Werf et al. 2017 ; Andreae 2019 ; Pan et al. 2019). Ces données d'émissions de feux de biomasse, souvent sous forme d'inventaires, sont des paramètres d'entrée cruciaux dans les modèles de

chimie-transport et de circulation atmosphérique pour simuler leur cycle de vie et leurs effets sur le climat (Marle et al. 2017 ; Andreae, 2019 ; Pan et al. 2019 ; Penner, 2019).

La figure 1.1 montre le degré d'incertitude actuel sur le réchauffement de la planète induit par les gaz à effets de serre, qui réchauffent l'atmosphère en absorbant et réémettant vers la surface le rayonnement tellurique (rayonnement thermique dans l'infrarouge) émis par la Terre vers l'espace. En effet, comme illustré sur cette figure, l'effet global de refroidissement des aérosols (par exemple, poussières désertiques, embruns marins, fumées d'industries et de feux de forêts et agricoles), provoqué par la diffusion majoritaire du rayonnement solaire, peut atténuer en partie l'effet de réchauffement des gaz à effet de serre (Myhre et al. 2013b). À l'échelle globale, ce potentiel effet d'atténuation des aérosols sur l'élévation de la température de la Terre, est encore mal connu, l'incertitude résidant dans la quantification de leur capacité de refroidissement (Penner, 2019).

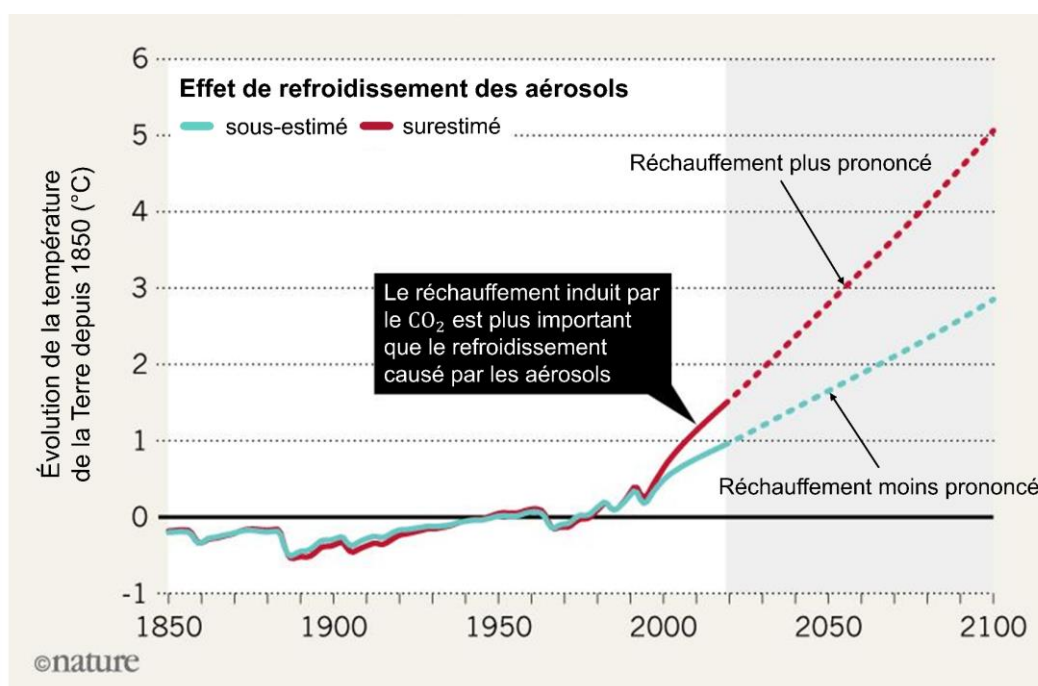


Figure 1.1 : Évolution du changement de la température de la Terre depuis 1850 causé par l'accroissement des gaz à effets de serre et incertitudes futures liées à la contribution des aérosols. L'effet global de refroidissement des aérosols serait insuffisant pour compenser l'effet global de réchauffement du CO<sub>2</sub> qui pourrait être sous-estimé selon l'intensité du refroidissement des aérosols. Adapté de Penner (2019).

Si cet effet de refroidissement des aérosols a été surestimé dans le dernier rapport d'évaluation du climat (AR5) du GIEC (Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat) (Myhre et al. 2013b) alors l'effet de réchauffement des gaz à effet de serre pourrait potentiellement être sous-estimé. L'augmentation future de la

température terrestre pourrait donc être plus importante (courbe rouge sur la figure 1.1) et atteindre +3.5 °C (+5 °C) à la fin du siècle par rapport à l'année 2019 (période 1950-1980). En revanche, si l'impact des aérosols est sous-estimé ou bien tel qu'estimé, alors l'élévation future de la température pourrait être moins importante en 2100 (courbe bleue sur la figure 1.1) et serait d'environ +2 °C (+3 °C) par rapport à 2019 (période 1950-1980). Dans tous les cas, le refroidissement global causé par les aérosols semble insuffisant pour compenser le réchauffement global induit par les gaz à effet de serre. Nous comprenons donc que les incertitudes qui pèsent aujourd'hui sur l'évaluation des impacts climatiques des aérosols doivent être considérablement réduites par rapport au niveau de connaissances actuel pour permettre des projections fiables du climat futur.

Parmi les différents processus mis en jeu, les effets radiatifs des aérosols dans les scènes nuageuses restent particulièrement mal appréhendés. Par exemple, le niveau de confiance associé aux interactions aérosol-nuage est qualifié de faible dans le rapport AR5 du GIEC (Myhre et al. 2013b). Cette désignation signifie que les mécanismes physico-chimiques sont encore mal compris en raison de leur diversité et de leur complexité. Depuis les années 2000, des exercices d'inter-comparaisons entre les modèles numériques de projections climatiques utilisés par le GIEC et les observations terrestres et satellitaires sont réalisés dans le cadre du projet AeroCom (AEROSol model interCOMparison) (Huneus et al. 2011 ; Myhre et al. 2013a ; Bian et al. 2017). Le but de ces activités internationales de recherche est, d'une part de comprendre les raisons de la diversité des résultats issus des différents modèles numériques, et d'autre part d'améliorer la représentation des processus, notamment ceux liés aux interactions entre les aérosols et les nuages dans ces modèles de climat. L'objectif final concernant les aérosols est de réduire significativement les incertitudes sur leurs forçages radiatifs afin d'apporter une réponse plus précise quant à leur rôle sur le climat. En effet, les modèles de climat nécessitent de bien représenter (Keil et Haywood 2003 ; Samset et al. 2013) :

- les répartitions horizontales et verticales des aérosols, leur quantité, leur degré d'absorption et de diffusion, leur taille, leur composition chimique ainsi que leur cycle de vie complet (émission, transport, élimination) ;

- le nombre et la taille des gouttelettes d'eau, le contenu en eau liquide, l'épaisseur optique et l'épaisseur géométrique des nuages ;
- les rétroactions des aérosols sur les nuages : diminution ou augmentation du couvert nuageux, renforcement ou suppression des précipitations, durée de vie.

## 1.2 Problématique

La région de l'Atlantique Sud-Est est un excellent laboratoire naturel pour mieux comprendre la complexité des interactions aérosol-nuage (Keil et Haywood 2003 ; Stier et al. 2013 ; Peers et al. 2016 ; Zuidema et al. 2016a ; Zuidema et al. 2016b). Ce domaine d'intérêt, matérialisé par le cadre rouge sur la figure 1.2, inclut le sud-est de l'océan Atlantique et les parties ouest et sud de l'Afrique.

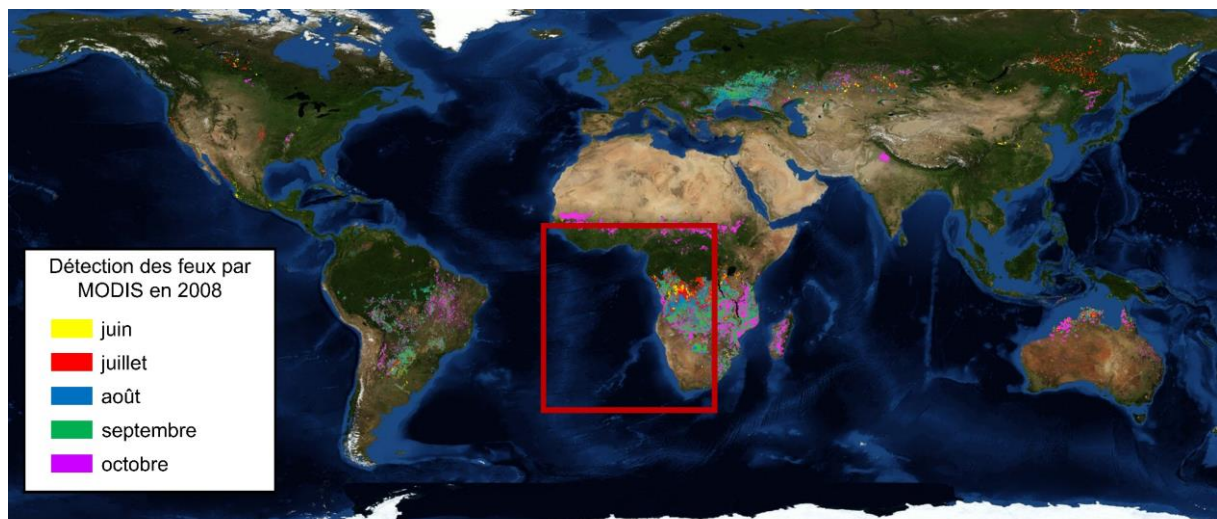


Figure 1.2 : Carte mondiale de détection des feux par l'instrument MODIS sur la période juin-octobre 2008. Le cadre rouge matérialise la région de l'Atlantique Sud-Est. Crédits : NASA.

La région de l'Atlantique Sud-Est est une zone clé pour l'étude des impacts des aérosols absorbants sur le climat pour plusieurs raisons. L'Afrique constitue environ la moitié des émissions globales annuelles de carbone produit par les feux de biomasse (Giglio et al. 2003 ; Giglio 2006 ; Giglio et Randerson 2010 ; Reid et al. 2009 ; Werf et al. 2010). Ceci en fait donc un domaine d'étude d'importance pour dresser le bilan global des émissions gazeuses et particulaires générées par les feux de biomasse (mais aussi des aérosols marins et des aérosols désertiques présents dans cette région). En particulier, la question de l'absorption du rayonnement solaire par les

aérosols de feux de biomasse est une problématique scientifique importante dans cette région du monde (Eck et al. 2013). Ces feux de biomasse sont majoritairement d'origine anthropique (déforestation, pratiques agricoles et domestiques). Les activités humaines de brûlage fréquentes et de grande ampleur ont lieu chaque année, principalement dans le centre, l'est et le sud du continent africain, durant la saison sèche qui s'étend de juin à octobre dans la partie sud de l'Afrique (Roberts et al. 2009). Les aérosols de feux de biomasse régulièrement émis depuis ces zones sources sont ensuite transportés au-dessus de l'océan Atlantique sud oriental au-dessus de l'une des trois plus grandes couches persistantes de stratocumulus de la planète (Costantino et Bréon 2013). Ce transport à longue distance est favorisé par la circulation anticyclonique qui est dominante au cours de la saison sèche avec le transport des masses d'air vers l'ouest sur sa périphérie nord (Cahoon et al. 1992 ; Garstang et al. 1996 ; Swap et al. 1996).

Comme l'indique le tableau 1.1, des programmes de recherches internationaux ont été mis en place dès les années 1990 (SAFARI-1992) et jusqu'à très récemment autour de l'Afrique australe. La campagne de terrain SAFARI-2000 a en particulier fourni un ensemble de mesures aéroportées et sol des propriétés d'absorption des aérosols dans la région de l'Afrique du Sud, via notamment leur albédo de simple diffusion, les valeurs les plus faibles correspondant aux absorptions les plus fortes. L'albédo de simple diffusion des aérosols, en moyenne régionale et durant la saison des feux de biomasse, a pu être ainsi estimé à  $0.85 \pm 0.02$  à 550 nm, confirmant le caractère très absorbant des aérosols de feux de végétation de cette région (Leahy et al. 2007). Néanmoins, avec ces campagnes pionnières, certaines questions concernant la dépendance spectrale (variation avec la longueur d'onde) de l'absorption des aérosols, ou son évolution durant le transport des aérosols n'ont pas été résolues (Formenti et al. 2019). Les observations de SAFARI-2000 ont également mis en évidence que ces aérosols absorbants pouvaient exercer un forçage radiatif direct positif au-dessus des nuages (Keil et Haywood, 2003). D'après la définition générale donnée par le GIEC, le forçage radiatif direct est la différence des flux radiatifs (en  $W.m^{-2}$ ) à un niveau spécifié de l'atmosphère entre un état initial (par exemple, en l'absence d'aérosols) et un état perturbé (par exemple, en présence d'aérosols).

| <b>Campagne</b> | <b>Période</b>         | <b>Région</b>                                   | <b>Objectifs scientifiques</b>                                                            | <b>Référence</b>                            |
|-----------------|------------------------|-------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------|
| SAFARI-1992     | Août -sept. 1992       | Afrique du Sud                                  | Caractériser les aérosols de feux de biomasse                                             | Lindesay et al. (1996)                      |
| SAFARI-2000     | Août -sept. 2000       | Afrique du Sud et Namibie                       | Caractériser les aérosols de feux de biomasse                                             | Swap et al. (2002)<br>Haywood et al. (2003) |
| ORACLES         | Août -sept. 2016       | Namibie                                         |                                                                                           |                                             |
|                 | Juill. -août 2017      | Océan Atlantique autour de Sao Tomé             | Caractériser les aérosols de feux de biomasse                                             | Zuidema et al. (2016b)                      |
|                 | Sept. -oct. 2018       | Océan Atlantique autour de Sao Tomé             |                                                                                           |                                             |
| CLARIFY         | Août -sept. 2017       | Océan Atlantique autour de l'Île de l'Ascension | Caractériser les aérosols de feux de biomasse                                             | Zuidema et al. (2016b)                      |
| LASIC           | Juill. 2016 -oct. 2017 | Île de l'Ascension                              | Caractériser les aérosols de feux de biomasse                                             | Zuidema et al. (2016b)                      |
| DACCIWA         | Juin-juill. 2016       | Afrique de l'Ouest                              | Caractériser les aérosols de feux de biomasse                                             | Flamant et al. (2017)                       |
| NaFoLiCA        | sept. 2017             | Namibie                                         | Caractériser l'évolution spatiale et temporelle des brouillards dans la région namibienne | Andersen et Cermak (2018)                   |
| AEROCLO-sA      | Août -sept. 2017       | Namibie                                         | Caractériser la couche limite marine et les aérosols de feux de biomasse                  | Formenti et al. (2019)                      |

*Tableau 1.1 : Liste des principales campagnes de terrain dédiées à l'étude des aérosols en Afrique australe et de l'Ouest. Source : Formenti et al. (2019).*

Comme le montre le tableau 1.1, plus récemment, au cours de la période 2016-2018, plusieurs nouvelles campagnes d'observations ont été mises en place pour progresser dans la caractérisation des aérosols de feux de biomasse de cette région, et mieux comprendre leurs interactions avec les nuages et leurs effets radiatifs. Ces campagnes de terrain sont à l'initiative de différentes équipes internationales, avec en particulier les projets américains ORACLES (ObseRVations of Aerosols above CLouds and their intEractionS) et anglais CLARIFY (CLoud-Aerosol-Radiation Interactions and Forcing). Les équipes françaises ont mené une campagne de terrain sur la côte Atlantique namibienne durant l'été 2017, dans le cadre de l'ANR AEROCLO-sA, déployant un

ensemble de mesures sol et aéroportées (Formenti et al. 2019). Cet effort international coordonné pour fournir un ensemble complet de mesures sol et aéroportées des propriétés des aérosols et des nuages dans la région de l'Afrique australe et de l'Atlantique sud-tropical a pour objectif de contribuer à réduire les incertitudes sur l'impact climatique des aérosols estimé par les modèles numériques actuels dans cette région.

Les observations satellitaires, du fait de leurs couvertures mondiales quotidiennes du globe terrestre, sont des outils essentiels pour caractériser les propriétés optiques et microphysiques des aérosols en ciel clair et au-dessus des nuages (Tanré et al. 2011). En effet, les propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols et des nuages demeurent des paramètres encore mal estimés dans les modèles climatiques (figure 1.3). La figure 1.3 présente l'épaisseur optique d'extinction des aérosols, ACAOD (Above Cloud Aerosol Optical Depth, a), et leur albédo de simple diffusion, ACSSA (Above Cloud Single Scattering Albedo, b), restitués à 550 nm au-dessus des nuages par le capteur spatial POLDER-3/PARASOL et simulés par cinq modèles climatiques globaux du GIEC. Ces deux propriétés optiques sont moyennées sur la période août-septembre 2006 dans la région de l'Atlantique Sud-Est. L'épaisseur optique d'extinction (AOD) quantifie l'atténuation du rayonnement solaire par une couche d'aérosols sur la verticale et est donc proportionnelle à la concentration des aérosols sur la colonne atmosphérique. L'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) renseigne sur leurs propriétés d'absorption, les valeurs les plus faibles correspondant aux absorptions les plus fortes.



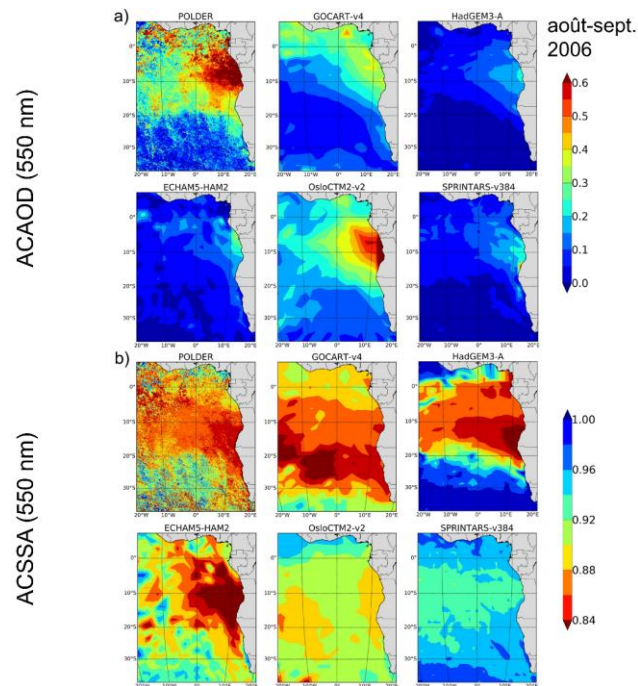


Figure 1.3 : Épaisseur optique aérosol, ACAOD (a), et albédo de simple diffusion, ACSSA (b), restitués à 550 nm au-dessus des nuages par le capteur spatial POLDER-3 et simulés par cinq modèles climatiques globaux utilisés par le GIEC dans la région de l'Atlantique Sud-Est. Moyenne temporelle sur la période août-septembre 2006. Source : Peers et al. (2016).

La figure 1.3 nous montre clairement les difficultés de ces modèles numériques à bien représenter à la fois le contenu des aérosols et leurs propriétés d'absorption au-dessus des nuages. Par exemple, en comparaison avec le capteur spatial POLDER-3, le modèle OsloCTM2-v2 simule bien l'ACAOD au niveau de l'intensité et de la distribution géographique mais surestime l'ACSSA avec des aérosols trop diffusants à 550 nm. Inversement, le modèle HadGEM3-A simule correctement l'ACSSA au niveau de l'intensité et de la distribution géographique mais sous-estime d'un facteur 3 environ l'ACAOD à 550 nm.

Les différences entre ces modèles de climat au niveau du contenu des aérosols et de leurs propriétés d'absorption se traduisent par de fortes incertitudes dans l'estimation de leurs forçages radiatifs (Boucher et al. 2013 ; Myhre et al. 2013b), en particulier dans cette région de l'Atlantique Sud-Est (Stier et al. 2013). La figure 1.4 montre effectivement la grande variabilité des valeurs du forçage radiatif direct des aérosols simulé au sommet de l'atmosphère (tout type de ciel) dans cette région du monde.

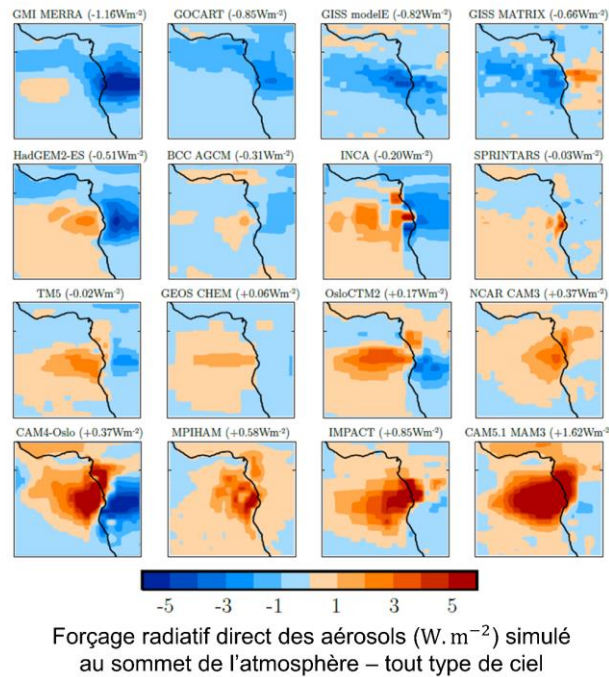


Figure 1.4 : Estimations du forçage radiatif direct des aérosols au sommet de l'atmosphère (tout type de ciel) par seize modèles numériques du projet AeroCom dans la région de l'Atlantique Sud-Est. Moyenne temporelle sur la période août-septembre 2006. Sources : Stier et al. (2013), Zuidema et al. (2016b).

Nous pouvons observer sur la figure 1.4 de gros écarts au sein du panel de modèles numériques présentés. Les quantités, calculées au sommet de l'atmosphère, sont comprises entre  $-1.16 \text{ W.m}^{-2}$  pour le modèle GMI MERRA traduisant un effet de refroidissement (perte d'énergie) et  $+1.62 \text{ W.m}^{-2}$  pour le modèle CAM5.1 MAM3 traduisant un effet de réchauffement (gain d'énergie) de l'atmosphère. En raison de ces incertitudes élevées, qui concernent le signe même de l'effet radiatif des aérosols, la région de l'Atlantique Sud-Est a fait l'objet et continue de faire l'objet de nombreuses études et publications scientifiques se concentrant sur les interactions aérosol-rayonnement et aérosol-nuage, ainsi que leurs impacts climatiques (Wilcox, 2012 ; Meyer et al. 2013 ; de Graaf et al. 2014 ; Peers et al. 2016 ; Zuidema et al. 2016b). Malgré ces nombreux travaux, les modèles numériques de climat associés à des techniques de mesures avancées éprouvent encore des difficultés à bien représenter la complexité de la dynamique météorologique, de la chimie atmosphérique et leurs interactions dans cette région du monde (Evans et al. 2018). En effet, les problèmes rencontrés en modélisation dans cette région sont en grande partie liés au faible nombre d'observations disponibles des propriétés radiatives et microphysiques des aérosols et des nuages.

## 1.3 Objectifs et structure de la thèse

Pour apporter des éléments de réponses à cette problématique, dans le cadre de ce travail de thèse, le modèle régional couplé météorologie-chimie WRF-Chem est utilisé pour simuler le cycle de vie des aérosols et leurs impacts sur le climat (Grell et al. 2005 ; Fast et al. 2006 ; Peckham, 2012 ; Powers et al. 2017), dans la région de l'Afrique australe et de l'océan Atlantique sud-oriental. La méthodologie adoptée s'appuie également sur l'expertise du Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA/Lille) en matière de télédétection spatiale, via l'utilisation de données d'observations des aérosols et nuages innovantes, déduites du capteur spatial POLDER-3 :

- en ciel clair (Dubovik et al. 2011, 2014) ;
- au-dessus des nuages (Waquet et al. 2013a ; Waquet et al. 2013b ; Peers et al. 2015).

**Le premier objectif de la thèse** consistera à estimer le plus précisément possible, à la fois le contenu mais aussi les propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse en atmosphère claire et nuageuse dans la région de l'Atlantique Sud-Est durant la saison sèche de l'année 2008.

**Le second objectif de la thèse** consistera à estimer de manière quantitative les contributions du carbone suie (BC), carbone organique (OC) et carbone brun (BrOC) entrant dans la composition du panache d'aérosols de feux de biomasse et jouant un rôle clé sur les propriétés d'absorption des aérosols et l'intensité du forçage radiatif en découlant.

Pour répondre à ces deux objectifs, des tests de sensibilité numériques seront menés avec le modèle WRF-Chem en s'appuyant sur les dépendances spectrales de l'épaisseur optique d'extinction et de l'albédo de simple diffusion de ces aérosols restituées par POLDER-3 dans la gamme spectrale visible-proche infrarouge. Cette approche devrait ainsi contribuer à une meilleure connaissance des propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse notamment au-dessus des nuages. Cette démarche constitue également la première étape vers des évaluations plus précises des effets de ces aérosols absorbants sur le climat.

La structure de ce manuscrit de thèse est la suivante. Après la description du contexte dans lequel s'inscrit ce travail et les objectifs associés, le deuxième chapitre présentera tout d'abord les notions fondamentales sur les aérosols atmosphériques, c'est-à-dire leurs propriétés microphysiques, chimiques et optiques, leur cycle de vie et leurs impacts sur le climat.

Le troisième chapitre décrira de manière détaillée l'approche scientifique mise en place, qui s'appuie sur l'utilisation conjointe des données d'observations satellitaires de l'A-Train et de l'outil numérique de modélisation des aérosols WRF-Chem. Les données aérosols et nuages, issues d'algorithmes innovants développés au LOA, seront en premier lieu présentés. Ensuite, le modèle numérique et son principe général de fonctionnement seront décrits, en mettant notamment l'accent sur le traitement numérique des aérosols de feux de biomasse. La configuration du modèle appliquée pour l'étude sera précisée.

Le quatrième chapitre évaluera les performances générales du modèle à partir de sa configuration de base. Nous étudierons le contenu des aérosols émis depuis le continent africain et transportés au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental ainsi que leurs propriétés d'absorption en atmosphère claire et nuageuse. Les paramètres clés influençant le transport horizontal et vertical des aérosols comme, par exemple, la distribution verticale des aérosols et des nuages ou la hauteur d'injection des aérosols dans l'atmosphère, seront analysés. La taille et la composition chimique des particules qui influent sur l'absorption des aérosols seront aussi étudiées.

Le cinquième chapitre traitera de la mise en place des tests de sensibilité numériques. Ils reposeront notamment sur certains paramètres pouvant influencer les propriétés d'absorption des aérosols tels que le rapport de mélange carboné, l'indice de réfraction du carbone suie et des organiques ou la présence de carbone brun. Les résultats issus de ces expériences de modélisation seront analysés, interprétés et comparés aux mesures satellitaires afin de proposer une configuration optimisée du modèle WRF-Chem pour les aérosols présents dans notre région d'étude.

## 2 Généralités sur les aérosols atmosphériques

**C**e deuxième chapitre est dédié à la description et à la caractérisation des aérosols atmosphériques, de leurs propriétés microphysiques et optiques et de leurs effets sur le climat.

On désigne par aérosols atmosphériques un ensemble de particules liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère, en excluant tous les hydrométéores (gouttelettes d'eau nuageuses, gouttes de pluie, cristaux de glace, flocons de neige, grêle) (Boucher, 2012). Les aérosols atmosphériques sont communément classés selon leurs origines (naturelles ou anthropiques), leurs modes de formation (aérosols primaires ou secondaires), leurs compositions chimiques (aérosols organiques ou inorganiques) et leurs distributions en taille (aérosols fins ou grossiers) (Boucher, 2015).

### 2.1 Cycle des aérosols

#### 2.1.1 Sources et mécanismes de formation

Les aérosols atmosphériques proviennent de sources naturelles et anthropiques. À l'échelle du globe, les aérosols naturels constituent environ 90 % de la masse totale des aérosols émis annuellement contre environ 10 % pour les aérosols produits par les activités humaines (Satheesh et Moorthy 2005 ; Boucher, 2015). Le tableau 2.1 recense les principales espèces d'aérosols naturels et anthropiques, primaires et secondaires ainsi que les estimations de leurs émissions annuelles connues à ce jour.

| Type d'aérosol                                                | Émissions annuelles<br>(Tg. an <sup>-1</sup> ) |
|---------------------------------------------------------------|------------------------------------------------|
| <b>Aérosols primaires</b>                                     |                                                |
| Sels marins                                                   | 1 000-6 000                                    |
| Poussières désertiques                                        | 1 000-3 000                                    |
| Poussières industrielles                                      | 40-130                                         |
| Carbone suie                                                  |                                                |
| <i>Issu des feux de biomasse</i>                              | 3-14                                           |
| <i>Issu des combustibles fossiles</i>                         | 6-10                                           |
| Carbone organique                                             |                                                |
| <i>Issu de la biomasse</i>                                    | 16-72                                          |
| <i>Issu des combustibles fossiles</i>                         | 20-30                                          |
| <b>Aérosols secondaires</b>                                   |                                                |
| Sulfate                                                       |                                                |
| <i>Issu du dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) anthropique</i> | 70-90                                          |
| <i>Issu du sulfure de diméthyle (DMS)</i>                     | 20-40                                          |
| <i>Issu des volcans</i>                                       | 6-20                                           |
| Ammonium                                                      | 20-50                                          |
| Nitrate                                                       |                                                |
| <i>Issu des oxydes d'azote (NO<sub>x</sub>) anthropiques</i>  | 10-19                                          |
| <i>Issu des NO<sub>x</sub> biogéniques</i>                    | 2-8                                            |
| Carbone organique                                             |                                                |
| <i>Issu des composés organiques volatils (COV)</i>            |                                                |
| <i>biogéniques</i>                                            | 8-40                                           |
| <i>Issu des COV anthropiques</i>                              | 0.3-1.8                                        |

Tableau 2.1 : Estimations des émissions annuelles actuelles des principaux types d'aérosols atmosphériques. Sources : Guenther et al. (1995), Penner et al. (2001), Jaenicke (2005), Dentener et al. (2006), Burrows et al. (2009), Heald et Spracklen (2009), Boucher (2015), Seinfeld et Pandis (2016).

Les sources naturelles d'aérosols (figure 2.1) comprennent les émissions provenant des océans (sels, embruns marins, sulfate de diméthyle), des sols (poussières désertiques et terrigènes), de la végétation (pollens, composés organiques volatils, ...) et des volcans (cendres volcaniques, sulfates).



Figure 2.1 : Principaux types d'aérosols naturels. De gauche à droite : poussières désertiques, composés organiques volatils émis par la végétation, fumées produites par les feux de forêts et cendres volcaniques. Crédits : NASA<sup>2</sup>.

<sup>2</sup> <https://earthobservatory.nasa.gov/features/Aerosols>



Les aérosols dits anthropiques sont issus des émissions d'une grande variété d'activités humaines (figure 2.2). Les sources sont largement dominées par les émissions provenant de la combustion de combustibles fossiles (charbon et pétrole), de biocarburants ou d'incendies de végétations causés par l'être humain (fumées de feux de biomasse). Les activités industrielles, le transport, le chauffage ou même les activités domestiques liées à la cuisine sont des sources majeures d'aérosols anthropiques.



Figure 2.2 : Exemples de sources d'émissions d'aérosols anthropiques. Source : RESET.org - Digital for Good<sup>3</sup>.

Les aérosols qui sont émis directement sous forme solide au niveau de la surface océanique ou terrestre sont qualifiés d'aérosols primaires. C'est le cas par exemple des aérosols soulevés par l'effet de l'érosion éolienne sur différents types de surfaces (sels marins, poussières désertiques) et des aérosols produits lors de combustions (carbone suie, aérosols organiques primaires) (Bond et al. 2013).

Les aérosols qui sont issus des processus de conversion gaz-particule sont qualifiés d'aérosols secondaires. Ce sont par exemple les aérosols inorganiques secondaires comme les sulfates, les nitrates ou l'ammonium et les aérosols organiques secondaires. Ils se forment dans l'atmosphère à partir de composés initialement émis sous forme gazeuse, appelés précurseurs d'aérosols (tableau 2.1), qui changent de phase après des processus d'oxydation en fonction des conditions thermodynamiques prévalentes (Kanakidou et al. 2005 ; Boucher 2012, 2015).

### 2.1.2 Processus de vieillissement et dépôts

Une fois injectés dans l'atmosphère, les aérosols sont transportés par le vent tout en subissant, de manière plus ou moins prononcée, un certain nombre de

---

<sup>3</sup> <https://en.reset.org/knowledge/air-pollution>

processus physico-chimiques (coagulation, sédimentation, ...). À la fin de leur cycle de vie, ils sont soumis à des voies d'élimination appelées puits atmosphériques. Ce sont les dépôts secs et humides (Ghan et Schwartz 2007).

Les aérosols sont éliminés de l'atmosphère à travers les processus de dépôts humides qui sont de deux types :

- l'entraînement dans le nuage où les aérosols entrent par diffusion/impaction dans les gouttelettes d'eau à l'intérieur du nuage avant précipitation ;
- l'entraînement sous le nuage où les aérosols situés au-dessous du nuage sont capturés par les gouttes d'eau précipitantes (lessivage).

L'efficacité de l'élimination par dépôt humide dépend de la proximité des aérosols avec les nuages. Les aérosols sont également évacués de l'atmosphère par dépôts secs. Par exemple, la sédimentation par gravité tend à éliminer les particules les plus grosses comme les poussières désertiques. La dynamique atmosphérique impacte également les processus de déposition des aérosols et donc leur temps de résidence dans l'atmosphère.

## 2.2 Propriétés chimiques et microphysiques des aérosols

### 2.2.1 Composition chimique

La composition chimique d'un aérosol décrit sa nature chimique, et donc les différentes espèces qui le constituent. C'est un paramètre important qui contrôle son hygroscopicité ainsi que ses propriétés optiques et radiatives (Forster et al. 2007 ; Ramanathan et Carmichael 2008). La composition chimique d'un aérosol dépend en premier lieu des sources d'émissions, mais également des transformations physico-chimiques qu'il subit au cours de sa vie atmosphérique. On distingue généralement les aérosols inorganiques des aérosols organiques. Les premiers comprennent ainsi les sels marins, constitués principalement de chlorure de sodium ( $\text{NaCl}$ ), et les poussières minérales, émis par érosion éolienne. Les aérosols soufrés en sont également une composante importante dont la composition chimique varie entre l'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ), le bisulfate d'ammonium ( $(\text{NH}_4)\text{HSO}_4$ ) et le sulfate



d'ammonium ( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ), et peut également inclure d'autres ions en proportion variable (nitrates,  $\text{NO}_3^-$ ). Les aérosols organiques contiennent une très grande variété de composés chimiques, et l'on distingue généralement ceux dont l'origine provient des combustibles fossiles de ceux émis par la combustion de la biomasse. Enfin, le carbone suie est un composé qui se distingue des deux catégories précédentes et entre dans la composition des aérosols produits par combustion dans certaines conditions.

La manière dont les différentes espèces chimiques constituant un aérosol sont mélangées entre-elles est représentée par le type de mélange : externe, interne ou de type core-shell. L'état de mélange d'un aérosol fait référence à la distribution des espèces chimiques composant une population de particules d'aérosols (Stevens et Dastoor 2019). Dans un mélange externe, chaque particule de la population d'aérosols est composée d'une seule espèce chimique. Dans un mélange interne, chaque particule de la population d'aérosol contient une certaine proportion de chaque espèce chimique. Le mélange interne est qualifié d'homogène lorsque les différentes espèces chimiques sont bien mélangées entre-elles. Le mélange interne est dit hétérogène lorsque les différentes espèces chimiques ne sont pas uniformément mélangées entre-elles et correspond généralement à l'inclusion d'une espèce insoluble (noyau hydrophobe comme le carbone suie) à l'intérieur d'une enveloppe d'espèces condensées hydrophiles (par exemple, le sulfate ou le carbone organique). C'est la configuration de type core-shell.

La figure 2.3 illustre les trois types de mélange d'une population d'aérosols. Dans le cadre de gauche, les particules sont en mélange externe. Dans le cadre de droite, elles sont en mélange interne homogène (partie gauche) ou de type core-shell (partie droite).

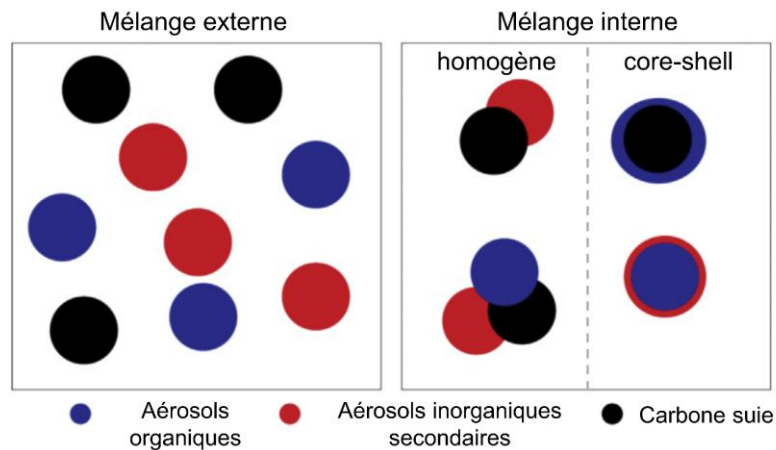


Figure 2.3 : Représentation des états de mélange externe (à gauche) où chaque particule de la population d'aérosol est composée d'une seule espèce chimique et interne (à droite) homogène où chaque particule est constituée des différentes espèces chimiques bien mélangées entre-elles (mélange interne homogène) ou en configuration de type core-shell (par exemple, carbone suie entouré d'une matière organique). Adapté de Li et al. (2015).

Le mélange de type core-shell impacte fortement le degré d'absorption des aérosols. Prenons l'exemple du carbone suie. Lorsque le carbone suie, initialement hydrophobe, s'oxyde au cours de son vieillissement, il devient hydrophile. Il permet alors la condensation d'espèces solubles à sa surface telles que les sulfates ou le carbone organique formant un revêtement (coating) (Arimoto et al. 2006 ; Vester et al. 2007). Le carbone suie, mélangé avec d'autres espèces chimiques à sa surface, verrait son pouvoir absorbant augmenter (Schnaiter et al. 2005 ; Bond et al. 2006 ; Zhang et al. 2008 ; Lack et al. 2009 ; Shiraiwa et al. 2010). Par exemple, le revêtement autour du carbone suie permettrait de renforcer son absorption de 30 %, 60 % et 100 % selon les études de Schwarz et al. (2008), Oshima et al. (2009) et Mikhailov et al. (2006), respectivement. L'augmentation de l'absorption du carbone suie serait fonction des propriétés optiques des espèces chimiques constituant l'enveloppe qui l'entoure (Fuller et al. 1999 ; Lack et Cappa 2010 ; Saleh et al. 2015). Cette augmentation pourrait être diminuée de 50 % à 400 nm, de 25 à 30 % en moyenne dans le visible selon Lack et Cappa (2010) et de 50 % à 550 nm selon Saleh et al. (2015), dans le cas d'un revêtement moyennement absorbant par rapport à un revêtement purement diffusant. Le revêtement absorbant diminuerait l'intensité de la lumière réfractée dans le noyau de carbone suie tandis que le revêtement diffusant pourrait concentrer plus de lumière sur le noyau de carbone suie grâce à l'effet de lentille (Fuller et al. 1999 ; Lack et Cappa 2010 ; Saleh et al. 2015).

L'effet de revêtement du carbone suie (effet lentille) est d'ailleurs suggéré par les résultats du projet ORACLES (ObseRvations of Aerosols above CLouds and their

InteractionS) pour expliquer la forte absorption des aérosols observée dans la région de l'Atlantique Sud-Est (Zuidema et al. 2018). Cependant, dans notre étude, cet effet ne sera pas pris en compte dans les simulations numériques de WRF-Chem pour rester cohérent avec les algorithmes d'inversion de POLDER-3 où le mélange interne homogène est considéré.

### 2.2.2 Distribution en taille

D'un point de vue théorique, les aérosols sont généralement représentés par une forme de type sphérique ou sphéroïdique pour calculer leurs propriétés optiques et radiatives. En réalité, leur morphologie est très variable et complexe comme mis en avant par la figure 2.4.

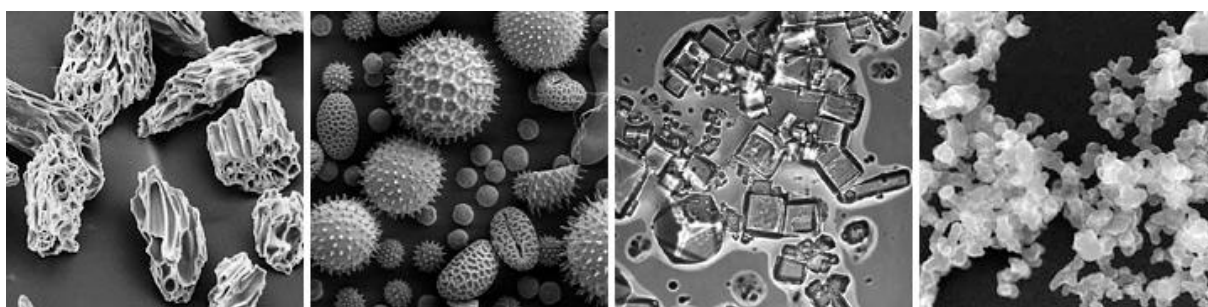


Figure 2.4 : Images obtenues au microscope à balayage électronique montrant la grande diversité des formes d'aérosols. De gauche à droite : les cendres volcaniques en forme de granules, les pollens en forme de sphéroïdes, les sels marins en forme de cristaux et la suie de forme fractale composée d'un ensemble de sphérules. Crédits : NASA.

En raison de la diversité des sources d'émissions des particules, des processus de formation, d'évolution et d'élimination, les aérosols atmosphériques présentent une large gamme de tailles s'étalant sur six ordres de grandeur : de quelques nanomètres pour les particules les plus petites à une dizaine ou centaine de micromètres pour les particules les plus grosses (figure 2.5). Une population d'aérosols peut ainsi être caractérisée par sa distribution en taille dont la répartition est appelée distribution granulométrique (Boucher, 2015 ; Seinfeld et Pandis 2016). Les différentes classes d'aérosols peuvent être catégorisées selon cinq modes au maximum (du plus petit au plus grand) :

- le mode de nucléation ou mode ultrafin : le diamètre des particules est inférieur ou égal à 20 nm. Les particules du mode de nucléation sont généralement des aérosols fraîchement créés au contact de la phase gazeuse par nucléation

homogène ou hétérogène. Ces particules subissent de nombreux processus (coagulation, impactions sur les surfaces) et ont une durée de vie très courte dans l'atmosphère (de l'ordre de la minute à l'heure) ;

- le mode d'Aitken : le diamètre des particules est compris entre 20 et 100 nm. La plupart des noyaux d'Aitken commencent leur vie atmosphérique en tant que particules primaires. La matière secondaire s'y condense à mesure qu'ils sont transportés dans l'atmosphère. Ces particules peuvent ainsi grossir jusqu'à atteindre une taille de l'ordre du dixième de micromètres et ainsi contribuer au mode d'accumulation ;
- le mode d'accumulation : le diamètre des particules est compris entre 0.1  $\mu\text{m}$  et 2.5  $\mu\text{m}$ . Les particules du mode d'accumulation sont le résultat des émissions primaires, de la condensation des espèces secondaires (organiques ou inorganiques) à partir de la phase gazeuse sur le mode d'Aitken et de la coagulation de plus petites particules comme les noyaux d'Aitken. Il est à noter que la coagulation entre les particules du mode d'accumulation est un processus lent et ne transfère pas efficacement les particules vers le mode grossier ;
- le mode grossier : le diamètre des particules est supérieur ou égal à 2.5  $\mu\text{m}$ . Les particules du mode grossier résultent généralement de processus mécaniques tels que le vent ou l'érosion (poussières, sels marins, pollens, cendres volcaniques, ...) ;
- le mode super grossier : ce mode peut être observé près des sources d'émissions primaires mais n'est généralement plus présent pour une population d'aérosols vieillissants qui sont éliminés dans l'atmosphère par dépôts secs ou humides.

En principe, chacun de ces modes correspond à un maximum relatif de la distribution en taille des aérosols. Parfois, les aérosols sont représentés en deux familles (Whitby et Cantrell, 1976) : les fines particules (incluant les modes de nucléation, d'Aitken et d'accumulation) et les grosses particules (mode grossier).

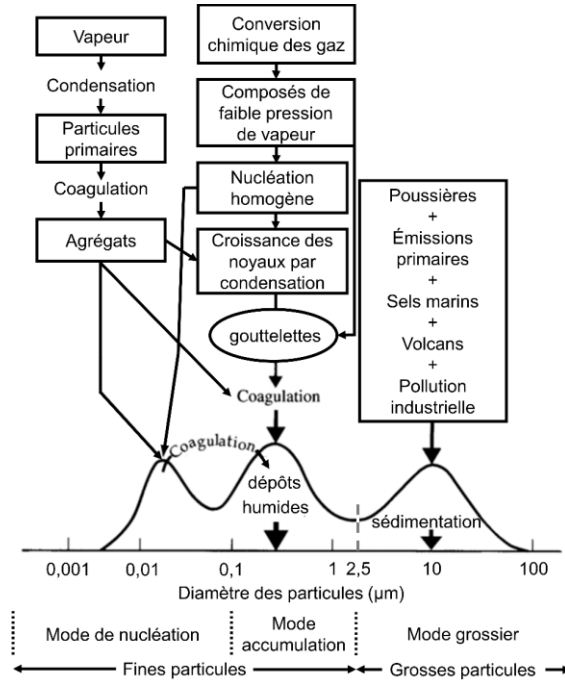


Figure 2.5 : Illustration des principaux modes, des principales sources et des mécanismes de formation et de déposition des aérosols atmosphériques. Adapté de Whitby et Cantrell (1976).

Pour rendre compte de la polydispersité des aérosols atmosphériques (Whitby, 1978), une fonction mathématique log-normale est usuellement employée pour décrire la distribution en taille des aérosols (Aitchison et Brown 1957). Elle peut s'exprimer en nombre d'aérosols (Hansen et Travis 1974) :

$$n(r) = \frac{dN}{dr} = \frac{N}{r\sigma_g\sqrt{2\pi}} e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_g)}{\sigma_g}\right)^2\right]} \quad (2.1)$$

$n(r)dr$  est la quantité de particules par unité de volume (unité : particules. $\mu\text{m}^{-3}$ ) avec un rayon compris entre  $r$  et  $r + dr$ .  $r$  est le rayon de la particule (unité :  $\mu\text{m}$ ).  $N$  est la quantité totale de particules par unité de volume (unité : particules. $\mu\text{m}^{-3}$ ).  $r_g$  est le rayon géométrique moyen des particules (unité :  $\mu\text{m}$ ).  $\sigma_g$  est l'écart-type géométrique de la distribution en taille des particules (sans unité).

L'aspect multimodal  $j$  de la distribution en taille des aérosols est représenté par la combinaison des log-normales de chaque mode  $i$ , soit :

$$n(r) = \sum_{i=1}^j \frac{N_i}{r\sigma_{g,i}\sqrt{2\pi}} e^{\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln(r)-\ln(r_{g,i})}{\sigma_{g,i}}\right)^2\right]} \quad (2.2)$$

La distribution en taille des aérosols est généralement donnée sur une échelle logarithmique pour prendre en compte le large domaine de valeurs couvert par les rayons des aérosols, ce qui donne dans ce cas :  $n^*(\ln(r)) = rn(r)$ . En fonction des applications, la distribution en taille peut être exprimée en surface  $s^*(\ln(r))$  ou en volume  $v^*(\ln(r))$ , pour le cas d'un aérosol sphérique (Boucher 2015 ; Seinfeld et Pandis 2016). Soit :

$$s^*(\ln(r)) = \frac{dS}{d \ln(r)} = 4\pi r^2 n^*(\ln(r))$$

et

$$v^*(\ln(r)) = \frac{dV}{d \ln(r)} = \frac{4}{3}\pi r^3 n^*(\ln(r)) \quad (2.3)$$

La figure 2.6 illustre un exemple d'une distribution en taille des aérosols (en nombre, surface et volume, de gauche à droite) constituée de trois modes caractérisés par des rayons géométriques de 0.01, 0.1 et 1  $\mu\text{m}$  et d'écart-type géométrique de 2.

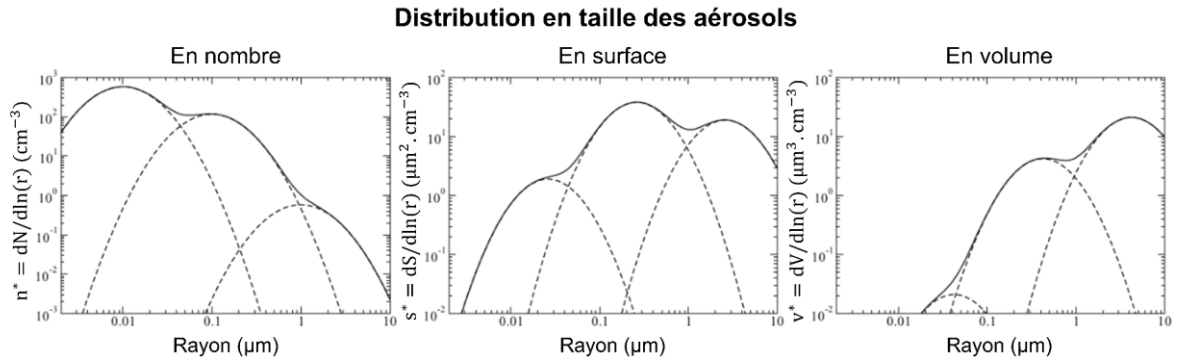


Figure 2.6 : De gauche à droite : distributions en taille en nombre  $n^*$ , surface  $s^*$  et volume  $v^*$  des aérosols simulées correspondant à la superposition de trois log-normales décrites par un rayon géométrique moyen modal de 0.01, 0.1 et 1  $\mu\text{m}$  et de concentrations totales en nombre de particules de 1 000, 200 et 1  $\text{cm}^{-3}$ , respectivement avec un écart-type géométrique modal de 2. Le mode fin domine la distribution en nombre des aérosols. Le mode d'accumulation domine la distribution en surface des aérosols. Le mode grossier domine la distribution en volume des aérosols. Adapté de Boucher (2015).

Les modes de nucléation et d'Aitken sont majoritaires en nombre. Le mode d'accumulation apparaît généralement dans la distribution en surface des aérosols mais il est aussi visible dans la distribution en nombre et en volume des aérosols. Le mode grossier est généralement bien représenté dans la distribution en volume des aérosols. Ce sont les particules des modes d'accumulation et les particules du mode grossier qui constituent pratiquement toute la masse de l'aérosol. Par leur taille, ce

sont également ces particules qui interagissent avec les rayonnements solaire et tellurique et qui ont donc un effet important sur le climat.

Deux paramètres communément utilisés permettent d'exprimer les paramètres de taille des différentes distributions. Ce sont le rayon effectif  $r_{eff}$  et la variance effective  $v_{eff}$  (Hansen et Travis 1974) :

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{+\infty} r \pi r^2 n(r) dr}{\int_0^{+\infty} \pi r^2 n(r) dr} = \frac{\int_0^{+\infty} r^3 n(r) dr}{\int_0^{+\infty} r^2 n(r) dr}$$

et

(2.4)

$$v_{eff} = \frac{\int_0^{+\infty} (r - r_{eff})^2 r^2 n(r) dr}{r_{eff}^2 \int_0^{+\infty} r^2 n(r) dr}$$

Le rayon effectif (unité :  $\mu\text{m}$ ) correspond au rayon d'une unique particule qui aurait des propriétés optiques similaires (par exemple, section efficace d'extinction) à celles de la population de particules considérée. La variance effective (sans unité) correspond à la largeur de la distribution de la population de particules considérée. Dans l'équation 2.4, on intègre sur la distribution en taille en la multipliant par la section géométrique. En pondérant par la section, on donne du poids au processus d'interaction entre la particule et le rayonnement car l'interaction rayonnement-particule dépend de la section efficace. Ainsi, deux distributions en taille peuvent avoir le même rayon effectif même si elles ne sont pas identiques, ce qui signifie que physiquement elles peuvent se comporter de façon similaire du point de vue de l'interaction avec le rayonnement. Des distributions en taille de même rayon effectif et même variance effective ont typiquement des propriétés optiques similaires : par exemple, la section efficace d'extinction et la dépendance spectrale sont proches. Un autre avantage de l'utilisation du rayon effectif et de la variance effective est que ces deux paramètres ne dépendent pas de la définition de la distribution en taille contrairement au rayon géométrique. Ces quantités sont employées dans le chapitre 3 pour caractériser notamment les distributions en taille des gouttelettes nuageuses.

## 2.3 Propriétés optiques des aérosols

### 2.3.1 Indice de réfraction

Combiné avec les informations sur la forme et la taille des particules, l'indice de réfraction est un paramètre fondamental pour caractériser les aérosols et leurs propriétés optiques et radiatives (Bond et Bergström 2006). L'indice de réfraction  $m$  d'une particule dépend essentiellement de ses propriétés chimiques. Il dépend de la longueur d'onde  $\lambda$  du rayonnement incident :

$$m(\lambda) = m_r(\lambda) - m_i(\lambda)i \quad (2.5)$$

La partie réelle  $m_r$  est reliée à la vitesse de propagation de l'onde dans le milieu. La partie imaginaire  $m_i$  est une mesure de l'absorption de l'aérosol, qui contrôle la quantité d'énergie absorbée lorsque l'onde électromagnétique traverse la particule. Comme l'indice de réfraction dépend de la composition chimique, il peut évoluer au cours du transport en fonction des différents processus que subit la particule (Kahn et al. 2009). Par exemple, le phénomène d'hygroscopicité permet à l'aérosol de grossir par incorporation de la vapeur d'eau ambiante faisant diminuer la partie réelle de son indice, celle de l'eau ( $m_{\text{eau}}(550 \text{ nm}) = 1.333$ , Hale et Querry 1973) étant inférieure à celle des aérosols.

La figure 2.7 recense les valeurs d'indices de réfraction des principales espèces chimiques qui rentrent dans la composition des aérosols atmosphériques (carbone suie, poussières désertiques, organiques, sulfates) pour la gamme de longueurs d'onde allant de l'ultraviolet au proche infrarouge.



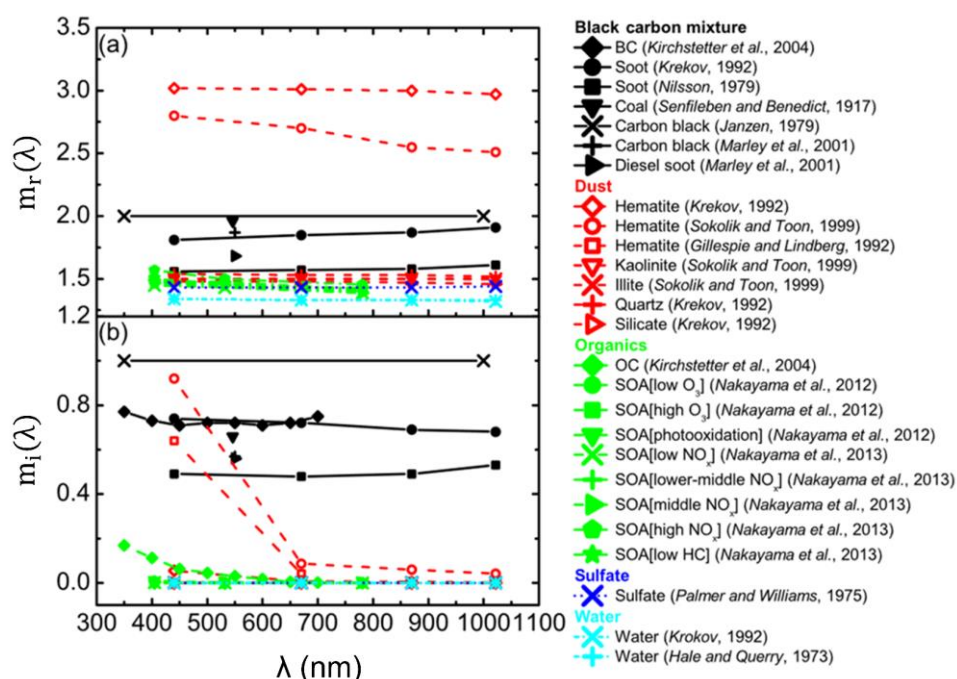


Figure 2.7 : Parties réelles  $m_r(\lambda)$  (a) et parties imaginaires  $m_i(\lambda)$  (b) des indices de réfraction des principales espèces chimiques entrant dans la composition des aérosols atmosphériques en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  de l'ultraviolet au proche infrarouge, reportées dans la littérature pour le carbone suie (courbes noires), les poussières désertiques (courbes rouges), les aérosols organiques (courbes vertes) et les sulfates (courbe bleu foncé). L'indice de réfraction de l'eau, qui n'est pas un aérosol, est également indiqué (courbes bleu clair). BC, OC et SOA désignent respectivement le carbone suie, le carbone organique et les aérosols organiques secondaires. Source : Zhang et al. (2017).

Sur la figure 2.7 nous constatons que la partie réelle  $m_r(\lambda)$  de l'indice de réfraction  $m$  des principales espèces chimiques entrant dans la composition des principaux aérosols atmosphériques est généralement faiblement dépendante de la longueur d'onde  $\lambda$ , de l'ultraviolet au proche infrarouge, traduisant une diffusion spectralement constante. En revanche, la partie imaginaire  $m_i(\lambda)$  présente une dépendance spectrale plus marquée, notamment pour certaines espèces minéralogiques (hématite, courbes rouges en pointillés avec des ronds ou des carrés) ou organiques (OC, courbe verte en pointillés avec des losanges), avec une augmentation notable de leur niveau d'absorption dans l'ultraviolet. Il est à noter que l'eau (courbes bleu clair) et les aérosols organiques secondaires (SOA, courbes vertes) sont purement diffusants ( $m_i(\lambda) = 0$ ) tandis que le carbone suie (courbes noires) est fortement absorbant ( $m_i(\lambda)$  variant de 0.5 à 1) avec un niveau d'absorption quasiment constant sur le spectre ultraviolet-proche infrarouge. De façon générale, les variations des parties réelles et imaginaires de l'indice de réfraction des particules, avec la longueur d'onde, constituent une signature de leur composition chimique.

### 2.3.2 Extinction, diffusion et absorption du rayonnement par les particules atmosphériques

Au cours de leur traversée dans l'atmosphère terrestre, les rayonnements solaires et telluriques peuvent interagir avec les aérosols par le biais des phénomènes de diffusion et d'absorption, ces deux processus dépendant de la composition chimique, de la forme et de la taille des particules (Mie, 1908 ; Herman et al. 2005 ; Kahn et al. 2009).

Soumis à un rayonnement électromagnétique incident, les molécules se comportent comme des dipôles oscillants et émettent, à leur tour, un rayonnement de même longueur d'onde que le rayonnement incident. Ce processus est à la base de la diffusion de la lumière par les molécules (diffusion Rayleigh). La diffusion par une particule atmosphérique (aérosol ou goutte d'eau) comprend également les processus de réflexion, réfraction et diffraction des ondes électromagnétiques qui sont déviées par rapport à la direction d'incidence du rayonnement. L'ensemble de ces processus contribue à redistribuer dans l'espace de manière non isotrope le rayonnement incident. L'absorption correspond à une conversion d'une partie de l'énergie radiative associée à l'onde incidente en une autre forme d'énergie (thermique). Le processus physique qui regroupe à la fois les phénomènes d'absorption et de diffusion est l'extinction. Les interactions aérosol-rayonnement sont d'autant plus fortes, et l'intensité du rayonnement est d'autant plus atténuée, que la concentration des aérosols et leurs capacités à absorber et diffuser le rayonnement sont grandes.

La théorie de Mie, aussi appelée théorie de Lorenz-Mie, permet de quantifier ces interactions aérosol-rayonnement. En effet, la théorie de Mie est une solution particulière des équations de Maxwell qui décrit la diffusion d'une onde électromagnétique plane par une particule sphérique homogène dont le diamètre est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde de l'onde électromagnétique incidente (Mie, 1908).

La résolution de ces équations donne accès aux sections efficaces de diffusion  $S_{\text{diff}}$  et d'absorption  $S_{\text{abs}}$  (unité :  $\text{m}^2$ ), qui permettent de décrire la surface effective de la particule qui interagit avec le rayonnement incident. La section efficace d'extinction  $S_{\text{ext}}$  est la somme des sections efficaces de diffusion et d'absorption de la particule :

$$S_{ext} = S_{diff} + S_{abs} \quad (2.6)$$

Ce sont des quantités spectrales qui dépendent uniquement de la taille et de l'indice de réfraction des particules, et de la longueur d'onde, dans le cadre de la théorie de Mie.

Soit une couche atmosphérique, d'épaisseur infinitésimale  $dz$ , perpendiculaire à la direction de propagation du rayonnement incident, et composée de particules sphériques (ou non-sphériques orientées aléatoirement). En traversant cette couche, le rayonnement d'intensité  $I_\lambda$  (unité :  $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \mu\text{m}^{-2}$ ) ressort avec une intensité  $I_\lambda - dI_\lambda$  avec :

$$dI_\lambda = \sigma_{ext,\lambda} I_\lambda dz \quad (2.7)$$

$\sigma_{ext,\lambda}$  est le coefficient d'extinction des particules (unité :  $\text{m}^{-1}$ ).

Le coefficient d'extinction est défini pour une population d'aérosols par :

$$\sigma_{ext,\lambda} = \int_{r_{min}}^{r_{max}} S_{ext}(\lambda, m, r) n(r) dr \quad (2.8)$$

$n(r)$  est la distribution en taille des particules de rayon  $r$  compris entre  $r_{min}$  et  $r_{max}$ .  $m$  est l'indice de réfraction de la particule.

Les coefficients d'absorption  $\sigma_{abs,\lambda}$  et de diffusion  $\sigma_{diff,\lambda}$  sont définis de la même manière à partir des sections efficaces d'absorption et de diffusion, respectivement.

L'équation 2.7 rend compte des pertes par diffusion et absorption du rayonnement lors de sa propagation dans la couche. En intégrant l'équation 2.7 entre les altitudes  $z_1$  et  $z_2$ , on obtient la loi de Beer-Lambert :

$$I_\lambda(z_2) = I_\lambda(z_1) e^{-\tau_{e,\lambda}} \quad \text{avec} \quad \tau_{e,\lambda} = \int_{z_1}^{z_2} \sigma_{ext,\lambda}(z) dz \quad (2.9)$$

$\tau_{e,\lambda}$  est l'épaisseur optique d'extinction entre  $z_1$  et  $z_2$  et  $e^{-\tau_{e,\lambda}}$  est le terme de transmission de la couche.

### 2.3.3 Épaisseur optique aérosol

L'épaisseur optique aérosol, notée AOD (Aerosol Optical Depth) ou  $\tau_{e,\lambda}$ , correspond à l'intégration du coefficient d'extinction des aérosols entre le sol et le sommet de l'atmosphère (sans unité) :

$$\tau_{e,\lambda} = \int_0^z \left( \int_0^{+\infty} S_{ext}(\lambda, r, m) n(r, z) dr \right) dz \quad (2.10)$$

$n(r, z)$  est la distribution en taille des aérosols qui dépend de l'altitude.

L'épaisseur optique aérosol est une grandeur spectrale, c'est-à-dire une grandeur qui dépend de la longueur d'onde  $\lambda$ . Plus la valeur de l'AOD à une longueur d'onde donnée est grande plus la concentration des aérosols intégrée sur la verticale est élevée, et inversement.

L'exposant d'Angström, noté  $\alpha$  (Angström exponent), décrit la dépendance spectrale de l'épaisseur optique aérosol (Ångström, 1929). Il se calcule à partir des épaisseurs optiques  $AOD(\lambda_1)$  et  $AOD(\lambda_2)$  estimées à deux longueurs d'onde différentes  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  :

$$\alpha = - \frac{\ln \left( \frac{AOD(\lambda_2)}{AOD(\lambda_1)} \right)}{\ln \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right)} \quad (2.11)$$

Les aérosols dominés par le mode fin d'accumulation comme les particules de feux de biomasse sont caractérisés par un exposant d'Angström supérieur à 1 (Kaufman et al. 1992), ce qui traduit une dépendance spectrale de la diffusion pour ces particules, tandis que les grosses particules comme les poussières minérales ont un exposant d'Angström généralement compris entre 0 et 1 (Holben et al. 1991).

### 2.3.4 Albédo de simple diffusion

L'albédo de simple diffusion des aérosols, noté  $SSA$  (Single Scattering Albedo), est par définition, le rapport entre le coefficient de diffusion  $\sigma_{diff}$  et le coefficient d'extinction  $\sigma_{ext}$  :

$$SSA(\lambda) = \frac{\sigma_{diff}}{\sigma_{ext}} = \frac{\sigma_{diff}}{\sigma_{diff} + \sigma_{abs}} \quad (2.12)$$

Ce paramètre optique renseigne sur les propriétés de diffusion et d'absorption des aérosols. Théoriquement, les valeurs de SSA sont comprises entre 0 pour les aérosols purement absorbants et 1 pour les aérosols purement diffusants. En général, les valeurs de SSA les plus faibles mesurées ou calculées pour un mélange d'aérosols atmosphériques, correspondant donc aux niveaux d'absorption les plus élevés, sont de l'ordre de 0.7 (Eck et al. 1999). Le tableau 2.2 recense les valeurs de l'albédo de simple diffusion à 550 nm des principaux composés d'aérosols atmosphériques en conditions sèches.

| Type d'aérosol       | SSA (550 nm) | Référence                                                                                                                                      |
|----------------------|--------------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Sels marins          | 0.99         | Hess et al. (1998)                                                                                                                             |
| Poussières minérales | 0.75-0.99    | Tanré et al. (2001)<br>Dubovik et al. (2002)<br>Slingo et al. (2006)<br>Otto et al. (2007)<br>McConnell et al. (2008)<br>Osborne et al. (2008) |
| Carbone suie         | 0.15-0.30    | Bond et Bergström (2006)                                                                                                                       |
| Carbone organique    | 0.98         | Cooke et al. (1999)                                                                                                                            |
| Ammonium             | 0.97         | Mallet et al. (2003)                                                                                                                           |
| Nitrate              | 0.93         | Mallet et al. (2003)                                                                                                                           |
| Sulfate              | 1            | Penner et al. (2001)                                                                                                                           |

Tableau 2.2 : Valeurs de l'albédo de simple diffusion (SSA) à 550 nm reportées dans la littérature pour les principaux types d'aérosols atmosphériques en conditions sèches.

Le tableau 2.2 montre que les valeurs théoriques extrêmes du SSA peuvent être atteintes ou approchées pour des espèces chimiques seules telles que le carbone suie pur (SSA de 0.15 à 0.30 à 550 nm, Bond and Bergström 2006) ou le sulfate (SSA de 1 à 550 nm, Penner et al. 2001).

La figure 2.8 obtenue à partir de mesures aéroportées représente la variation spectrale du SSA pour quatre cas d'étude (Bergström et al. 2007). Le SSA dépend principalement de l'absorption spectrale des aérosols mais également de la distribution en taille. Pour les poussières désertiques (campagne PRIDE, Reid et al. 2003 ou ACE-Asia, Bergström 2004), majoritairement grossières, l'absorption diminue de l'ultraviolet au proche infrarouge, nous obtenons un SSA qui augmente avec la longueur d'onde croissante. Inversement, pour les plus petites particules comme celles générées par

la pollution urbaine (campagne ICARTT, Redemann et al. 2006, Sierau et al. 2006) ou par les feux de biomasse (campagne SAFARI-2000, Bergström et al. 2002), l'absorption augmente de l'ultraviolet au proche infrarouge, nous obtenons un SSA qui diminue avec la longueur d'onde croissante.

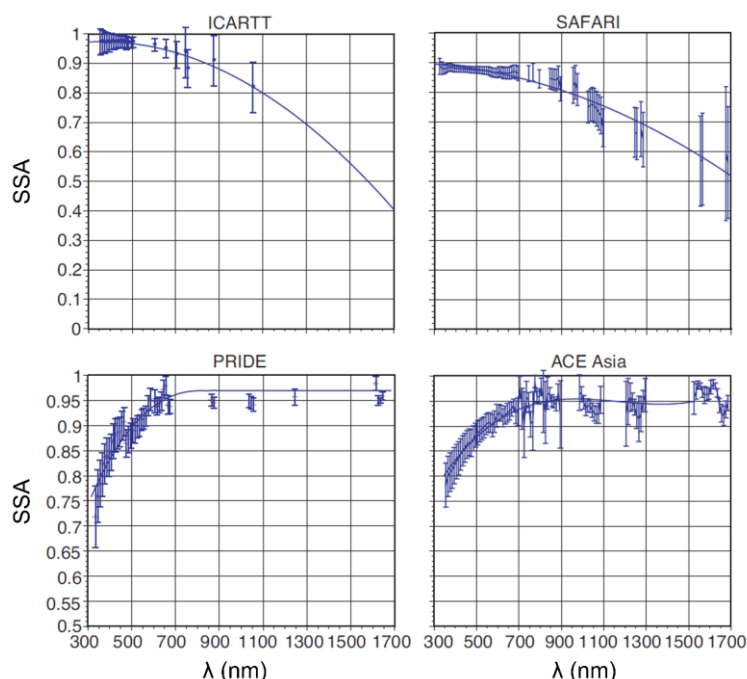


Figure 2.8 : Dépendances spectrales de l'albédo de simple diffusion des aérosols,  $SSA(\lambda)$ , mesurées lors des campagnes aéroportées ICARTT (Redemann et al. 2006 ; Sierau et al. 2006), SAFARI-2000 (Bergström et al. 2002), PRIDE (Reid et al. 2003) et ACE-Asia (Bergström, 2004). Source : Bergström et al. (2007).

Des recherches intensives en laboratoire et en conditions in situ ont montré que certains composés parmi les aérosols organiques, connus sous le nom de carbone brun (BrOC), peuvent avoir une forte absorption dans l'ultraviolet et le visible ( $\leq 600$  nm) (Kirchstetter et al. 2004 ; Hoffer et al. 2006 ; Chen et Bond 2010). Selon certaines études de modélisation, le carbone brun pourrait avoir une teneur dans l'atmosphère plus importante que la carbone suie (supérieure à 3 fois celle du carbone suie) dans certains cas (Feng et al. 2013). Cette espèce, en plus du carbone suie et des poussières désertiques, serait donc un absorbeur important de la lumière dans l'atmosphère.

Tandis que l'absorption de la lumière par le carbone suie est quasiment spectralement neutre (Bergström et al. 2002), celle du carbone brun présente une dépendance spectrale plus marquée, caractérisée notamment par une absorption plus élevée aux plus courtes longueurs d'onde (ultraviolet-bleu) (Kirchstetter et al. 2004 ; Hoffer et al.

2006). La figure 2.9 montre le résultat de deux mesures d'absorption réalisées dans un panache d'aérosols de feux de biomasse au cours de la saison sèche durant la campagne aéroportée SAFARI-2000 en Afrique du Sud (Kirchstetter et al. 2003 ; Sinha et al. 2003). Les points de mesures en forme de ronds bleus correspondent à un échantillon prélevé dans le panache d'aérosols de feux de biomasse sud-africain. Ceux en forme de triangles rouges correspondent à ce même échantillon après l'élimination quasi-complète du carbone organique soluble par l'acétone (dissolution). La courbe noire en trait plein correspond à l'absorption théorique du carbone suie (en  $\lambda^{-1}$ ) qui est considéré comme la seule espèce absorbante dans le panache de particules de brûlis.

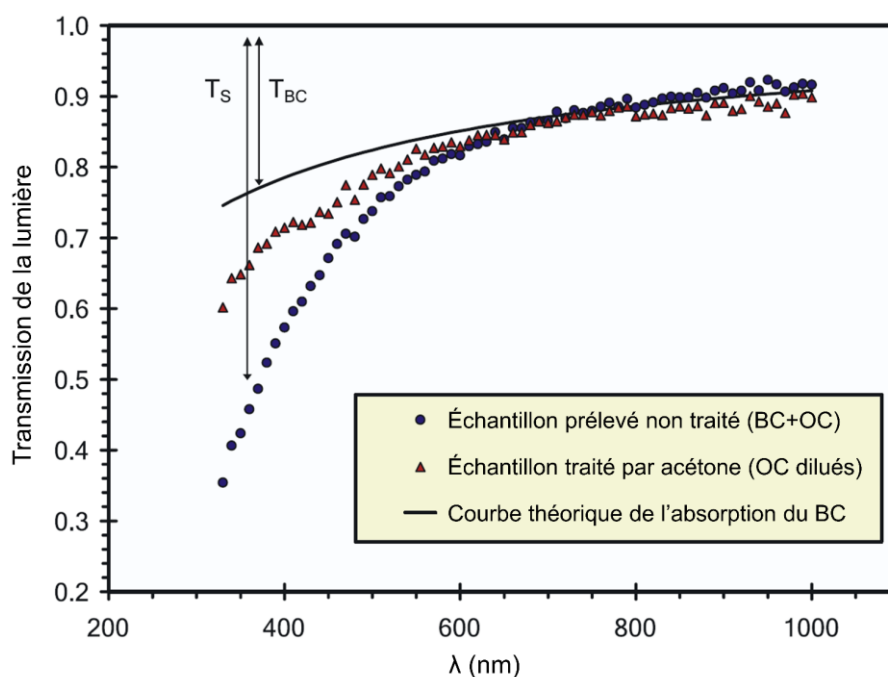


Figure 2.9 : Répartition de l'absorption de la lumière par le carbone suie (BC) et le carbone organique (OC) contenus dans un échantillon prélevé dans un panache d'aérosols de feux de biomasse sud-africain au cours de la saison sèche durant la campagne aéroportée SAFARI-2000 (Kirchstetter et al. 2003 ; Sinha et al. 2003).  $T_{BC}$  est la transmission de la lumière par le carbone suie supposé seul absorbeur.  $T_S$  est la transmission de la lumière mesurée pour l'échantillon prélevé dans le panache de particules de brûlis. La fraction de la lumière absorbée par l'OC est déterminée selon la relation  $T_{OC} = \frac{T_{BC} - T_S}{1 - T_S}$ . Adapté de Kirchstetter et al. (2004).

La figure 2.9 met en évidence le fait que l'absorption de ces particules de brûlis, particulièrement marquée aux courtes longueurs d'onde ( $\lambda \leq 600$  nm), ne peut pas être expliquée par l'absorption seule du carbone suie. Ceci suggérerait la présence d'une autre espèce chimique absorbante qui traduit un comportement différent de celui du carbone suie dans l'ultraviolet-bleu. Ce composé organique absorbant supplémentaire pourrait être le carbone brun. Par ailleurs, des études récentes ont

montré que le carbone brun n'absorberait pas seulement dans l'ultraviolet (Mok et al. 2016) mais aussi dans le proche infrarouge (Hoffer et al. 2016, 2017). Son pouvoir absorbant serait du même ordre de grandeur que celui du carbone suie aux courtes longueurs d'onde (Pokhrel et al. 2017).

Des études préliminaires ont mis en évidence la présence de carbone brun dans les combustions de type sans flammes (Patterson et McMahon 1984 ; Pósfai et al. 2004), dans certains aérosols nitriques et aromatiques (Jacobson, 1999) et dans la combustion de charbon domestique à basse température (Bond, 2001). Des études récentes ont aussi montré la présence de carbone brun dans des expériences de laboratoire sur la combustion de biomasse (Chen et Bond 2010 ; Saleh et al. 2014 ; Pokhrel et al. 2016, 2017), dans des études de terrain en milieu urbain avec des sources de combustion de biomasse et d'aérosols urbains (Kirchstetter et al. 2004 ; Liu et al. 2015) et dans des mesures aéroportées à différents niveaux de la troposphère (Liu et al. 2014, 2015).

### 2.3.5 Fonction de phase et paramètre d'asymétrie

La théorie de Mie (Mie, 1908) permet également de calculer la fonction de phase des particules  $p(\theta, \lambda)$ . La fonction de phase caractérise la distribution angulaire du rayonnement diffusé. La conservation de l'énergie implique que son intégrale sur toutes les directions de diffusion soit égale à  $4\pi$ , ce qui conduit à la condition de normalisation suivante :

$$\int_{4\pi} p(\theta, \lambda) d\Omega = 4\pi \quad (2.13)$$

La fonction de phase représente la fonction de probabilité que le rayonnement soit diffusé dans un cône d'angle solide  $d\Omega$  selon un angle  $\theta$ , défini entre les directions d'incidence et de diffusion. L'angle  $\theta$  s'appelle l'angle de diffusion.

Le paramètre d'asymétrie  $g$  renseigne sur les directions majeures vers lesquelles le phénomène de diffusion se produit et permet d'interpréter plus facilement la fonction



de phase. Il se définit comme la moyenne du cosinus de l'angle de diffusion  $\theta$  sur toutes les directions diffusantes (Seinfeld et al. 1998) :

$$g = \langle \cos(\theta) \rangle = \frac{1}{2} \int_0^\pi \sin(\theta) \cos(\theta) p(\theta, \lambda) d\theta \quad (2.14)$$

Les valeurs de  $g$  sont comprises entre -1 et 1 :

- $g = -1$  signifie que la lumière est diffusée en totalité vers l'arrière ;
- $-1 < g < 0$  signifie que la lumière est diffusée principalement vers l'arrière ;
- $g = 0$  signifie que la lumière est diffusée autant vers l'avant que vers l'arrière ;
- $0 < g < 1$  signifie que la lumière est diffusée majoritairement vers l'avant. C'est le cas des aérosols et des gouttelettes nuageuses d'après la théorie de Mie ;
- $g = 1$  signifie que la lumière est diffusée en totalité vers l'avant.

Le tableau 2.3 recense les valeurs du facteur d'asymétrie à 550 nm pour les principaux composés d'aérosols atmosphériques en conditions sèches.

| Type d'aérosol       | $g$ (550 nm) | Référence                 |
|----------------------|--------------|---------------------------|
| Sels marins          | 0.84         | Osborne et Haywood (2005) |
| Poussières minérales | 0.70-0.76    | Pandithurai et al. (2008) |
| Carbone suie         | 0.33         | D'Almeida et al. (1991)   |
| Carbone organique    | 0.70         | Barnard et al. (2008)     |
| Ammonium             | 0.58         | Mallet et al. (2003)      |
| Nitrate              | 0.74         | Mallet et al. (2003)      |
| Sulfate              | 0.66         | Kiehl et al. (2000)       |

Tableau 2.3 : Facteurs d'asymétrie  $g$  à 550 nm reportés dans la littérature pour les principaux types d'aérosols atmosphériques en conditions sèches.

Le tableau 2.3 montre que les aérosols atmosphériques diffusent majoritairement le rayonnement solaire vers l'avant et que cette diffusion vers l'avant est d'autant plus importante que la taille des particules est grande.  $g$  tend vers 0 pour les fines particules comme le carbone suie et tend vers 1 pour les grosses particules comme les poussières minérales ou les sels marins.

## 2.4 Propriétés radiatives des aérosols

Le forçage radiatif des aérosols évalue l'impact des particules sur le bilan énergétique du système surface-atmosphère (Ramaswamy et al. 1991 ; Boucher et Haywood 2001). Il s'exprime en watts par mètre carré ( $\text{W} \cdot \text{m}^{-2}$ ). Il est positif lorsque la présence des aérosols induit une augmentation d'énergie du système et négatif dans le cas contraire. Une nouvelle notion, dite de forçage radiatif effectif, a été introduite dans le dernier rapport d'évaluation du climat AR5 du GIEC (Boucher et al. 2013 ; Myhre et al. 2013b). Il est défini comme la variation du flux radiatif net en présence d'aérosols, après ajustements des températures atmosphériques, de la vapeur d'eau et des nuages mais sans modifications de la température de la surface. Ainsi le forçage radiatif effectif inclut à la fois les effets directs de l'agent perturbateur lui-même et les différents ajustements rapides associés. Dans l'ancienne définition du forçage radiatif, seul l'ajustement de la température stratosphérique était considéré (Forster et al. 2007). La figure 2.10 illustre cette nouvelle nomenclature du GIEC pour décrire les effets des aérosols sur les rayonnements solaire et tellurique et les nuages.

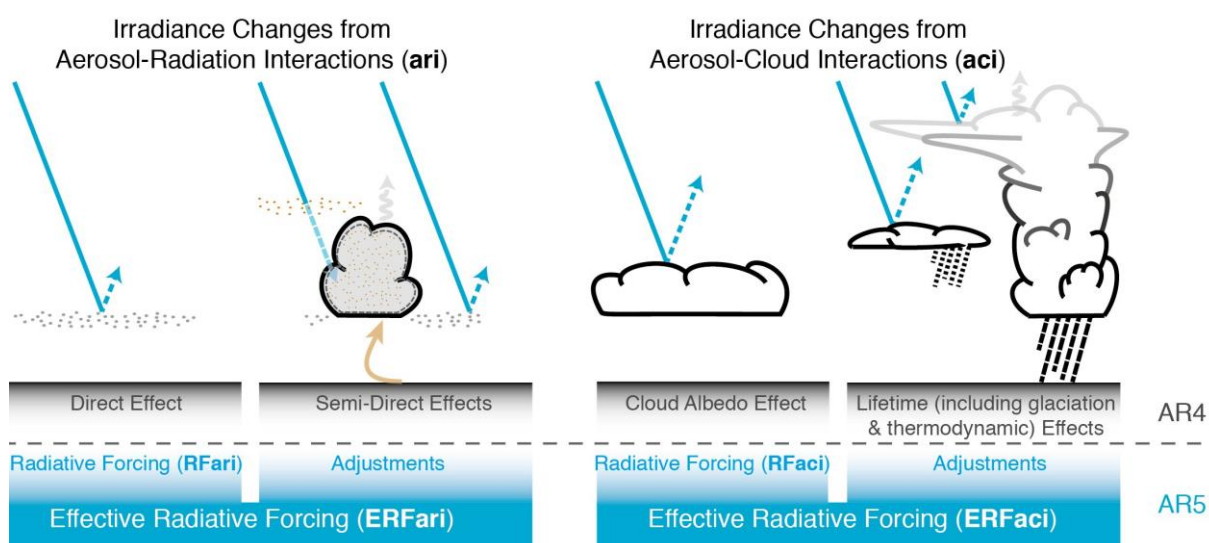


Figure 2.10 : Nouvelle nomenclature des interactions majeures entre les aérosols et le climat adoptée dans le 5<sup>ème</sup> rapport d'évaluation du climat (AR5) du GIEC et leur lien avec la terminologie originale dans le 4<sup>ème</sup> rapport d'évaluation du climat (AR4) (Forster et al. 2007). Source : Boucher et al. (2013).

Les effets radiatifs des aérosols sur le climat sont désormais regroupés sous deux grandes catégories : les interactions aérosol-rayonnement comprenant les effets direct et semi-directs (nouvellement nommés ajustements) et les interactions aérosol-nuage comportant les deux effets indirects (le second nouvellement appelé ajustements). Ces

effets et ces notions d'ajustements sont décrits plus en détails dans les paragraphes suivants.

### 2.4.1 Effet radiatif direct

L'effet radiatif direct, DRE (Direct Radiative Effect), est lié à l'interaction directe entre la particule et le rayonnement solaire ou tellurique. Il est calculé comme la différence de flux net, avec ( $F_{aéro}^{net}$ ) et sans ( $F_{propre}^{net}$ ) aérosols :

$$DRE = F_{aéro}^{net} - F_{propre}^{net} = (F_{aéro}^{\downarrow} - F_{aéro}^{\uparrow}) - (F_{propre}^{\downarrow} - F_{propre}^{\uparrow}) \quad (2.15)$$

$F^{\downarrow}$  et  $F^{\uparrow}$  sont respectivement les flux d'énergie descendant et ascendant (unité :  $W.m^{-2}$ ). Le DRE est généralement évalué au sommet de l'atmosphère, mais peut également être évalué à la surface et dans la couche atmosphérique.

Par exemple, dans le dernier rapport d'évaluation du GIEC, le DRE moyen des particules de feux de biomasse, estimé au sommet de l'atmosphère, est globalement neutre à l'échelle mondiale ( $-0.2$  à  $+0.2 W.m^{-2}$ ), résultat de la compensation par le DRE positif associé au carbone suie et par le DRE négatif associé aux aérosols organiques (Myhre et al. 2013b). Le DRE global moyen positif estimé au sommet de l'atmosphère pour le carbone suie est compris entre  $0.1$  et  $1.63 W.m^{-2}$  (Bond et al. 2013) le classant potentiellement en deuxième position juste derrière le forçage associé au dioxyde de carbone, compris entre  $1.33$  et  $2.03 W.m^{-2}$  (Jacobson 2001 ; Ramanathan et Carmichael 2008 ; Bond et al. 2013 ; Myhre et al. 2013b). Des études de modélisation récentes indiquent un DRE global moyen également positif estimé au sommet de l'atmosphère pour le carbone brun :  $0.04$  à  $0.57 W.m^{-2}$  (Feng et al. 2013 ; Lin et al. 2014 ; Wang et al. 2014 ; Saleh et al. 2015 ; Brown et al. 2018). La variabilité observée parmi ces études de modélisation peut être attribuée aux incertitudes concernant l'absorption du carbone brun (Kirchstetter et al. 2004 ; Alexander et al. 2008 ; Chen et Bond 2010 ; Hoffer et al. 2016, 2017 ; Sumlin et al. 2017), sa proportion dans le panache (Arola 2011) et sa durée de vie atmosphérique (Samset et al. 2014 ; Wang et al. 2014).

Le signe du forçage direct des aérosols ne dépend pas uniquement de leurs propriétés optiques (McCormick et Ludwig 1967 ; Charlson et Pilat 1969). Il est aussi lié à l'albédo de la surface sous-jacente (Atwater, 1970). La perturbation de l'albédo d'une scène  $\Delta\rho$  due à la présence d'une fine couche d'aérosols d'épaisseur optique  $\tau$  (ou AOD) sur le spectre solaire est donnée par l'expression approximée de Lenoble et al. (1982) :

$$\Delta\rho = \rho - \rho_s = \tau[\omega_0(1 - g)(1 - \rho_s)^2 - 4(1 - \omega_0)\rho_s] \quad (2.16)$$

$\rho$ ,  $\rho_s$ ,  $\omega_0$  et  $g$  sont respectivement l'albédo en présence d'aérosols, l'albédo en l'absence d'aérosols, l'albédo de simple diffusion (ou SSA) des aérosols et le facteur d'asymétrie des aérosols. La formule est ici donnée pour l'albédo sphérique qui correspond au rapport de l'énergie réfléchie sur l'énergie incidente, avec une intégration réalisée sur toutes les directions d'incidences solaires et toutes les directions de visées. La dépendance des paramètres de l'équation à la longueur d'onde a été omise par souci de simplification.

Une différence positive de l'albédo signifie que la scène apparaît plus brillante en présence d'aérosols ce qui signifie que les processus de diffusion dominent. Il y a donc plus de lumière réfléchie vers l'espace et le résultat est un effet de refroidissement. C'est le cas par exemple lorsqu'une couche d'aérosols purement diffusants surplombe une surface sombre comme l'océan (si  $\omega_0 = 1$  alors  $\Delta\rho > 1$  dans l'équation 2.16). Au-dessus d'une surface brillante comme les nuages, le signe de la perturbation dépend de l'albédo de simple diffusion des aérosols (et donc de leur absorption) et de l'albédo de la surface sous-jacente. En effet, le second terme du membre de droite de l'équation 2.16 est négatif pour  $\omega_0 < 1$  et sa valeur absolue va augmenter avec les valeurs croissantes de  $\rho_s$ , pouvant conduire à une perturbation  $\Delta\rho$  négative. La scène apparaît alors plus sombre en présence d'aérosols absorbants ce qui implique une augmentation de la quantité de lumière piégée par le système et le résultat est un effet de réchauffement.

Par exemple, des études de modélisation estiment le forçage radiatif direct des aérosols de feux de biomasse africaine au-dessus des stratocumulus marins de l'océan Atlantique sud-oriental entre -1 et +2 W.m<sup>-2</sup>, en moyenne sur la période août-septembre 2006 (Stier et al. 2013 ; Zuidema et al. 2016b). Ces calculs ont été réalisés au sommet de l'atmosphère, sur le spectre solaire et sont intégrés sur la journée. Dans

cette même région du monde et pour ce même type d'aérosol, le DRE moyen mesuré par le spectromètre d'absorption à imagerie par balayage pour la cartographie atmosphérique (SCIAMACHY), au cours de la période d'août à septembre 2006-2009, est d'environ  $30\text{-}35 \text{ W. m}^{-2}$  (de Graaf et al. 2014). L'instrument SCHIAMACHY mesure le forçage également sur le spectre solaire mais à l'heure de passage du satellite (forçage instantané). À titre de comparaison, à l'heure du passage de SCHIAMACHY au-dessus de la région de l'Atlantique Sud-Est, le modèle de climat HADGEM indique en moyenne un forçage instantané de l'ordre de  $6 \text{ W. m}^{-2}$  pour le mois d'août 2006 (de Graaf et al. 2014). La grande différence entre le DRE moyen simulé et observé s'explique par une sous-estimation de l'absorption des aérosols, notamment dans l'ultraviolet (absence de carbone brun), mais aussi par une mauvaise représentation de l'albédo des nuages dans les modèles de climat (de Graaf et al. 2014). Ces différences sont dues également aux difficultés rencontrées par les modèles de climat à bien reproduire à la fois les propriétés de charge et d'absorption des aérosols au-dessus des nuages (Peers et al. 2015).

#### 2.4.2 Effets radiatifs semi-directs

L'absorption du rayonnement solaire par les aérosols modifie les propriétés thermodynamiques de l'atmosphère (changement des profils verticaux de température et d'humidité relative) ce qui peut impacter le développement du nuage. Ce sont les effets semi-directs. Ils dépendent de la position relative des aérosols par rapport aux nuages, du type de nuage et du degré d'absorption des aérosols (Koch et Del Genio 2010).

Lorsque les aérosols sont sous le nuage, l'échauffement induit par l'absorption du rayonnement par la couche d'aérosols sous-jacente renforce généralement les mouvements convectifs et le processus de condensation. Cela privilégie le développement des nuages de type stratiforme (Johnson et al. 2004) et cumuliforme (Feingold et al. 2005).

Lorsque les aérosols sont dans le nuage, l'échauffement causé par la couche d'aérosols absorbants favorise généralement le phénomène d'évaporation, ce qui conduit à une diminution du contenu en eau liquide. Par conséquent, le couvert

nuageux se réduit pour le cas des cumulus (Ackerman et al. 2000) et des stratocumulus (Hill et Dobbie 2008).

Lorsque les aérosols absorbants sont au-dessus du nuage, l'échauffement provoqué par l'absorption du rayonnement par la couche d'aérosols supérieure renforcerait l'inversion en température se produisant au-dessus des nuages stratiformes, ce qui stabiliserait la couche limite pour le cas des stratocumulus. De plus, un fort refroidissement se produit typiquement au sommet des stratocumulus. Ce refroidissement provoque notamment des turbulences et l'entraînement d'air sec par le sommet du nuage. En réchauffant fortement la couche d'atmosphère localisée au-dessus du nuage, l'aérosol absorbant diminuerait ce refroidissement, ce qui limiterait l'entraînement d'air sec par le sommet et préserverait ainsi l'humidité du nuage, renforçant la couverture nuageuse (Johnson et al. 2004 ; Brioude et al. 2009 ; Deaconu et al. 2019). Pour le cas des cumulus de faible épaisseur, la couche d'aérosols absorbants surplombant le nuage pourrait inhiber la formation de ces nuages. Pour le cas des cumulus épais, l'inverse se produirait avec un renforcement de la convection facilitant le développement de ces nuages (Koren et al. 2008).

Par exemple, des études de modélisation ont montré que le forçage radiatif semi-direct des aérosols de feux de biomasse absorbants au-dessus des stratocumulus, dans la région de l'Atlantique Sud-Est, est principalement négatif au sommet de l'atmosphère. Il a été estimé en moyenne à  $-2.6 \text{ W. m}^{-2}$  sur la période juillet-septembre par Sakaeda et al. (2011) ou à  $-30.5 \text{ W. m}^{-2}$  sur quelques journées d'étude (période 5-10 août 2016, Gordon et al. 2018).

### 2.4.3 Effets radiatifs indirects

Les aérosols peuvent servir de noyaux de condensation (CCN, Cloud Condensation Nucleis) dans la formation des nuages et affecter ainsi leurs propriétés microphysiques et optiques. Par conséquent, une augmentation de la concentration des aérosols peut entraîner une augmentation de la concentration des CCN et généralement une augmentation de la concentration des gouttelettes d'eau constituant le nuage. Pour un contenu en eau liquide du nuage fixé, cet effet s'accompagne d'une augmentation du nombre de gouttelettes et d'une réduction de leur taille, ce qui

entraîne une augmentation de l'albédo des nuages et donc un refroidissement du système climatique. Cet effet est usuellement appelé premier effet indirect des aérosols (Twomey, 1977). D'autre part, la diminution de la taille des gouttelettes d'eau en présence d'aérosols peut altérer la capacité du nuage à générer des gouttes suffisamment grosses pour déclencher les précipitations. Ce processus peut être vu comme un ajustement rapide, ou comme une série d'ajustements rapides, du nuage à l'effet des aérosols en tant que noyaux de condensation. Cet effet est traditionnellement nommé second effet indirect des aérosols (Gunn et Phillips 1957 ; Albrecht 1989 ; Liou et Ou 1989).

Des études de modélisation récentes ont montré que dans la région de l'Atlantique Sud-Est, au cours de la saison sèche, les aérosols de feux de biomasse africaine pourraient avoir un effet radiatif indirect de  $-10.1 \text{ W.m}^{-2}$  (du 5 au 10 août 2016, Gordon et al. 2018) et de  $-8.05 \text{ W.m}^{-2}$  (du 1<sup>er</sup> août au 30 septembre 2014, Lu et al. 2018). Comme pour les effets semi-directs, il convient de noter qu'il n'y a pas encore de consensus sur la quantification des effets indirects des aérosols dans la région de l'Atlantique Sud-Est.





### 3 Méthodologie basée sur les outils d'observations satellitaires et de modélisation

Ce troisième chapitre présente les données de télédétection ainsi que l'outil de modélisation utilisés dans cette thèse. Nous décrirons tout d'abord les différentes méthodes de télédétection fournissant les paramètres optiques et microphysiques des aérosols et des nuages. Ensuite, nous exposerons le principe de fonctionnement du modèle régional de météorologie couplée à la chimie WRF-Chem. Enfin, nous clôturerons ce chapitre par la présentation de la démarche scientifique s'appuyant sur ces deux types d'outils.

#### 3.1 Données d'observations satellitaires

##### 3.1.1 Introduction sur les méthodes de télédétection

Les mesures par télédétection jouent un rôle essentiel dans l'étude du changement climatique en apportant des informations uniques sur la distribution spatiale et temporelle des concentrations en aérosols et de leurs propriétés physico-chimiques et optiques (Boucher et Tanré 2000 ; Kaufman et al. 2002 ; Ghan et Schwartz 2007 ; Tanré et al. 2011).

La télédétection<sup>4</sup> est un procédé permettant d'acquérir à distance des informations sur les propriétés d'un objet (par exemple, un aérosol, un nuage, une surface terrestre ou océanique). Elle est qualifiée de passive pour un système de télédétection (spectromètre, radiomètre, ...) qui repose sur la mesure d'un rayonnement naturel émis ou réfléchi (par exemple, le rayonnement solaire) par la cible observée. Elle est qualifiée d'active pour un système de télédétection (lidar, radar, ...) qui émet un rayonnement artificiel dans la direction de la cible pour l'éclairer et qui mesure en retour les propriétés du signal rétrodiffusé.

---

<sup>4</sup> <https://earthdata.nasa.gov/learn/remote-sensors>

Les mesures de télédétection peuvent être effectuées : depuis le sol (photomètres solaires et lidar), depuis l'atmosphère (mesures aéroportées) et depuis l'espace (satellites héliosynchrones et géostationnaires) (Deuzé et al. 1999 ; Tanré et al. 2001 ; Kahn et al. 2009 ; Yu et al. 2009).

AERONET (Aerosol Robotic Network) est un réseau mondial de télédétection au sol de photomètres automatiques mesurant les contenus et propriétés des aérosols sur la colonne atmosphérique (Holben et al. 1998, 2001). Les stations AERONET fournissent en premier lieu des mesures directes et calibrées de l'épaisseur optique aérosol (AOD) à différentes longueurs d'onde du visible au proche infrarouge (440, 670, 870 et 1 020 nm) avec une précision de l'ordre de  $\pm 0.015$  (Eck et al. 1999), mais uniquement en ciel clair (Smirnov et al. 2000). Les mesures photométriques sont également utilisées pour restituer l'indice de réfraction complexe des aérosols, en fonction de la longueur d'onde, leur distribution en taille et la fraction de particules non-sphériques (Dubovik et al. 2000). L'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) est également fourni avec une précision de  $\pm 0.03$  mais des conditions d'observations particulières sont nécessaires à son inversion, par exemple pour une charge en aérosol suffisante. Les données AERONET sont utilisées, entre autres, pour l'évaluation des modèles numériques d'aérosols et des produits aérosols restitués par les algorithmes d'inversion appliqués aux mesures de télédétection spatiale (Chin et al. 2002 ; Yu et al. 2003, 2005 ; Kahn et al. 2005 ; Remer et al. 2005).

Les observations aéroportées réalisées lors de campagnes de terrain intensives combinent généralement des mesures in-situ et par télédétection (Ruellan et al. 1999 ; Haywood et al. 2003 ; Capes et al. 2008 ; Zuidema et al. 2016b ; Formenti et al. 2019). Les mesures aéroportées permettent d'échantillonner localement mais de manière détaillée les propriétés optiques (coefficients d'absorption, de diffusion et d'extinction), chimiques (concentrations en masse) et microphysiques (distributions en taille et concentration en nombre) des aérosols à différentes altitudes. Néanmoins, les mesures aéroportées sont intrinsèquement limitées par leur durée limitée et leur faible couverture spatiale.

La télédétection par satellite présente l'avantage de permettre de cartographier les distributions spatiales et temporelles des aérosols avec une couverture régionale à globale et une fréquence d'observation généralement journalière, ou même plus

élevée pour les satellites géostationnaires (Carrer et al. 2014). Les radiomètres passifs, embarqués à bord des satellites, sont équipés de capteurs sensibles à la puissance du rayonnement électromagnétique. La luminance énergétique  $L^*$  est la grandeur fondamentale en télédétection passive qui permet de caractériser l'énergie associée à un rayonnement électromagnétique transportée dans une direction de l'espace. Cette direction est caractérisée par l'angle solaire  $\theta_s$ , l'angle de visée  $\theta_v$  et l'azimut relatif  $\Phi_v$  qui est la différence entre l'azimut de la visée et l'azimut solaire (figure 3.1).

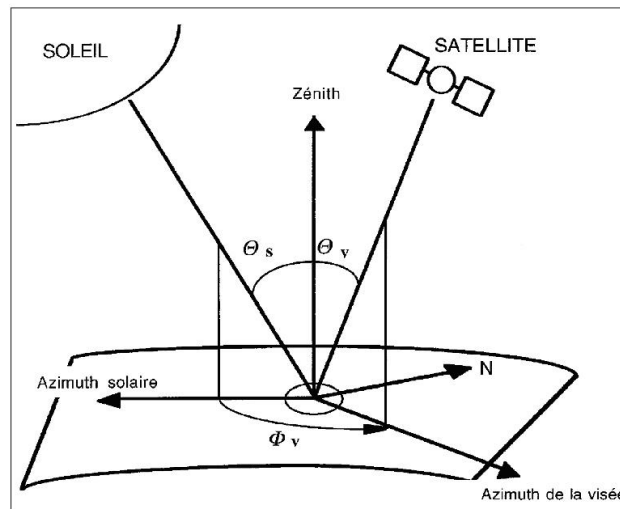


Figure 3.1 : Définition de la géométrie par rapport au point observé. Source : Tanré et al. (1986).

La luminance énergétique  $L^*$  est une grandeur monochromatique égale à la puissance émise ou diffusée dans un angle solide élémentaire par unité de surface apparente. Elle s'exprime en  $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \mu\text{m}^{-1}$  (King et al. 1999). En télédétection, on utilise typiquement la luminance normalisée  $L$  (sans unité) :

$$L(\theta_s, \theta_v, \Phi_v) = \frac{\pi L^*(\theta_s, \theta_v, \Phi_v)}{E_s} \quad (3.1)$$

$E_s$  est l'éclairement solaire au sommet de l'atmosphère (unité :  $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \mu\text{m}^{-1}$ ).

L'interprétation de cette luminance à l'aide de modèles numériques permet d'accéder à certaines propriétés des aérosols. De façon générale, les calculs réalisés avec la théorie de Mie permettent de relier les propriétés physico-chimiques des aérosols à leurs paramètres optiques qui contrôlent la luminance. Un code de transfert radiatif permet ensuite de simuler les luminances mesurées. On « ajuste » ensuite les grandeurs radiatives dans le code pour faire correspondre les simulations aux

mesures. La stratégie envisagée pour ajuster ces grandeurs et l'ensemble des codes permettant de réaliser les calculs intermédiaires constituent ce que l'on appelle un algorithme d'inversion.

Historiquement, les premiers systèmes de surveillance des aérosols depuis l'espace, basés notamment sur les observations d'AVHRR (Holben, 1986) ou de TOMS (Herman et al. 1997) dans les années 1990, ont fourni des climatologies de l'épaisseur optique aérosol à partir des mesures de la luminance énergétique à une longueur d'onde donnée au-dessus de l'océan (Husar et al. 1997 ; Mishchenko et al. 1999) et des terres (Torres et al. 1998). La compréhension de la distribution spatiale des aérosols et de leur variabilité à différentes échelles temporelles incluant le long terme a ainsi été considérablement améliorée (Geogdzhayev et al. 2002 ; Torres et al. 2002 ; Massie et al. 2004 ; Mishchenko et al. 2007 ; Mishchenko et Geogdzhayev 2007 ; Zhao et al. 2008).

Au fil des années, la détection des aérosols par satellite est devenue de plus en plus sophistiquée : filtrage des nuages plus robuste, étalonnage des instruments possible directement à bord des satellites (voir Annexe A2), amélioration de la résolution spatiale, ... Les capteurs spatiaux de seconde génération (MODIS, POLDER, MISR, MERIS et un grand nombre d'autres capteurs, ...) ont permis de mesurer la luminance dans plusieurs bandes spectrales avec une résolution spectrale plus fine. Certains satellites ont également permis de mesurer la dépendance angulaire de la luminance énergétique et son état de polarisation à plusieurs longueurs d'onde. À partir de ces observations inédites, les paramètres aérosols restitués comprennent dorénavant l'épaisseur optique spectrale, au-dessus des océans et des terres, ainsi que l'exposant d'Angström, fournissant une information sur la taille des particules, mais uniquement au-dessus des océans. La précision de la mesure de l'épaisseur optique aérosol est d'environ 0.05 ou 20 % de la valeur de l'AOD au-dessus des surfaces océaniques (Kahn et al. 2005 ; Remer et al. 2005). Les propriétés des aérosols sont restituées de façon plus précise au-dessus des surfaces océaniques qu'au-dessus des surfaces terrestres. Pour ce dernier cas, la principale difficulté consiste à séparer la contribution radiative de la surface, particulièrement intense, de celle de l'aérosol. Pour une raison similaire, la détection des aérosols a été, jusqu'à il y a peu de temps, restreinte aux situations en ciel clair, c'est-à-dire sans nuage puisque les nuages constituent une cible particulièrement brillante.

### 3.1.2 Télédétection passive et active : l'A-Train

La constellation de six satellites héliosynchrones formant l'A-Train<sup>5</sup> a combiné pour la première fois des instruments de télédétection passive et active (Stephens et al. 2002). L'A-Train a été conçu par la NASA pour étudier les nuages, les précipitations et les impacts des aérosols sur le climat (Anderson et al. 2005). Les satellites de l'A-Train décrivent une orbite héliosynchrone à 705 km d'altitude qui passe au-dessus de l'équateur du sud vers le nord en début d'après-midi vers 13h30, heure solaire locale. Seulement quelques secondes à quelques minutes séparent le passage de ces instruments ce qui autorise une utilisation en synergie des mesures fournies par ces différentes missions d'observations du globe terrestre. À l'heure actuelle, la constellation internationale dite de l'après-midi, illustrée sur la figure 3.2, est constituée des satellites de l'A-Train (Aqua, Aura, GCOM-W1, OCO-2) et du C-Train (« C » pour CALIPSO et CloudSat).

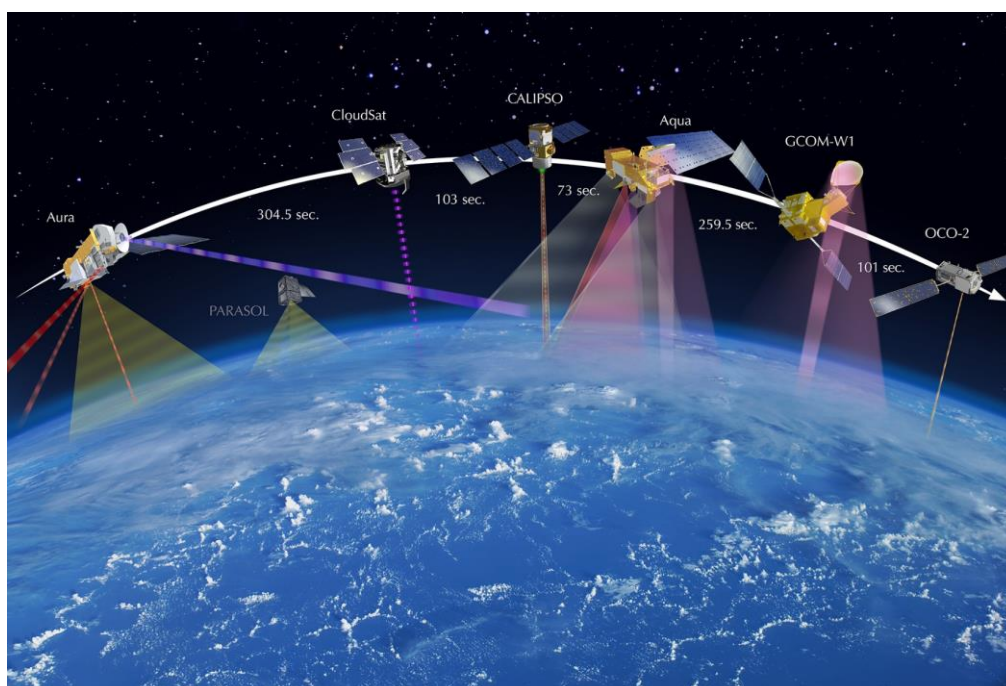


Figure 3.2 : Représentation actuelle (juin 2017) de la constellation internationale de l'après-midi composée des satellites de l'A-Train (Aqua, Aura, GCOM-W1, OCO-2) et du C-Train (CALIPSO et CloudSat). PARASOL, lancé le 18 décembre 2004, a quitté définitivement l'A-Train le 18 décembre 2013. Crédits : NASA.

**La mission américaine Aqua**, lancée le 4 mai 2002, est la toute première plateforme du programme A-Train. Le spectroradiomètre imageur à résolution moyenne MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) est l'un des six instruments

<sup>5</sup> <https://atrain.nasa.gov/>

embarqués à bord du satellite Aqua. Ce capteur spatial passif mesure la signature spectrale monodirectionnelle des luminances au sommet de l'atmosphère du visible à l'infrarouge thermique, soit de 0.415 à 14.235  $\mu\text{m}$  s'étendant sur 36 bandes spectrales. MODIS dispose d'un masque nuageux pour inverser les propriétés optiques et microphysiques des aérosols en ciel clair (épaisseur optique aérosol spectrale, contribution fractionnaire du mode d'accumulation à l'épaisseur optique totale, taille moyenne des particules du mode dominant, facteur d'asymétrie) (Tanré et al. 1997). Concernant les nuages, leurs propriétés optiques (épaisseur optique) et microphysiques (rayon effectif, contenu en eau liquide lié à l'épaisseur géométrique du nuage) ainsi que leur phase thermodynamique sont restituées. Les propriétés physiques du sommet des nuages (température, pression, émissivité effective) sont également estimées (Platnick et al. 2003). L'instrument MODIS permet d'effectuer des mesures à une résolution spatiale plus fine que la plupart des capteurs dédiés à l'étude des aérosols et des nuages (250 x 250  $\text{m}^2$  pour les canaux centrés sur 644 nm et 855 nm, par exemple). Les paramètres aérosols et nuages sont typiquement fournis avec des résolutions spatiales horizontales de l'ordre de 10 km x 10 km et de 1 km x 1 km respectivement, et à une résolution temporelle journalière (Platnick et al. 2003 ; Remer et al. 2005).

**La mission américaine Aura**, lancée le 15 juillet 2004, est la deuxième plateforme du programme A-Train. Le spectromètre à haute résolution OMI (Ozone Monitoring Instrument) est l'un des quatre instruments embarqués à bord du satellite Aura. Ce capteur spatial passif mesure les réflectances au sommet de l'atmosphère dans la gamme spectrale ultraviolet-visible, soit de 270 à 500 nm avec une résolution spectrale d'environ 0.5 nm (Levelt et al. 2006). OMI fournit en particulier les propriétés des aérosols absorbants dans l'ultraviolet et permet de restituer les quantités totales d'ozone et de certains gaz traces (dioxyde d'azote, dioxyde de soufre, formaldéhyde, oxyde de brome et dioxyde de chlore) sur la colonne atmosphérique. L'ensemble de ces paramètres est restitué avec une résolution spatiale horizontale de 13 km x 24 km et à une résolution temporelle journalière (Torres et al. 2007, 2013).

**La mission française PARASOL** (Polarization and Anisotropy of Reflectances for Atmospheric Sciences Coupled with Observations from a Lidar), lancée le 18 décembre 2004, est la troisième plateforme du programme A-Train. Le satellite

PARASOL embarque à son bord le capteur spatial passif POLDER (Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances). POLDER mesure les luminances polarisées et totales pour mieux caractériser les propriétés optiques et microphysiques des aérosols et des nuages afin de mieux comprendre leurs influences sur le climat (Tanré et al. 2011). PARASOL a fait partie de l'A-Train depuis son lancement jusqu'au 16 novembre 2011, date à laquelle son orbite a été descendue à 9.5 km d'altitude sous l'orbite de l'A-Train pour cause d'épuisement de son carburant. PARASOL a cessé ses activités le 18 décembre 2013 et a alors complètement quitté l'A-Train. La mission PARASOL affiche une disponibilité moyenne d'observations de plus de 90 % (Tanré, 2014) avec l'acquisition d'environ 8.5 années de données sur les 9 années de vol dont quasiment :

- 5 ans de données communes avec les instruments de la plateforme Aqua ;
- 3.5 ans de données concomitantes avec les plateformes CALIPSO et CloudSat.

**La mission franco-américaine CALIPSO** (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations), lancée le 28 avril 2006, est la quatrième plateforme du programme A-Train. Le satellite CALIPSO embarque notamment à son bord le lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) qui est un instrument de télédétection active. Le laser utilisé par ce lidar émet de la lumière polarisée linéairement à 532 nm et 1 064 nm. Un télescope permet de collecter la lumière rétrodiffusée par l'atmosphère et les surfaces. L'une des trois voies de réception de l'instrument mesure la rétrodiffusion à 1 064 nm, alors que les deux autres sont dédiées à la mesure des composantes respectivement orthogonale et parallèle de la polarisation à 532 nm. CALIOP fournit les coefficients de rétrodiffusion atténués à 532 et 1 064 nm (unité :  $\text{km}^{-1} \cdot \text{sr}^{-1}$ ) et le rapport de dépolarisation à 532 nm (sensible à la forme des particules). CALIOP fournit les profils verticaux d'extinction et de rétrodiffusion des aérosols troposphériques ainsi que l'épaisseur optique aérosol en ciel clair et au-dessus des nuages à 532 et 1 064 nm, uniquement sous la trace du satellite avec une résolution spatiale horizontale de 335 mètres à 1 km. Les mesures de CALIOP permettent de restituer l'altitude des couches troposphériques (sommets et bases) d'aérosols et de nuages avec une résolution spatiale verticale très fine, de 30 à 60 mètres et à une résolution temporelle journalière (Winker et al. 2009).

**La mission américaine CloudSat**, lancée en même temps que CALIPSO, est la cinquième plateforme du programme A-Train. Le satellite CloudSat embarque à son bord le radar CPR (Cloud Profiling Radar) qui fournit le contenu en eau liquide et la structure des nuages épais (Im et al. 2005).

L'A-Train a finalement été complété par les missions :

- japonaise GCOM-W1 (18 mai 2012) dont le rôle est d'apporter une meilleure compréhension de l'eau dans le système climatique terrestre en mesurant le cycle global de l'eau (Imaoka et al. 2010) ;
- américaine OCO-2 (2 juillet 2014) dont l'objectif scientifique est de tenter de mieux quantifier le réchauffement climatique en mesurant les concentrations globales totales de CO<sub>2</sub> sur la colonne atmosphérique (Hakkarainen et al. 2016).

Dans cette thèse, nous nous appuyons principalement sur les données POLDER, OMI et CALIOP pour l'évaluation des propriétés microphysiques et optiques des aérosols simulés par WRF-Chem. Ces données et les algorithmes associés sont décrits de manière plus détaillée dans les paragraphes suivants.

### 3.1.3 La mission PARASOL

#### 3.1.3.1 Le polarimètre POLDER-3

Le capteur spatial POLDER est un polarimètre imageur multispectral à grand champ qui mesure les composantes directionnelles, polarisées et spectrales du rayonnement réfléchi par le système Terre-atmosphère (Tanré et al. 2011). Le rayonnement résultant des interactions entre les particules et les surfaces terrestres est partiellement polarisé linéairement. Les principaux processus qui polarisent le rayonnement sont la diffusion par les molécules et les particules atmosphériques et le phénomène de réflexion du rayonnement sur les surfaces. La luminance (totale) mesurée est donc la somme des luminances naturelles (non polarisées) et polarisées linéairement. L'instrument fournit des paramètres de Stokes (I, Q et U) qui permettent de caractériser l'état de polarisation linéaire du rayonnement atmosphérique. I est une mesure de l'intensité du rayonnement (luminance totale) et Q et U définissent l'amplitude et l'orientation de la fraction de lumière polarisée linéairement. Ces



paramètres peuvent être exprimés dans les mêmes unités qu'une luminance et sont reliés à l'amplitude des composantes orthogonales du champ électrique moyennées dans le temps (Chandrasekhar 1950a, 1950b). On définit la luminance polarisée  $L_p$  (normalisée), utilisée dans de nombreuses applications en télédétection avec l'équation suivante :

$$L_p = \frac{\pm \pi \sqrt{Q^2 + U^2}}{E_S} \quad (3.2)$$

La luminance polarisée  $L_p$  est une quantité signée : celle-ci est positive lorsque le champ électrique de l'onde polarisée est perpendiculaire au plan de diffusion (défini par les directions incidente et de visée sur la figure 3.1) et négative quand il lui est parallèle.

L'instrument POLDER a été conçu au Laboratoire d'Optique Atmosphérique (Deschamps et al. 1990, 1994) en collaboration avec le CNES (Centre National d'Études Spatiales). Le polarimètre a été décliné sur trois plateformes satellitaires : ADEOS-I (POLDER-1), ADEOS-II (POLDER-2), et PARASOL (POLDER-3). C'est le premier capteur spatial qui a permis de décrire de manière spectrale et directionnelle la polarisation du rayonnement provenant des interactions avec le système Terre-atmosphère. Le capteur spatial POLDER-3 se compose :

- d'une caméra numérique de type CCD (Charge Coupled Device) d'une résolution de 274 x 242 pixels ;
- d'une optique télécentrique à grand champ ;
- d'une roue porte-filtres rotative permettant de mesurer dans neuf canaux spectraux allant du bleu (443 nm) au proche infrarouge (1 020 nm).

Les mesures de polarisation sont effectuées à trois longueurs d'onde : 490, 670 et 865 nm. La largeur de bande est comprise entre 20 nm et 40 nm selon les bandes spectrales. La taille des pixels est de 5.3 km x 6.2 km au nadir. L'instrument peut observer des cibles au sol à partir de différentes directions de vue,  $\pm 51^\circ$  le long de la fauchée et  $\pm 43^\circ$  perpendiculairement à la fauchée grâce à l'acquisition d'une séquence d'images toutes les vingt secondes. Compte tenu de l'altitude du satellite PARASOL,

la taille des images est de  $2\,100 \times 1\,600\text{ km}^2$ , ce qui permet une couverture mondiale en deux jours. Par rapport aux capteurs POLDER-1 et POLDER-2, le système optique télécentrique pour POLDER-3 a été tourné de 90 degrés pour privilégier l'aspect multidirectionnel à la couverture globale. Le principe de la mesure directionnelle se base sur le recouvrement des images acquises consécutivement. Son optique grand champ permet à l'instrument d'observer une cible selon seize géométries de visée différentes. Différentes techniques, basées sur l'utilisation de cibles géophysiques, sont utilisées pour étalonner en vol le capteur POLDER (Hagolle et al. 1999). Les méthodes s'appuient notamment sur la diffusion moléculaire et la lumière du Soleil réfléchi par des cibles brillantes telles que les nuages et les zones désertiques pour valider les performances de l'instrument en vol (Fougnie et al. 2007). La dégradation temporelle du capteur a été surveillée et corrigée (Fougnie 2015). L'erreur résiduelle, après correction, est de l'ordre de 3 % pour l'ensemble des luminances de POLDER-3, à l'exception du canal centré sur 443 nm. Pour ce canal, l'erreur peut-être potentiellement plus importante en fonction de la cible (voir Annexe A2).

En plus des deux algorithmes opérationnels pour la détection des aérosols au-dessus des mers et des surfaces terrestres (Tanré et al. 2011), deux méthodes d'inversion innovantes ont été développées au Laboratoire d'Optique Atmosphérique et appliquées aux mesures recalibrées de l'instrument POLDER. Ce sont les algorithmes aérosols GRASP en ciel clair (Dubovik et al. 2011, 2014) et AERO-AC au-dessus des nuages (Waquet et al. 2013a ; Waquet et al. 2013b ; Peers et al. 2015). Ces deux algorithmes d'inversion restituent des propriétés optiques et microphysiques uniques des aérosols telles que leur épaisseur optique d'extinction et leur albédo de simple diffusion. Ils reposent sur la prescription de modèles d'aérosols qui sont fortement contraints par les mesures polarisées et multidirectionnelles. En effet, au-dessus des océans, les contributions du mode fin et du mode grossier des aérosols peuvent être séparées (Deuzé et al. 1999) et la non-sphéricité des particules peut être évaluée (Herman et al. 2005). Au-dessus des terres, la polarisation est sensible à la présence d'aérosols du mode fin et a permis de quantifier les principales sources de pollution au-dessus des continents (Deuzé et al. 1993, 2001). Par ailleurs, l'aspect multidirectionnel des mesures POLDER favorise la distinction entre le ciel clair et les scènes nuageuses et présente donc un avantage considérable pour étudier les nuages (Buriez et al. 1997). La phase thermodynamique du nuage peut effectivement être

spécifiée grâce à la signature angulaire en polarisation (Goloub et al. 1994, 2000 ; Riedi et al. 2010) : les nuages d'eau liquide (Bréon et Goloub 1998) et les nuages de glace (Chepfer et al. 1999) peuvent être séparés. Les mesures effectuées dans la bande A de l'oxygène de POLDER permettent également d'estimer la pression apparente du sommet du nuage (Vanbaeue et al. 2003). Le point commun entre les algorithmes de restitution POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC est l'inversion des propriétés radiatives de la cible sous-jacente (surface pour POLDER-3/GRASP et nuage pour POLDER-3/AERO-AC) simultanément avec les propriétés de la couche d'aérosols.

### 3.1.3.2 Restitution des propriétés des aérosols en ciel clair par POLDER-3/GRASP

L'algorithme d'inversion POLDER-3/GRASP (Generalized Retrieval of Atmosphere and Surface Properties) permet de restituer les propriétés atmosphériques des aérosols à partir des observations combinées ou séparées de différents outils de télédétection passive et active (par satellite, au sol, aéroportée) (Dubovik et al. 2011, 2014).

À partir des mesures de la luminance totale (443, 490, 565, 670, 865 et 1 020 nm) et polarisée linéairement (490, 670 et 865 nm) de POLDER-3, POLDER-3/GRASP restitue à la fois les propriétés des surfaces (albédo, réflectance) et des aérosols :

- optiques : épaisseur optique d'extinction totale, épaisseur optique d'absorption totale, épaisseur optique des aérosols du mode fin, épaisseur optique des aérosols du mode grossier, exposant d'Angström, albédo de simple diffusion, indice de réfraction ;
- microphysiques : distribution en taille des particules, détermination d'un mode fin et d'un mode grossier, fraction sphérique des particules ;
- altitude moyenne de la couche d'aérosols.

La méthode d'inversion consiste à combiner les informations des luminances totales et polarisées pour séparer les contributions des surfaces et des aérosols. En effet, les signatures radiatives directionnelles et spectrales des surfaces et des aérosols sont différentes. En luminance polarisée, la contribution des aérosols domine généralement

celle de la réflectance des surfaces. En luminance totale, la contribution de la surface terrestre est généralement comparable ou supérieure à celle des aérosols. La technique est aussi améliorée grâce à l'approche multi spatiale et multi temporelle qui permet de mieux caractériser les propriétés des surfaces et des aérosols. Par exemple, une scène désertique est observée en présence de poussières minérales puis, plus tard, lors d'un second passage du satellite, la même scène est observée mais en l'absence de particules désertiques. En faisant l'hypothèse que les propriétés de la surface varient peu sur une période de temps donnée (une contrainte mathématique est imposée), la combinaison des informations spatiales va permettre une meilleure séparation de la surface et des aérosols.

Contrairement à la plupart des inversions par satellite (Herman et al. 2005 ; Kahn et al. 2007 ; Carrer et al. 2010 ; Wagner et al. 2010 ; Waquet et al. 2013a ; Peers et al. 2015), POLDER-3/GRASP n'a pas recours à des tables précalculées de type LUT (Look Up Table) pour reproduire au mieux les observations et repose sur une méthode de type variationnelle et sur des concepts statistiques (Dubovik et King 2000 ; Dubovik, 2004). Un code de transfert radiatif calcule en ligne les luminances totales et polarisées linéairement en résolvant l'équation de transfert radiatif en utilisant les ordres successifs de diffusion (Lenoble et al. 2007). Les interactions multiples du rayonnement solaire avec les aérosols, les gaz et les surfaces sont prises en compte. Les effets de la réflectance de la surface sont simulés par une fonction de distribution de réflectance bidirectionnelle (BRDF) et par une fonction de distribution de polarisation bidirectionnelle (BPDF). Le modèle aérosol est supposé être un mélange de particules sphériques et non-sphériques. Une théorie alternative à la théorie de Mie est utilisée pour décrire les propriétés optiques des particules non-sphériques (Dubovik et al. 2006). Comme pour l'algorithme développé pour AERONET, la distribution en taille des aérosols est discrétisée (en gammes de taille) et la quantité de particules pour chaque gamme de taille est inversée. L'indice de réfraction complexe est inversé également pour chaque bande spectrale.

Dans cette étude, nous utiliserons la version dite « optimisée » de POLDER-3/GRASP qui a été mise à disposition au Laboratoire d'Optique Atmosphérique au début de cette thèse. Dans cette approche, des approximations sur la précision des calculs de transferts radiatifs ont été réalisées afin d'obtenir le meilleur compromis possible entre la vitesse de traitement et la précision des résultats. Ce traitement a permis de traiter

l'archive PARASOL dans son intégralité pour la première fois avec ce type de méthode. Les comparaisons réalisées avec les données AERONET ont montré que l'épaisseur optique aérosol est restituée avec une précision de l'ordre de 20 % au-dessus des terres (Dubovik et al. 2011 ; Popp et al. 2016 ; Chen et al. 2018, 2019, 2020 ; Li et al. 2019). L'erreur maximale sur le SSA a été estimée à environ  $\pm 0.05$  également au-dessus des surfaces terrestres et dans le cas de fortes charges en aérosols (voir annexe A1). Nous nous servons, entre autres, de l'épaisseur optique d'extinction totale au-dessus des terres, à 565 nm, pour évaluer le modèle WRF-Chem au niveau des sources d'émissions de feux de biomasse, là où les charges en aérosols sont maximales. Les restitutions spectrales de l'albédo de simple diffusion des aérosols, de 443 à 1 020 nm, seront mises à profit pour étudier les propriétés d'absorption et la composition chimique des aérosols simulés.

### 3.1.3.3 Restitution des propriétés des aérosols au-dessus des nuages par POLDER-3/AERO-AC

L'algorithme d'inversion des propriétés optiques et microphysiques des aérosols au-dessus des nuages est nommé POLDER-3/AERO-AC dans cette thèse. Dans un premier temps, il restitue l'épaisseur optique de diffusion des aérosols ( $ACAOD_{diff}$ ) et leur exposant d'Angström ( $ACAE$ ) au-dessus des nuages d'eau liquide, à partir des mesures de luminances polarisées par POLDER-3 à 670 et 865 nm (Waquet et al. 2013a ; Waquet et al. 2013b). Dans un second temps, il restitue l'épaisseur optique d'absorption des aérosols ( $ACAOD_{abs}$ ) simultanément avec l'épaisseur optique du nuage sous-jacent ( $COD$ ), à partir des mesures de luminances totales à 490 et 865 nm (Peers et al. 2015). En combinant les mesures multidirectionnelles et multispectrales des luminances polarisées et totales, l'épaisseur optique d'extinction ( $ACAOD_{ext}$ ) puis l'albédo de simple diffusion des aérosols ( $ACSSA$ ) sont finalement inversés au-dessus des nuages d'eau liquide (Waquet et al. 2013a ; Waquet et al. 2013b ; Peers et al. 2015). Cette méthode d'inversion novatrice a été la première à permettre la restitution des propriétés des aérosols au-dessus des scènes nuageuses à l'échelle globale (Waquet et al. 2013b).

## Sensibilité de la luminance polarisée à la diffusion des aérosols

La présence d'une couche d'aérosols au-dessus des nuages modifie le signal rétrodiffusé par les nuages d'eau liquide et leur signature angulaire en polarisation (Waquet et al. 2009). La figure 3.3 présente les luminances polarisées (normalisées) simulées à 865 nm à partir du code de transfert radiatif SOS (Successive Orders of Scattering), qui simule des scènes nuageuses homogènes unidimensionnelles, avec et sans aérosols au-dessus du nuage (Deuzé et al. 1989).

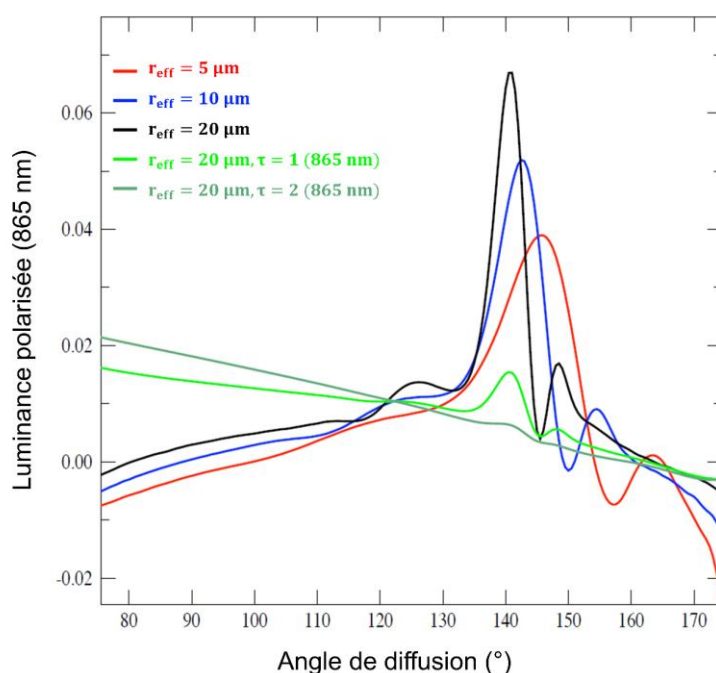


Figure 3.3 : Luminances polarisées (normalisées) simulées à 865 nm à partir du code de transfert radiatif SOS en fonction de l'angle de diffusion pour un cas de nuage seul (courbe noire), d'aérosols du mode fin au-dessus du nuage (courbes rouge et bleue) et de poussières minérales non-sphériques au-dessus du nuage (courbes vert clair et vert foncé). Les gouttelettes du nuage d'eau liquide ont un rayon effectif  $r_{eff}$  de 5  $\mu m$  pour la courbe rouge, 10  $\mu m$  pour la courbe bleue et 20  $\mu m$  pour les courbes noire, vert clair et vert foncé. L'épaisseur optique  $\tau$  des aérosols du mode fin est égale à 0.3 à 865 nm. L'épaisseur optique  $\tau$  des poussières minérales non-sphériques est de 1.0 pour la courbe vert clair et 2.0 pour la courbe vert foncé à 865 nm. Source : Waquet et al. (2013a).

La figure 3.3 montre qu'en l'absence d'aérosols, la caractéristique principale du signal rétrodiffusé par les nuages est un pic de polarisation pour un angle de diffusion autour de 140° (courbe noire). Ce phénomène physique est appelé arc-en-ciel nuageux, qui est dû à la diffusion et à la polarisation préférentielle du rayonnement par les gouttelettes d'eau sphériques dans cette direction. Pour des angles de diffusion inférieurs à 130°, le signal est faible car il est majoritairement dominé par la diffusion moléculaire. En présence d'aérosols, le signal polarisé est affecté, d'une part, par la création de polarisation par le processus de diffusion du rayonnement par les aérosols

pour les plus petits angles de diffusion ( $< 130^\circ$ ) et d'autre part, par la diminution de l'intensité de l'arc-en-ciel nuageux (courbes rouge, bleue, vert clair et vert foncé). Par ailleurs, le signal polarisé sature rapidement avec l'augmentation de l'épaisseur optique du nuage en raison de la sensibilité de la polarisation aux premiers ordres de diffusion. L'algorithme d'inversion se limite donc aux cas des nuages d'épaisseur optique supérieure à 3 (nuages optiquement épais) car le signal mesuré ne dépend plus de son épaisseur optique à partir de cette valeur seuil.

La stratégie adoptée consiste à comparer les luminances polarisées mesurées avec celles précalculées réunies dans une table de type LUT (Look Up Table). La méthode repose sur la prescription de modèles d'aérosols et de nuages. Sept modèles d'aérosols sont estimés : six modèles d'aérosols sphériques du mode fin et un modèle de poussières minérales non sphériques. L'ensemble suit une distribution en taille de type log normale. À propos des nuages, 22 modèles sont considérés pour la prise en compte de la variation de l'intensité et de la position de l'arc-en-ciel nuageux. Ils suivent tous une distribution en taille selon la loi de gamma basée sur le rayon effectif des gouttelettes des nuages d'eau liquide restitué à partir de l'instrument MODIS (Nakajima et King 1989). Les différentes combinaisons de modèles d'aérosols et de nuages prescrits, utilisées pour construire les tables de type LUT, sont regroupées dans le tableau 3.1.

|                        | Aérosols                                              |                                         | Nuages                                                 |
|------------------------|-------------------------------------------------------|-----------------------------------------|--------------------------------------------------------|
|                        | Mode fin                                              | Mode grossier                           |                                                        |
| Distribution verticale | Couche gaussienne située à 3 km d'altitude en moyenne |                                         | Couche homogène comprise entre 0 et 0.75 km d'altitude |
| Distribution en taille | Log normale                                           |                                         | Loi gamma                                              |
|                        | $r_g$ ( $\mu\text{m}$ )                               | $r_{\text{eff}}$ ( $\mu\text{m}$ )      | $r_{\text{eff}}$ ( $\mu\text{m}$ )                     |
|                        | 0.06 à 0.16<br>(pas de 0.02)                          | 0.35 (mode fin)<br>2.55 (mode grossier) | 5 à 26<br>(pas de 1)                                   |
|                        | $\sigma_g$ ( $\mu\text{m}$ )                          | $\sigma_g$ ( $\mu\text{m}$ )            | $v_{\text{eff}}$ ( $\mu\text{m}$ )                     |
|                        | 0.4                                                   | 0.4                                     | 0.06                                                   |
| Indice de réfraction   | 1.47 – 0.01i                                          | 1.47 – 0.0007i                          | 1.331 (670 nm)                                         |
|                        |                                                       |                                         | 1.330 (865 nm)                                         |

Tableau 3.1 : Caractéristiques des modèles d'aérosols et de nuages utilisés pour les calculs des luminances polarisées.  $r_g$ ,  $\sigma_g$ ,  $r_{\text{eff}}$  et  $v_{\text{eff}}$  désignent respectivement le rayon granulométrique, l'écart-type géométrique, le rayon effectif et la variance effective. Source : Waquet et al. (2013a).

### Sensibilité de la luminance totale à l'absorption des aérosols

Contrairement à la luminance polarisée qui est principalement sensible au processus de diffusion des aérosols, la luminance totale est, quant à elle, sensible à la fois aux processus d'absorption et de diffusion (Peers et al. 2015). En l'absence d'aérosols, la luminance totale réfléchie par les nuages est faiblement dépendante de la longueur d'onde de l'ultraviolet au proche infrarouge (de Graaf et al. 2012). La luminance totale est toutefois sensible à la diffusion et à l'absorption du rayonnement par les aérosols dans cette gamme de longueurs d'ondes. En présence d'aérosols de feux de biomasse, on observe une modification spectrale de la luminance totale réfléchie par le nuage, qui se traduit par une modification de la couleur apparente du nuage (le nuage prend une teinte de couleur brunâtre). Cette variation spectrale est dépendante de la microphysique des aérosols : le rapport des luminances entre 490 et 865 nm décroît avec l'augmentation de l'absorption des aérosols. Ceci s'explique par le fait que l'épaisseur optique d'absorption des aérosols est plus forte aux courtes longueurs d'onde pour les aérosols de feux de biomasse. Le contraste spectral augmente avec l'absorption des aérosols. Par ailleurs, la luminance totale à 865 nm donne accès à l'information sur l'épaisseur optique nuageuse pour une valeur donnée du rapport de luminance. Par conséquent, l'épaisseur optique d'absorption des aérosols peut être déduite simultanément avec l'épaisseur optique du nuage sous-jacent à partir des mesures des luminances totales à 490 et 865 nm. Cette condition est valable si l'épaisseur optique de diffusion et la distribution en taille des aérosols sont au préalable connues, ce qui est le cas grâce aux mesures des luminances polarisées à 670 et 865 nm.

Dans sa version finale, POLDER-3/AERO-AC combine les différentes informations précédemment décrites et déduites des mesures des luminances totales et polarisées. La technique repose sur la prescription de modèles d'aérosols et de nuages améliorés par rapport à la version originelle de POLDER-3/AERO-AC dont les caractéristiques sont indiquées dans le tableau 3.2.



|                        | Aérosols                                            |                                         | Nuages                                              |
|------------------------|-----------------------------------------------------|-----------------------------------------|-----------------------------------------------------|
|                        | Mode fin                                            | Mode grossier                           |                                                     |
| Distribution verticale | Couche homogène comprise entre 2 et 3 km d'altitude |                                         | Couche homogène comprise entre 0 et 1 km d'altitude |
| Distribution en taille | Log normale                                         |                                         | Loi gamma                                           |
|                        | $r_g$ (μm)                                          | $r_{eff}$ (μm)                          | $r_{eff}$ (μm)                                      |
|                        | 0.06 à 0.16<br>(pas de 0.02)                        | 0.35 (mode fin)<br>2.55 (mode grossier) | 10                                                  |
|                        | $\sigma_g$ (μm)                                     | $\sigma_g$ (μm)                         | $v_{eff}$ (μm)                                      |
|                        | 0.4                                                 | 0.4                                     | 0.06                                                |
| Indice de réfraction   | 1.47 – $m_i$                                        | 1.47 – $m_i$                            | 1.338 (490 nm)                                      |
| $m = m_r - m_i$        | $m_{i,1} = 0.0000$                                  | $m_{i,490nm} = 0$ à 0.004               | 1.330 (865 nm)                                      |
|                        | $m_{i,2} = 0.0025$                                  | (pas de 0.0005)                         |                                                     |
|                        | $m_{i,3} = 0.0050$                                  | $m_{i,865nm} = 0.0007$                  |                                                     |

Tableau 3.2 : Caractéristiques des modèles d'aérosols et de nuages utilisés pour les calculs des luminances polarisées et totales.  $r_g$ ,  $\sigma_g$ ,  $r_{eff}$  et  $v_{eff}$  désignent respectivement le rayon granulométrique, l'écart-type géométrique, le rayon effectif et la variance effective. Source : Peers (2015).

Le produit final restitue l'ACAOD<sub>ext</sub> et l'ACSSA à 490, 550, 670 et 865 nm, l'ACAE (calculé entre 670 et 865 nm) et le COD à une résolution spatiale de 6 x 6 km<sup>2</sup> et à une résolution temporelle quasi-journalière (Waquet et al. 2013a ; Waquet et al. 2013b ; Peers et al. 2015).

Remarquons que le canal spectral à 550 nm n'est pas fourni directement par les mesures du polarimètre POLDER-3. Cette bande spectrale a été ajoutée à la demande des modélisateurs qui utilisent typiquement cette longueur d'onde dans le visible pour l'évaluation des paramètres aérosols simulés. En considérant que l'absorption des aérosols ne dépend pas de la longueur d'onde entre 490 et 865 nm dans POLDER-3/AERO-AC, les propriétés optiques des aérosols peuvent être calculées à 550 nm avec la théorie de Mie (ACAOD, ACSSA, ...), connaissant la taille des particules, leur niveau d'absorption et leur épaisseur optique (à 865 nm).

Différents filtres sont également utilisés pour améliorer la qualité du produit final. Les restitutions ne sont fournies que dans le cas de nuages optiquement épais (COD > 3) et homogènes (les couvertures fractionnées et les bords de nuage sont éliminés). Les cirrus présents au-dessus des nuages sont également éliminés à partir de mesures acquises dans l'infrarouge thermique par l'instrument MODIS (Waquet et al. 2013a ; Peers et al. 2015).

Les études de sensibilité réalisées pour POLDER-3/AERO-AC indiquent des erreurs relatives maximales de 20 % pour l'épaisseur optique d'extinction des aérosols et de 0.05 sur l'albédo de simple diffusion pour des particules de feux de biomasse transportées au-dessus des nuages (Peers et al. 2015). Ces incertitudes peuvent être expliquées par les hypothèses utilisées pour les propriétés microphysiques des aérosols (tableau 3.1 et tableau 3.2).

Cette technique d'inversion a été appliquée au niveau global et comparée avec des restitutions du lidar CALIOP (Deaconu et al. 2017). L'analyse de l'épaisseur optique d'extinction restituée avec le produit CALIOP « dépolarisation » (décrit ci-après) montre des écarts inférieurs à 20 % par rapport à POLDER-3/AERO-AC sur l' $ACAOD_{ext}$  pour les fines particules de feux de biomasse. En revanche, les écarts entre POLDER-3/AERO-AC et CALIOP augmentent pour les poussières minérales et surtout pour un mélange complexe d'aérosols (par exemple, feux de biomasse et pollution urbaine).

Dans cette thèse, nous nous appuyons, entre autres, sur l'épaisseur optique d'extinction à 550 nm pour évaluer le modèle WRF-Chem au niveau du contenu des aérosols de feux de biomasse transportés au-dessus des stratocumulus marins. Les restitutions spectrales de l'albédo de simple diffusion, de 490 à 865 nm, seront exploitées pour étudier les propriétés d'absorption des aérosols simulés au large des côtes sud-africaines.

### 3.1.4 Caractérisations des aérosols et des nuages par le lidar CALIOP

La méthode d'inversion opérationnelle appliquée aux données du lidar CALIOP permet de restituer l'épaisseur optique aérosol en ciel clair et au-dessus des nuages à partir de la rétrodiffusion du signal mesuré à 532 et 1 064 nm, et du rapport de dépolarisation, en plusieurs étapes (Winker et al. 2009). Premièrement, les différentes couches d'aérosols et de nuages sont détectées par l'algorithme de détection des couches SIBYL (Selective Iterative Boundary Locator) (Vaughan et al. 2009). Deuxièmement, les couches détectées sont identifiées par un ensemble d'algorithmes de classifications des scènes (aérosol ou nuage, type d'aérosol, nuage d'eau liquide ou nuage de glace) (Liu et al. 2009 ; Omar et al. 2009). Troisièmement, l'algorithme de restitution de l'extinction HERA (Hybrid Extinction Retrieval Algorithm) détermine

les profils verticaux des coefficients d'extinction des particules (Young et Vaughan 2009). Cette étape nécessite des hypothèses sur la valeur du rapport lidar qui est le rapport entre l'extinction et la rétrodiffusion des particules et qui dépend du type d'aérosol. L'épaisseur optique aérosol est finalement déduite par l'intégration du coefficient d'extinction sur la verticale et à partir de la connaissance des altitudes de la base et du sommet des couches d'aérosols et de nuages.

Deux autres méthodes alternatives ont été développées pour inverser les propriétés des aérosols au-dessus des nuages (épaisseur optique et exposant en longueur d'onde d'Angström) à partir des mesures réalisées par CALIOP (Deaconu et al. 2017). La méthode de dépolarisation utilise les mesures du rapport de dépolarisation pour prédire le signal rétrodiffusé par le nuage (Hu et al. 2009). Cette quantité est ensuite comparée à celle mesurée et atténuée par la couche d'aérosols ce qui permet de déterminer la transmission de la couche d'aérosols et son épaisseur optique de façon directe. La méthode du rapport de couleur se base, quant à elle, sur le rapport des coefficients de rétrodiffusion atténués mesurés entre 1 064 et 532 nm et permet de s'affranchir de la contribution du nuage (Chand et al. 2008). Ces deux méthodes alternatives ne nécessitent pas de contraindre les modèles d'aérosols. Bien que ces deux méthodes soient plus précises que la méthode opérationnelle, elles présentent également quelques limites. La méthode de dépolarisation repose sur la prescription d'hypothèses sur la microphysique des nuages (taille et nombre de gouttelettes d'eau liquide) et la méthode du rapport de couleur est peu sensible aux aérosols non absorbants.

En résumé, les propriétés optiques des aérosols restituées à 532 et 1 064 nm sont :

- l'épaisseur optique aérosol en atmosphère claire et au-dessus des nuages ;
- l'exposant d'Angström au-dessus des nuages ;
- les profils verticaux des coefficients de rétrodiffusion et d'extinction des aérosols.

Les altitudes des bases et sommets des nuages et aérosols sont également restituées.

Dans cette thèse, nous utiliserons le profil vertical du coefficient d'extinction des aérosols à 532 nm pour comparer avec celui simulé par WRF-Chem à 550 nm. Nous

nous servirons également des altitudes des couches d'aérosols et de nuages fournies par CALIOP pour évaluer leurs répartitions verticales simulées par WRF-Chem.

### 3.1.5 Sensibilité des aérosols absorbants dans l'ultraviolet par OMI/OMAERUV

Les aérosols qui absorbent le rayonnement ultraviolet peuvent être détectés et caractérisés à partir des mesures de réflectances et de l'indice aérosol dans l'ultraviolet (UV-AI) (Torres et al. 1998, 2007). En effet, la spécificité unique de l'ultraviolet est la domination de la diffusion Rayleigh sur le signal mesuré ce qui facilite la détection des aérosols absorbants (absorption d'un nombre plus important de photons qu'aux plus grandes longueurs d'onde) et permet d'atténuer la contribution des surfaces brillantes. Le paramètre UV-AI est employé pour la détection des aérosols absorbants dans l'ultraviolet au-dessus de tous types de surfaces (sombres ou brillantes) et de tous types de scènes (atmosphères claires ou nuageuses) dû à leur faible albédo de surface dans l'ultraviolet. Le paramètre UV-AI est une quantité qui s'appuie sur la différence de luminances mesurées à deux longueurs d'onde de l'ultraviolet (Dave et Mateer 1967). Néanmoins son interprétation n'est pas toujours évidente en raison de la dépendance des luminances mesurées à l'altitude de la couche d'aérosols absorbants (Torres et al. 1998 ; Graaf et al. 2005). La distinction entre les aérosols carbonés et les poussières désertiques est également délicate avec ce paramètre, ces deux espèces d'aérosols absorbant fortement dans l'ultraviolet.

En ciel clair, l'algorithme d'inversion OMAERUV (OMI near-UV AErosol Retrieval) (Torres et al. 2007 ; Ahn et al. 2008 ; Torres et al. 2013) restitue l'épaisseur optique d'extinction (AOD), d'absorption (AAOD) et l'albédo de simple diffusion (SSA) des aérosols à 354, 388 et 500 nm. OMI/OMAERUV repose sur la prescription de 21 modèles d'aérosols. Trois types d'aérosols sont supposés représenter la colonne atmosphérique : les aérosols carbonés (feux de biomasse), les poussières désertiques ou les sulfates (pollution urbaine). Chacun de ces trois types d'aérosols est décrit par sept niveaux d'absorption (Jethva et Torres 2011 ; Torres et al. 2013). La microphysique des aérosols est basée sur l'analyse de plusieurs années de données AERONET (Dubovik et al. 2002). Chacun de ces 21 modèles suit une distribution en

taille de type bimodale (un mode fin et un mode grossier) (Torres et al. 2007, 2013). Le tableau 3.3 regroupe les propriétés optiques (indice de réfraction) et microphysiques (distribution en taille) des 21 modèles d'aérosols prescrits dans OMI/OMAERUV.

| Modèle<br>d'aérosol    | $r_{fin}$ | $r_{grossier}$ | $\sigma_{fin}$ | $\sigma_{grossier}$ | $m_r$ | $m_i(\lambda)$ |         |
|------------------------|-----------|----------------|----------------|---------------------|-------|----------------|---------|
|                        |           |                |                |                     |       | 354 nm         | 388 nm  |
| Aérosols carbonés      |           |                |                |                     |       |                |         |
| 1                      | 0.080     | 0.705          | 1.492          | 2.075               | 1.50  | 0.05760        | 0.04800 |
| 2                      |           |                |                |                     |       | 0.04800        | 0.04000 |
| 3                      |           |                |                |                     |       | 0.03600        | 0.03000 |
| 4                      |           |                |                |                     |       | 0.02400        | 0.02000 |
| 5                      | 0.087     | 0.567          | 1.537          | 2.203               | 1.50  | 0.01200        | 0.01000 |
| 6                      |           |                |                |                     |       | 0.00600        | 0.00500 |
| 7                      |           |                |                |                     |       | 0.00000        | 0.00000 |
| Poussières désertiques |           |                |                |                     |       |                |         |
| 1                      | 0.052     | 0.670          | 1.697          | 1.806               | 1.55  | 0.02303        | 0.01662 |
| 2                      |           |                |                |                     |       | 0.01279        | 0.00923 |
| 3                      |           |                |                |                     |       | 0.00832        | 0.00600 |
| 4                      |           |                |                |                     |       | 0.00561        | 0.00405 |
| 5                      |           |                |                |                     |       | 0.00256        | 0.00185 |
| 6                      |           |                |                |                     |       | 0.00128        | 0.00092 |
| 7                      |           |                |                |                     |       | 0.00000        | 0.00000 |
| Sulfates               |           |                |                |                     |       |                |         |
| 1                      | 0.088     | 0.509          | 1.499          | 2.160               | 1.40  | 0.03600        | 0.03000 |
| 2                      |           |                |                |                     |       | 0.03000        | 0.02500 |
| 3                      |           |                |                |                     |       | 0.02400        | 0.02000 |
| 4                      |           |                |                |                     |       | 0.01800        | 0.01500 |
| 5                      |           |                |                |                     |       | 0.01200        | 0.01000 |
| 6                      |           |                |                |                     |       | 0.00600        | 0.00500 |
| 7                      |           |                |                |                     |       | 0.00000        | 0.00000 |

Tableau 3.3 : Caractéristiques optiques et microphysiques des 21 modèles d'aérosols prescrits dans OMI/OMAERUV selon une distribution en taille de type bimodale.  $r_{fin}$ ,  $r_{grossier}$ ,  $\sigma_{fin}$ ,  $\sigma_{grossier}$ ,  $m_r$  et  $m_i(\lambda)$  désignent respectivement le rayon effectif du mode fin, le rayon effectif du mode grossier, l'écart-type géométrique du mode fin, l'écart-type géométrique du mode grossier, la partie réelle et la partie imaginaire spectrale (354 et 388 nm) de l'indice de réfraction des aérosols. Sources : Torres et al. (2007), Ahn et al. (2008), Torres et al. (2013).

On retiendra que cette méthode n'inverse pas la distribution en taille des particules mais que celle-ci est prescrite par le choix de l'un des trois grands types d'aérosols. Ce choix est réalisé en fonction de la position géographique et de la saison ce qui constitue une limitation. De plus, l'altitude des couches d'aérosols absorbants est également prescrite à l'aide d'une climatologie basée sur les données CALIOP (Torres et al. 2013). L'inversion des paramètres aérosols (AOD, AAOD et SSA) est ensuite réalisée à partir de ces hypothèses.

Au-dessus des nuages, une méthode opérationnelle permet l'inversion simultanée de l'épaisseur optique des aérosols (ACAOD) et des nuages sous-jacents (COD) à partir des mesures de réflectances et de l'estimation du paramètre UV-AI à 388 nm. Cette méthode nécessite des hypothèses sur l'ensemble des propriétés des aérosols et l'incertitude sur l'ACAOD évaluée avec cette méthode est estimée à environ 54 % (Torres et al. 2012 ; Jethva et al. 2014).

Dans cette thèse, nous utiliserons les valeurs spectrales de l'épaisseur optique d'extinction et de l'albédo de simple diffusion des aérosols restituées par OMI à 354, 388 et 500 nm pour la comparaison avec celles simulées par WRF-Chem en ciel clair dans l'ultraviolet-visible. L'analyse de la dépendance spectrale du SSA servira, en outre, à l'étude de la sensibilité de l'absorption du carbone brun dont sa spécificité est d'absorber significativement le rayonnement ultraviolet-bleu.

### 3.2 WRF-Chem : modèle régional de météorologie couplée à la chimie

Les modèles couplés météorologie-chimie permettent d'estimer le forçage climatique exercé par les aérosols atmosphériques à l'échelle globale ou régionale (Ghan et Schwartz 2007 ; Kahn et al. 2009 ; Yu et al. 2009).

Les modèles globaux simulent les processus météorologiques et ceux contrôlant les distributions spatiales et temporelles des aérosols à l'échelle globale (émissions, transport, transformations physico-chimiques, élimination). Leur résolution spatiale horizontale est généralement large avec une grille de l'ordre de 100 x 100 km<sup>2</sup>. Leur étendue temporelle varie de l'année à plusieurs décennies.

Les modèles régionaux, quant à eux, simulent les processus atmosphériques et le cycle des aérosols à des échelles spatiales (maille de 1 à 50 km) et temporelles beaucoup plus fines. En raison de leur couverture spatiale bornée, les valeurs à la limite du domaine doivent être explicitement spécifiées : ce sont les conditions aux limites. Elles proviennent des résultats des modèles globaux ou des réanalyses. Ces modèles de méso-échelle sont bien adaptés pour étudier l'impact climatique de

panaches d'aérosols de feux de biomasse transportés au-dessus de la région de l'Atlantique Sud-Est.

### 3.2.1 Présentation générale

WRF-Chem (Weather Research and Forecasting model coupled with Chemistry) est l'un de ces modèles régionaux dont la spécificité est de coupler la chimie atmosphérique avec la météorologie (Grell et al. 2005 ; Fast et al. 2006). Les forçages radiatifs exercés par les aérosols aboutissent à des liens entre la qualité de l'air et le climat qui sont nombreux, complexes et surtout interactifs. La pollution particulaire influence le changement climatique car les aérosols agissent sur les propriétés de transfert radiatif de l'atmosphère. Également, le changement climatique peut modifier les mécanismes de formation, de transport, de vieillissement et de lessivage des particules atmosphériques. Le modèle WRF-Chem permet de rendre compte de cette complexité. C'est un modèle de chimie-transport couplé à un modèle météorologique de méso-échelle conçu pour la recherche atmosphérique et les applications de prévisions opérationnelles (Skamarock et al. 2005, 2008). WRF-Chem est utilisé dans de nombreux types de recherches sur la qualité de l'air et le climat et propose un large éventail d'options pour la modélisation de la chimie gazeuse et particulaire (Grell et al. 2004 ; Grell et Baklanov 2011 ; Baklanov et al. 2014). Le tableau 3.4 répertorie les principales applications de WRF-Chem (Powers et al. 2017).

| <b>Processus physico-chimiques simulés par WRF-Chem</b>                                                                                                               | <b>Applications</b>                                                                                                                                                                                                        |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Advection et mélange vertical des espèces chimiques dans la couche limite et schémas de convection de cumulus profonds et peu profonds                                | Simulation de la dispersion 3D de traceurs passifs, de polluants atmosphériques et de matières dangereuses                                                                                                                 |
| Modélisation des flux et du transport des gaz à effet de serre (CO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> )                                                                   | Vérification des émissions et des processus liés au climat                                                                                                                                                                 |
| Simulation en ligne des composés organiques volatils biogéniques                                                                                                      | Prévision de la qualité de l'air, recherche en chimie atmosphérique                                                                                                                                                        |
| Schémas de photolyse interagissant avec les nuages et les aérosols                                                                                                    | Prévision de la qualité de l'air, recherche en chimie atmosphérique                                                                                                                                                        |
| Dépôt sec et sédimentation<br>Dépôt humide par précipitations non résolues (échelle inférieure à celle de la maille) et résolues (échelle égale à celle de la maille) | Qualité de l'air, étude d'écosystèmes                                                                                                                                                                                      |
| Plusieurs schémas d'émission des poussières                                                                                                                           | Prévision des poussières et leurs rétroactions sur la météorologie                                                                                                                                                         |
| Feux de forêts, calculs en ligne de l'élévation du panache                                                                                                            | Qualité de l'air, visibilité, impacts météorologiques                                                                                                                                                                      |
| Plusieurs mécanismes de la chimie des gaz avec des niveaux variables de complexité                                                                                    | Prévision de la qualité de l'air, recherche en chimie atmosphérique, formation des aérosols secondaires, chimie hétérogène, étude de l'impact sur la santé                                                                 |
| Paramétrisations des aérosols avec des approches en masses, modales et sectionnelles (niveaux variables de complexité), aérosols primaires et secondaires             | Recherche et prévision de la qualité de l'air, exposition aux particules, étude des processus climatiques, interactions entre la chimie, le climat et la météorologie, recherche sur la formation des aérosols secondaires |
| Rétroactions directes et indirectes des aérosols                                                                                                                      | Interactions entre la chimie et la météorologie, étude des processus climatiques                                                                                                                                           |

Tableau 3.4 : Principales capacités de traitement et applications de WRF-Chem. Les paramétrisations et les schémas pour les différents processus physico-chimiques sont détaillés dans le guide d'utilisation de WRF-Chem version 3.9.1.1<sup>6</sup> et dans la liste des publications associées<sup>7</sup>. Source : Powers et al. (2017).

La figure 3.4 présente l'organigramme du modèle WRF-Chem version 3.9.1.1 et son principe général de fonctionnement utilisé dans notre étude (Park et al. 2015).

<sup>6</sup> [https://ruc.noaa.gov/wrf/wrf-chem/Users\\_guide.pdf](https://ruc.noaa.gov/wrf/wrf-chem/Users_guide.pdf)

<sup>7</sup> <https://ruc.noaa.gov/wrf/wrf-chem/References/WRF-Chem.references.htm>



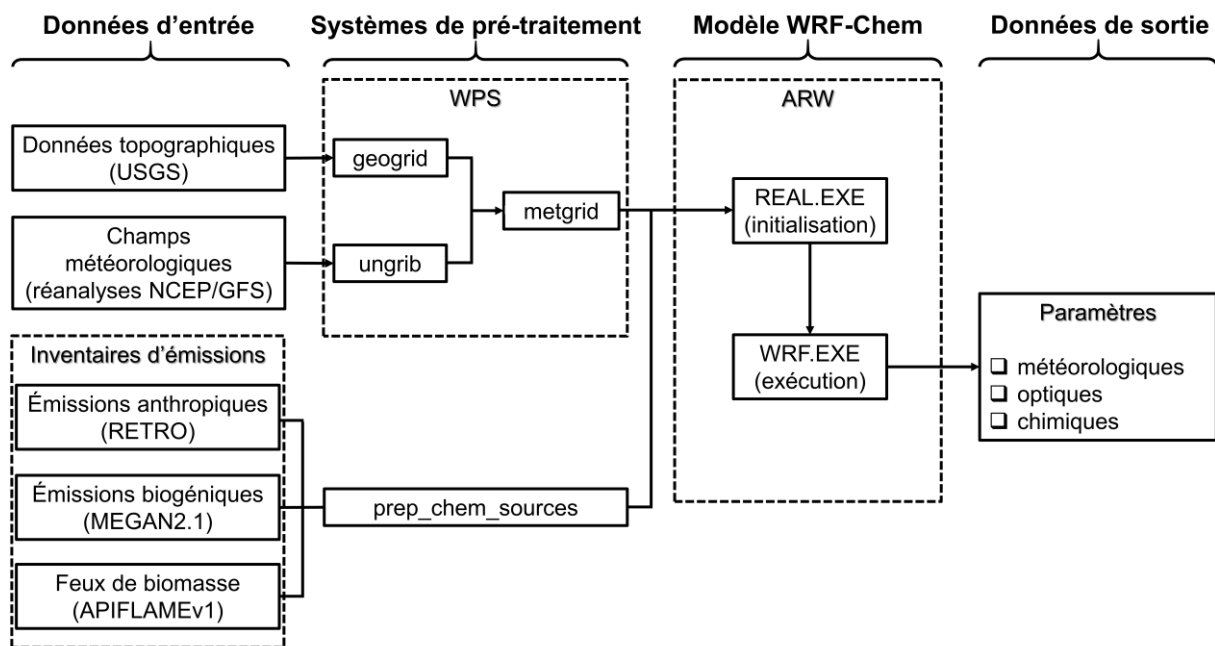


Figure 3.4 : Organigramme du modèle régional de chimie-transport des aérosols WRF-Chem version 3.9.1.1. Adapté de Park et al. (2015).

Cet organigramme est constitué :

- des données d'entrée nécessaires au fonctionnement du modèle WRF-Chem :
  - données topographiques : type de sol, de terrain et de végétation, altitude du relief, albédo de surface, ... ;
  - champs météorologiques issus de réanalyses ou de simulations de modèles globaux : température, pression atmosphérique, vitesse et direction du vent, humidité relative, précipitations, ... ;
  - inventaires d'émissions anthropiques (soufre, carbone suie, ...), biogéniques (isoprène, ...) et de feux de biomasse (carbone suie, carbone organique primaire, ...) ;
- d'un ensemble de pré-traitements dont le programme WPS (WRF Preprocessing System) qui formate les données d'entrée terrestres et météorologiques dans un format lisible par le modèle puis les interpole sur la grille horizontale du domaine géographique simulé ;

- du solveur dynamique ARW qui constitue le cœur du modèle et qui simule l'évolution de la chimie atmosphérique et ses interactions avec la météorologie à partir des données initialisées et des conditions aux limites ;
- des données de sortie de types météorologiques, optiques et chimiques exportées dans un fichier au format netCDF.

### 3.2.2 Initialisation de la météorologie

Le système de pré-traitement WPS est constitué de trois programmes (geogrid, ungrib, metgrid) qui préparent les données topographiques et les champs météorologiques pour l'initialisation du modèle en surface.

La première étape de l'initialisation est effectuée par le programme « geogrid ». Son rôle est de définir les caractéristiques topographiques du domaine de simulation : type de projection cartographique (cylindrique conforme de Mercator, conique conforme de Lambert ou polaire stéréographique), nombre de domaines et sous-domaines géographiques, localisation, taille de la maille horizontale. Ensuite, les données terrestres sont interpolées sur la grille préalablement spécifiée par l'utilisateur. Ces données de surface sont distribuées par USGS (United States Geological Survey), disponibles à quatre résolutions spatiales (30 secondes d'arc, 2, 5 ou 10 minutes d'arc) et sont invariantes temporellement (Anderson, 1976). L'occupation des sols est divisée en 24 catégories (zones urbaines, zones agricoles, zones forestières, ...) et les types de sol en 16 classes (terre, sable, roche, argile, herbe, eau, glace, ...).

La deuxième étape de l'initialisation est réalisée par le programme « ungrib ». Sa tâche consiste à extraire les données météorologiques provenant, dans notre étude, des réanalyses globales NCEP (National Center for Environmental Prediction). Ces réanalyses sont fournies par le système météorologique américain GFS (Global Forecast System) à 1° de résolution spatiale horizontale toutes les six heures (Kalnay et al. 1996).

La dernière étape de l'initialisation est accomplie par le programme « metgrid ». Sa fonction est d'interpoler les données météorologiques extraites par le programme «

ungrib » sur la maille horizontale du domaine géographique précédemment construit par le programme « geogrid ».

L'initialisation en surface étant terminée, la prochaine phase est l'initialisation des champs météorologiques sur la verticale, effectuée par le programme « real ». Dans WRF-Chem, l'atmosphère est découpée verticalement en  $n$  couches d'épaisseur  $dz$  dont les interfaces sont définies par les pressions et forment les niveaux verticaux (Skamarock et al. 2008). Les niveaux verticaux suivent le relief dans les basses couches atmosphériques et permettent une description détaillée de la couche limite planétaire.

### 3.2.3 Initialisation de la chimie

En plus des paramètres météorologiques, l'initialisation des espèces gazeuses et particulaires est nécessaire pour simuler leur cycle de vie. Les inventaires d'émissions rendent compte des quantités de polluants émis par les sources anthropiques (transport, industries), biogéniques (végétations) et par les feux de biomasse (brûlis de végétations), sur une zone géographique et un temps donnés. C'est à l'utilisateur d'intégrer dans WRF-Chem l'inventaire d'émissions qu'il souhaite employer pour son étude selon ses besoins (incertitudes sur les émissions, niveau de détails des espèces chimiques émises, faible ou haute résolution spatio-temporelle, ...), parmi la diversité des inventaires mis à disposition dans la littérature<sup>8</sup>. À noter que les émissions de particules désertiques et marines sont calculées directement par WRF-Chem à partir de paramètres météorologiques et de surfaces.

Dans le modèle, le programme nommé « prep\_chem\_sources » interpole sur la grille du modèle les données issues des inventaires d'émissions et les adapte aux mécanismes chimiques utilisés (Freitas et al. 2011).

#### Émissions anthropiques

Pour les émissions anthropiques, nous avons choisi l'inventaire global RETRO (REanalysis of the TROpospheric chemical composition) (Schultz et al. 2007). Il

---

<sup>8</sup> <https://eccad3.sedoo.fr/>

calcule les émissions mensuelles, à une résolution spatiale horizontale de  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ , des gaz à effet de serre ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ , ...), des gaz précurseurs ( $\text{NO}_x$ ,  $\text{SO}_2$ , COV, ...) et des aérosols (BC, OC,  $\text{SO}_4^{2-}$ , ...) sur la période 1960 à 2000 produites par les activités humaines. Les incertitudes sur les quantités émises par cet inventaire sont environ d'un facteur de 2.

### Émissions biogéniques

Les émissions biogéniques sont calculées par WRF-Chem à partir des données de surface, de végétation et des conditions météorologiques à l'aide du modèle d'émissions des gaz et des aérosols par la nature, version 2.1 (MEGAN2.1, Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). MEGAN2.1 estime les émissions des composés biogéniques provenant d'écosystèmes urbains, ruraux et agricoles en prenant en compte près de 150 espèces gazeuses et particulaires telles que l'isoprène et le monoterpène (Guenther et al. 2012). Les incertitudes associées à ce type d'émission sont d'un facteur 2 à 3 et proviennent d'incertitudes sur les facteurs d'émissions, les données terrestres et les champs météorologiques utilisés en données d'entrée.

### Émissions de feux de biomasse

Pour les feux de biomasse, l'inventaire APIFLAMEv1 (Analysis and Prediction of the Impact of Fires on Air quality ModEling, version 1.0) a été utilisé (Turquety et al. 2014). Il calcule les émissions journalières, à une résolution spatiale horizontale de  $1 \times 1 \text{ km}^2$ , de 49 composés chimiques produits par les feux de biomasse tels que le carbone suie (BC), le carbone organique (OC) ou le monoxyde de carbone (CO). La méthodologie repose sur les données de superficies brûlées et de températures de combustion issues de données de télédétection ainsi que sur les facteurs d'émissions spécifiques à la végétation brûlée provenant de la base de données de Akagi et al. (2011). La comparaison des émissions de CO, traceur de feux, de APIFLAMEv1 avec celles de trois autres inventaires d'émissions de feux de biomasse souvent utilisés dans la communauté scientifique (GFEDv3<sup>9</sup>, FINNV1<sup>10</sup>, GFASv1<sup>11</sup>) a montré de bonnes

---

<sup>9</sup> Global Fire Emissions Database, version 3.0 (Giglio et Randerson 2010 ; van der Werf et al. 2010)

<sup>10</sup> Fire INventory from NCAR, version 1.0 (Wiedinmyer et al. 2011)

<sup>11</sup> Global Fire Assimilation System, version 1.0 (Kaiser et al. 2012)

corrélations spatio-temporelles, de l'ordre de 0.9. Ces trois inventaires globaux s'appuient également sur les observations MODIS pour la détection des feux. Néanmoins, l'étude de validation de APIFLAMEv1 par Turquety et al. (2014) a montré des incertitudes d'un facteur de 2 à 3 sur les quantités émises d'espèces carbonées, liées notamment à la grande variabilité des facteurs d'émissions par type de végétation. Cependant, ces incertitudes sont du même ordre de grandeur que celles associées à d'autres inventaires d'émissions de feux de biomasse comme FINNV1 (Wiedinmyer et al. 2011).

### 3.2.4 Mécanismes physico-chimiques des aérosols et des gaz traces

Plusieurs schémas chimiques sont disponibles dans le modèle WRF-Chem en fonction du type d'application voulu. Pour notre étude, nous avons choisi le schéma MOZCART (Pfister et al. 2011) qui est bien adapté pour la chimie des feux de biomasse (Emmons et al. 2015 ; Lassman et al. 2017). Il couple la chimie en phase gazeuse MOZART (Model for OZone And Related chemical Tracers) (Emmons et al. 2010) avec le schéma des aérosols (de type « bulk ») GOCART (Global Ozone Chemistry Aerosol Radiation and Transport) (Chin et al. 2000a ; Chin et al. 2000b ; Ginoux et al. 2001 ; Chin et al. 2002).

De manière générale, MOZCART simule le cycle de vie des principaux types d'aérosols ainsi qu'un grand nombre d'espèces gazeuses. À partir des différentes émissions, il calcule leur transport et vieillissement chimique (Helfand et Labraga 1988 ; Allen et al. 1996 ; Lin et Rood 1996) et leurs dépôts secs (Fuchs et al. 1965 ; Wesely 1989) et humides (Giorgi et Chameides 1986 ; Balkanski et al. 1993). Plus spécifiquement, la partie gazeuse comprend 85 espèces évoluant selon 196 réactions chimiques incluant 39 photolyses (décomposition chimique d'une espèce sous l'influence de la lumière) (Emmons et al. 2010). Les espèces particulières prises en compte sont les suivantes (Chin et al. 2000a ; Chin et al. 2000b ; Ginoux et al. 2001 ; Chin et al. 2002) :

### Carbone suie (BC), carbone organique (OC) et carbone brun (BrOC)

Le carbone suie est émis directement dans l'atmosphère à partir des émissions anthropiques et de feux de biomasse. Le carbone organique peut avoir une origine primaire et secondaire via l'oxydation de gaz précurseurs tels que les composés organiques volatils (COV). Dans MOZCART, 80 % des BC (BC1) et 50% des OC (OC1) fraîchement émis sont supposés hydrophobes, les 20 % (BC2) et les 50 % (OC2) restants étant considérés hydrophiles (Cooke et al. 1999). En moyenne, les aérosols carbonés hydrophobes deviennent hydrophiles au bout de 2.5 jours traduisant les processus de vieillissement. Le carbone suie vieilli (BC2) sert de noyau de condensation pour les gaz précurseurs. Par exemple, une partie des COV peuvent condenser sur ces noyaux BC2 créant ainsi de l'aérosol organique secondaire hydrophile (inclus dans les OC2). Les aérosols carbonés hydrophobes sont seulement soumis aux dépôts secs tandis que les aérosols hydrophiles sont soumis à la fois aux dépôts secs et humides.

Le carbone brun est majoritairement émis par la combustion des biomasses et des biocarburants (Kirchstetter et al. 2004 ; Pósfai et al. 2004 ; Adachi et Buseck 2011 ; Saleh et al. 2014). En plus des émissions primaires, du carbone brun secondaire peut être produit lors de réactions chimiques en phase aqueuse dans les nuages et par photo-oxydation des composés organiques volatils (Limbeck et al. 2003 ; Ervens et al. 2011 ; Nakayama et al. 2013 ; Zhong et Jang 2014 ; Zhao et al. 2015). Le carbone brun peut subir un vieillissement photochimique lorsqu'il est oxydé par des radicaux hydroxyles (OH) et exposé au rayonnement solaire incident. Sa durée de vie atmosphérique serait de l'ordre de la journée au plus (Zhong et Jang 2011 ; Lee et al. 2014 ; Forrister et al. 2015 ; Zhao et al. 2015 ; Wang et al. 2016). Dans notre étude, les propriétés physico-chimiques du carbone brun sont identiques à celles du carbone organique. Seules ses propriétés optiques vont différer.

### Poussières (DUST)

Les émissions de poussières proviennent majoritairement des zones arides et semi-arides. Dans notre étude, les principales sources pouvant influencer notre région d'étude sont situées en Afrique du Nord (Sahara, Sahel) ou en Afrique australe (Ginoux

et al. 2001). Trois schémas d'émissions de poussières désertiques sont disponibles dans WRF-Chem (Flaounas et al. 2016 ; LeGrand et al. 2019) :

1) Le premier schéma d'émission est celui développé par Gillette et Passi (1988) et est activé par défaut dans le module GOCART (Ginoux et al. 2001). L'émission de poussières à la surface est proportionnelle à la vitesse du vent à la puissance quatre à partir d'une valeur seuil définie par les relations modifiées de Bagnold (1941) et Belly (1964).

2) Le second schéma d'émission s'appuie sur la paramétrisation de Marticorena et Bergametti (1995) et correspond au module GOCART AFWA dans WRF-Chem (Jones et al. 2010, 2012). Ce schéma, plus complexe, intègre plus de mécanismes physiques que le premier. Ici, les poussières désertiques sont créées par saltation, phénomène pour lequel les particules se déplacent par sauts irréguliers sous l'effet du vent de surface et entrent en collision avec d'autres, générant leur transport horizontal et vertical. Ce soulèvement dépend du type de sol et de son humidité ainsi que de la vitesse du vent en surface. Cette proportionnalité, entre flux d'émission horizontal et vertical, est basée empiriquement sur la teneur en argile du sol proposée par Marticorena et Bergametti (1995).

3) Le dernier schéma d'émission est celui développé par Shao (2001, 2004) et Shao et al. (2011) et correspond au module GOCART UoC. Les mécanismes physiques pris en compte dans cette paramétrisation sont le bombardement par saltation et la désintégration des agrégats de poussières. Comme pour le module GOCART AFWA, le flux d'émission vertical est lui aussi proportionnel au flux horizontal de saltation. Ici, cette proportionnalité dépend de la texture du sol et de ses propriétés plastiques.

L'intensité de ces flux d'émission est pondérée par un paramètre, dit zone érodable, défini par Ginoux et al. (2001), compris entre 0 et 1. Sa valeur dépend de la topographie des sols et tient compte des quantités variables de sédiments disponibles en fonction du type de relief (bassin, colline, crête).

Dans nos simulations, nous avons choisi le schéma GOCART AFWA préconisé par Flaounas et al. (2016) pour l'Afrique du Nord dans son étude d'inter-comparaison des trois schémas d'émissions. La distribution en taille des poussières est représentée par cinq classes de taille de rayons effectifs 0.5, 1.4, 2.4, 4.5 et 8.0  $\mu\text{m}$ .

### Sels marins (SEAS)

Les émissions de sels marins sont paramétrisées selon la fonction source de Gong (2003) qui est basée sur la formulation semi-empirique de Monahan et al. (1986). Dans cette paramétrisation, le taux d'émission des sels marins est fonction de la vitesse du vent à la surface et de la taille des particules et rend compte de la collision des gouttes d'eau entre elles et de l'éclatement des bulles d'eau. Quatre gammes de tailles de sels marins, de rayons effectifs 0.3, 1.0, 3.2 et 7.5  $\mu\text{m}$ , sont considérées. Lorsque les sels marins sont soulevés, leur temps de séjour dans l'atmosphère est modéré car ils sont facilement éliminés par les dépôts secs et humides du fait de leurs grandes tailles et de leur croissance rapide avec l'humidité relative ambiante.

### Sulfates ( $\text{SO}_4^{2-}$ )

Les sulfates sont des aérosols inorganiques majoritairement secondaires. Leur principal gaz précurseur est le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ) issu majoritairement des émissions anthropiques et des feux de biomasse. Une faible proportion de  $\text{SO}_2$ , environ 14 %, provient également de l'oxydation du sulfure de diméthyle (DMS) rejeté par l'océan. Les émissions de DMS sont calculées à l'aide d'une formule empirique (Liss et Merlivat 1986) en fonction des concentrations de DMS dans l'eau de mer et de la vitesse du vent à 10 mètres (Kettle et al. 1999).

Les aérosols BC, OC (+BrOC), DUST, SEAS et  $\text{SO}_4^{2-}$  suivent une distribution log-normale d'écarts-types géométriques respectifs de 2.00, 2.20, 2.00, 2.03 et 2.03. Leurs indices de réfraction  $m(\lambda)$  en condition sèche sont reportés dans le tableau 3.5 aux quatre longueurs d'onde de WRF-Chem pour le rayonnement solaire à ondes courtes.



| Indice de réfraction complexe des aérosols $m(\lambda) = m_r(\lambda) - m_i(\lambda)i$ ,<br>en conditions sèches |                             |                             |                             |                             |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|-----------------------------|
| $\lambda$ (nm)                                                                                                   | 300                         | 400                         | 600                         | 1 000                       |
| BC                                                                                                               | 1.95-0.79i                  | 1.95-0.79i                  | 1.95-0.79i                  | 1.95-0.79i                  |
| OC                                                                                                               | 1.45-0.00i                  | 1.45-0.00i                  | 1.45-0.00i                  | 1.45-0.00i                  |
| BrOC*                                                                                                            | 1.85-0.50i                  | 1.85-0.30i                  | 1.85-0.20i                  | 1.60-0.08i                  |
| DUST                                                                                                             | 1.55-0.003i                 | 1.55-0.003i                 | 1.55-0.003i                 | 1.55-0.003i                 |
| SEAS                                                                                                             | $1.51-8.660 \cdot 10^{-7}i$ | $1.50-7.019 \cdot 10^{-8}i$ | $1.50-1.184 \cdot 10^{-8}i$ | $1.47-1.500 \cdot 10^{-4}i$ |
| $SO_4^{2-}$                                                                                                      | $1.52-10^{-9}i$             | $1.52-10^{-9}i$             | $1.52-10^{-9}i$             | $1.52-1.75 \cdot 10^{-6}i$  |

Tableau 3.5 : Indices de réfraction  $m(\lambda)$  simulés par le modèle GOCART en conditions sèches pour les principaux aérosols : carbone suie (BC), carbone organique (OC), poussières désertiques (DUST), sels marins (SEAS), sulfate ( $SO_4^{2-}$ ). \*Les valeurs spectrales de l'indice de réfraction du carbone brun (BrOC) sont calculées aux longueurs d'onde du modèle à partir des valeurs expérimentales de Hoffer et al. (2016, 2017).

Ces aérosols, à l'exception des poussières, sont hygroscopiques et grossissent avec l'augmentation du taux d'humidité relative ambiante. Le tableau 3.6 indique les facteurs d'accroissement hygroscopiques du rayon des particules  $\frac{r_e}{r_{e,sec}}$  pour ces principaux aérosols en fonction de l'humidité relative ambiante RH (D'Almeida et al. 1991 ; Koepke et al. 1997).

| Facteur d'accroissement hygroscopique des aérosols $\frac{r_e}{r_{e,sec}}$ |     |     |     |     |     |     |     |
|----------------------------------------------------------------------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| RH (%)                                                                     | 0   | 50  | 70  | 80  | 90  | 95  | 99  |
| BC                                                                         | 1.0 | 1.0 | 1.0 | 1.2 | 1.4 | 1.5 | 1.9 |
| OC (+BrOC)                                                                 | 1.0 | 1.2 | 1.4 | 1.5 | 1.6 | 1.8 | 2.2 |
| SEAS                                                                       | 1.0 | 1.6 | 1.8 | 2.0 | 2.4 | 2.9 | 4.8 |
| $SO_4^{2-}$                                                                | 1.0 | 1.4 | 1.5 | 1.6 | 1.8 | 1.9 | 2.2 |

Tableau 3.6 : Facteurs de croissance hygroscopiques  $\frac{r_e}{r_{e,sec}}$  en fonction du taux d'humidité relative ambiante RH pour les principaux aérosols simulés par le modèle GOCART, à l'exception des poussières désertiques (DUST) : carbone suie (BC), carbone organique (OC), carbone brun (BrOC), sels marins (SEAS) et sulfates ( $SO_4^{2-}$ ). Source : Chin et al. (2002).

Pour le cas particulier des feux de biomasse, le module MOZCART est connecté à un modèle dynamique de hauteur d'injection dans l'atmosphère (Freitas et al. 2006, 2007 ; Grell et al. 2011). Ce modèle de nuage 1D, dépendant du temps, simule explicitement la montée du panache au niveau de la source en fonction des mécanismes de transport convectif et des conditions météorologiques et thermodynamiques ambiantes calculées par WRF-Chem. Le fort gradient de température entre la source de feux et l'air ambiant provoque un écoulement ascendant important transportant les espèces gazeuses et particulières en altitude. Lors de la montée du panache, l'interaction de la fumée avec l'air environnant crée des tourbillons qui réduisent la vitesse ascensionnelle et diluent le panache. La

hauteur finale atteinte est alors conditionnée par le flux de chaleur à la surface libéré par le feu, la condensation de la chaleur latente et la stabilité thermodynamique de l'environnement atmosphérique. Grâce à l'ensemble de ces processus physiques mis en jeu, les particules et les gaz chauds émis par les feux de biomasse sont transportés directement et rapidement dans la couche limite planétaire, la troposphère libre et même, pour les feux les plus puissants, dans la stratosphère par pyro-convection (Fromm et al. 2000).

### 3.2.5 Calcul des propriétés radiatives des aérosols

Le module optique des aérosols calcule leurs propriétés optiques à partir de leurs propriétés physico-chimiques simulées par MOZCART (Ghan et al. 2001 ; Fast et al. 2006 ; Barnard et al. 2010). Son principe général de fonctionnement est illustré sur la figure 3.5.

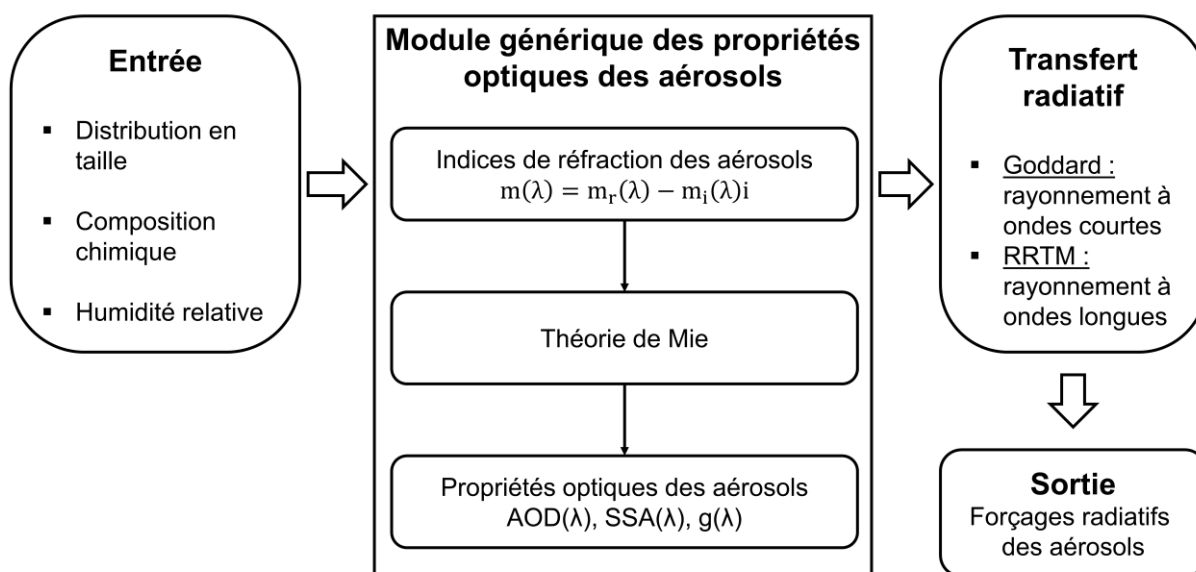


Figure 3.5 : Principe général de fonctionnement du module de calcul des propriétés radiatives des aérosols. Sources : Ghan et al. (2001), Fast et al. (2006) et Barnard et al. (2010).

À partir des informations sur la distribution granulométrique des aérosols discrétisée en huit tailles  $i$ , le module optique calcule l'indice de réfraction moyen spectral pour l'ensemble des aérosols et pour chaque taille  $i$ . L'indice de réfraction moyen peut être calculé selon trois méthodes :

- la règle de mélange en volume qui suppose un mélange homogène interne où toutes les espèces chimiques sont bien mélangées entre elles (Bohren et Huffman 1983 ; Lesins et al. 2002) ;
- la règle de Maxwell-Garnett qui distribue aléatoirement le carbone suie au sein d'une particule correspondant au mélange interne hétérogène (Bohren et Huffman 1983) ;
- la configuration en core-shell qui admet un noyau central composé de carbone suie entouré d'une enveloppe constituée des autres espèces chimiques (Ackerman et Toon 1981 ; Bohren et Huffman 1983).

Nous choisissons l'état de mélange interne homogène pour rester cohérent avec les algorithmes d'inversion satellitaires POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC où les particules sont traitées avec ce type de mélange.

L'indice de réfraction moyen  $\bar{m}_i$  pour un bin de taille  $i$  est alors défini comme la somme des indices de réfraction  $m_j$  des aérosols  $j$  pondérés par leur fraction volumique  $f_{i,j}$  dans le bin  $i$  (Lesins et al. 2002) :

$$\bar{m}_i = \sum_{j=1}^N m_j f_{i,j} \quad (3.3)$$

La fraction volumique  $f_{i,j}$  (sans unité) est le rapport entre le volume  $V_{i,j}$  (unité :  $\text{cm}^3$ ) de chaque composé chimique  $j$  dans le bin  $i$  et le volume total  $V_i$  (unité :  $\text{cm}^3$ ) du bin  $i$ .  $N$  est le nombre total d'espèces chimiques considérées.

Dans notre étude, nous allons ajouter la contribution du carbone brun (BrOC) en rajoutant une fraction absorbante au carbone organique (OC). L'équation 3.3 s'écrit alors :

$$\begin{aligned}
\bar{m} = & m_{NH_4SO_4} * f_{SO_4} \\
& + m_{NH_4NO_3} * f_{NO_3} \\
& + m_{NH_4NO_3} * f_{NH_4} \\
& + m_{OIN} * f_{OIN} \\
& + m_{DUST} * f_{DUST} \\
& + m_{OC} * (1 - \% \text{ de BrOC}) * f_{OC} \\
& + m_{BrOC} * (\% \text{ de BrOC}) * f_{OC} \\
& + m_{BC} * f_{BC} \\
& + m_{NaCl} * f_{Na} \\
& + m_{NaCl} * f_{Cl} \\
& + m_{MSA} * f_{MSA} \\
& + m_{H_2O} * f_{H_2O}
\end{aligned} \tag{3.4}$$

Cette fraction absorbante liée au BrOC est intégrée par l'ajout de l'expression  $m_{BrOC} * (\% \text{ de BrOC}) * f_{OC}$  où  $m_{BrOC}$  et  $f_{OC}$  sont respectivement l'indice de réfraction et la fraction volumique (égale à celle des OC) du carbone brun. Selon notre étude de sensibilité numérique menée avec WRF-Chem, le pourcentage d'absorption du carbone brun variera de 0 % (pas de BrOC, correspondant à l'OC purement diffusant) à 5 % (correspondant à 95 % d'OC purement diffusants et à 5 % de BrOC absorbants).

À partir de l'indice de réfraction de la population d'aérosols estimé avec l'équation 3.3, un code de Mie (Mie 1908) calcule l'épaisseur optique d'extinction (AOD), l'albédo de simple diffusion (SSA) et le facteur d'asymétrie (g) des particules en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ .

Dans un second temps, ces propriétés optiques sont utilisées dans les modèles de transferts radiatifs ultraviolet-visible, Goddard (Chou et Suarez 1994), et infrarouge, RRTM (Rapid Radiative Transfer Model) (Mlawer et al. 1997), pour prendre en compte l'influence des aérosols sur le rayonnement solaire et tellurique et permettre l'estimation de leurs forçages radiatifs.

### 3.2.6 Paramètres météorologiques et propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols et des nuages en sortie de WRF-Chem

Dans notre étude, nous nous sommes intéressés à trois types de paramètres (météorologiques, aérosols et nuages) simulés par WRF-Chem et détaillés dans le tableau 3.7.

| Paramètres météorologiques   |             | Propriétés physico-chimiques et optiques                                     |                                                                                |                                  |          |
|------------------------------|-------------|------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------|----------------------------------|----------|
|                              |             | Aérosols                                                                     |                                                                                | Nuages                           |          |
| Nom                          | Variable    | Nom                                                                          | Variable                                                                       | Nom                              | Variable |
| Température                  | T           | Épaisseur optique aérosol (AOD)                                              | TAUAER1 (300 nm)<br>TAUAER2 (400 nm)<br>TAUAER3 (600 nm)<br>TAUAER4 (1 000 nm) | Contenu en eau liquide (LWC)     | QCLOUD   |
| Pression atmosphérique       | P           | Albédo de simple diffusion (SSA)                                             | WAER1<br>WAER2<br>WAER3<br>WAER4                                               | Épaisseur optique nuageuse (COD) | TAUCLDC  |
| Vitesse et direction du vent | U<br>V<br>W | Facteur d'asymétrie (g)                                                      | GAER1<br>GAER2<br>GAER3<br>GAER4                                               |                                  |          |
| Fraction nuageuse            | CLDFRA      | Coefficient d'extinction des aérosols à 550 nm ( $\sigma_{\text{ext},550}$ ) | EXTCOF550                                                                      |                                  |          |
| Humidité relative            | RH          | Concentration en masse des aérosols (M)                                      | BC<br>OC<br>DUST<br>SEAS<br>PM2_5_DRY<br>PM10                                  |                                  |          |

Tableau 3.7 : Liste des principaux paramètres météorologiques et des principales propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols et des nuages en sortie de WRF-Chem.

Ces données météorologiques, aérosols et nuages, issues directement des simulations numériques de WRF-Chem, sont horaires et discrétisées pour chaque pixel de la maille et pour chaque niveau vertical du modèle dans le cas des variables dépendantes de l'altitude.

Les paramètres optiques des aérosols sont calculés en ligne dans le code de Mie de WRF-Chem, à quatre longueurs d'onde du rayonnement solaire à ondes courtes, de l'ultraviolet au proche infrarouge : 300, 400, 600 et 1 000 nm. Certaines données de télédétection étant représentatives de la colonne atmosphérique, nous avons également intégré ces propriétés optiques sur la verticale, comme détaillé ci-après.

L'épaisseur optique aérosol simulée,  $AOD(\lambda)$ , étant une grandeur extensive, sa valeur intégrée verticalement sur la colonne atmosphérique est la somme des épaisseurs optiques d'extinction de chaque niveau vertical :

$$AOD(\lambda) = \sum_{k=1}^{k=nb\_niveaux} AOD_k(\lambda) \quad (3.5)$$

$AOD_k$  est l'épaisseur optique aérosol de la couche k.  $nb\_niveaux$  est le nombre total de niveaux verticaux.

L'albédo de simple diffusion des aérosols simulé,  $SSA(\lambda)$ , étant une grandeur intensive, sa valeur intégrée sur la colonne atmosphérique est pondérée par l'épaisseur optique de chaque couche k de l'atmosphère :

$$SSA(\lambda) = \sum_{k=1}^{k=nb\_niveaux} SSA_k(\lambda) \left( \frac{AOD_k(\lambda)}{AOD(\lambda)} \right) \quad (3.6)$$

$SSA_k$  et  $AOD_k$  sont respectivement l'albédo de simple diffusion et l'épaisseur optique aérosol de la couche k.  $AOD$  est l'épaisseur optique aérosol intégrée verticalement sur la colonne atmosphérique.

L'exposant en longueur d'onde d'Angström simulé,  $\alpha$ , intégré sur la colonne atmosphérique, est calculé à partir des épaisseurs optiques  $AOD(\lambda_1)$  et  $AOD(\lambda_2)$  estimées à deux longueurs d'onde différentes  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ . Il est également pondéré par l'épaisseur optique  $AOD_k$  de la couche atmosphérique k :

$$\alpha = \sum_{k=1}^{k=nb\_niveaux} \left( \frac{\ln \left( \frac{AOD(\lambda_1)}{AOD(\lambda_2)} \right)}{\ln \left( \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \right)} \right) \left( \frac{AOD_k(\lambda_1)}{AOD(\lambda_1)} \right) \quad (3.7)$$

AOD est l'épaisseur optique aérosol intégrée verticalement sur la colonne atmosphérique.

Ces relations sont également applicables au-dessus des nuages en intégrant ces équations à partir de l'altitude du sommet des nuages (calcul détaillé dans la section 4.2.1.1) au lieu de celle de la surface (terrestre ou océanique).

### 3.2.7 Configuration technique du modèle numérique WRF-Chem pour l'étude

Sur la figure 3.6, le cadre rouge de coordonnées ( $20^{\circ}\text{O}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $39.4^{\circ}\text{S}$ - $10^{\circ}\text{N}$ ) matérialise la région de l'Atlantique Sud-Est que nous étudions et qui correspond au transport à longue distance des panaches d'aérosols de feux de biomasse depuis leurs zones sources jusqu'au large des côtes sud-africaines. Cependant, nous avons simulé une zone étendue (cadre noir de coordonnées ( $34.1^{\circ}\text{O}$ - $45.1^{\circ}\text{E}$ ,  $39.4^{\circ}\text{S}$ - $33^{\circ}\text{N}$ ) sur la figure 3.6) de manière à prendre en compte l'ensemble des émissions désertiques, marines, biogéniques, anthropiques et de feux de biomasse pouvant impacter notre région d'intérêt.

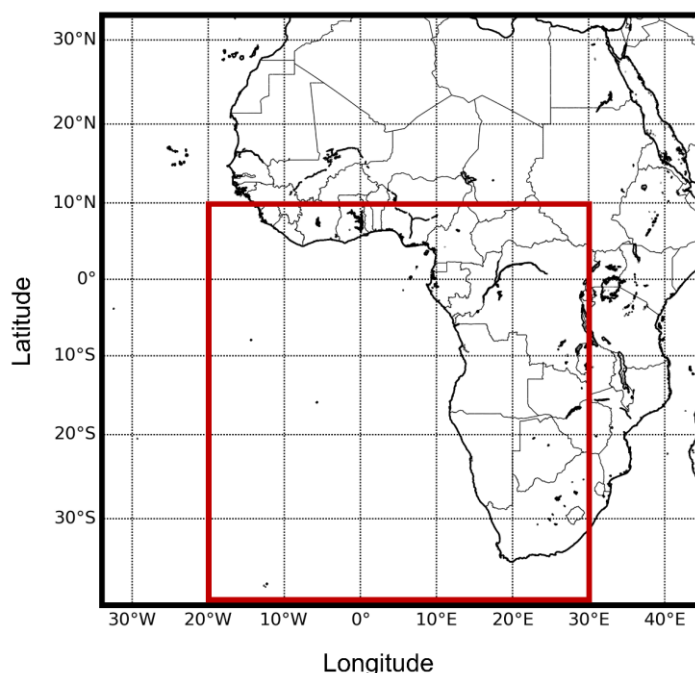


Figure 3.6 : Domaine géographique simulé par WRF-Chem sur une grille horizontale de  $30\text{ km} \times 30\text{ km}$  en projection de Mercator. Le cadre rouge de coordonnées ( $20^{\circ}\text{O}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $39.4^{\circ}\text{S}$ - $10^{\circ}\text{N}$ ) indique la région de l'Atlantique Sud-Est sur laquelle se porte l'étude. Le cadre noir de coordonnées ( $34.1^{\circ}\text{O}$ - $45.1^{\circ}\text{E}$ ,  $39.4^{\circ}\text{S}$ - $33^{\circ}\text{N}$ ) correspond au domaine de simulation entier.

La résolution spatiale horizontale des simulations effectuées avec WRF-Chem sur ce domaine est de  $30 \times 30 \text{ km}^2$ , ce qui représente un bon compromis entre précision des simulations et coût de calcul numérique. La couche atmosphérique est divisée en 50 niveaux verticaux répartis de la surface jusqu'à une altitude de 50 hPa correspondant à environ 20 km d'altitude pour une pression atmosphérique de 1 013 hPa au niveau de la mer.

La période durant laquelle se produisent les feux de végétations dans cette région s'étale de juin à octobre (Roberts et al. 2009). La figure 3.7 montre les variabilités mensuelles de l'ACAOD( $\lambda$ ) (à gauche) et de l'ACSSA( $\lambda$ ) (à droite) au cours de la saison des feux de l'année 2008 restituées par POLDER-3/AERO-AC dans sa résolution native ( $6 \times 6 \text{ km}^2$ ) au-dessus des nuages et moyennées pour la région de l'Atlantique Sud-Est, reportée sur la figure 3.6.

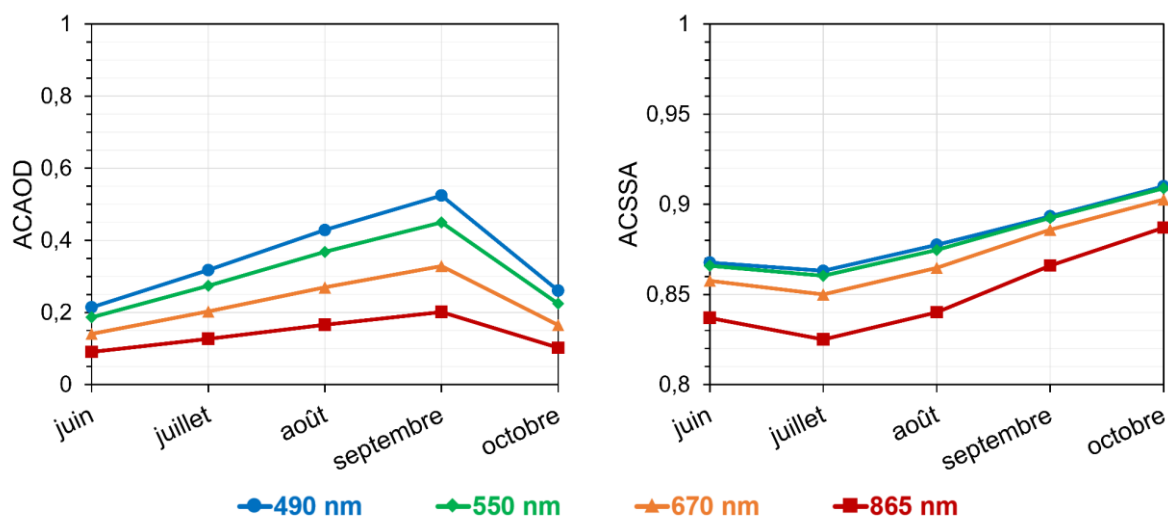


Figure 3.7 : Variabilités mensuelles de l'épaisseur optique aérosol (ACAOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols (ACSSA, à droite) restituées par POLDER-3/AERO-AC à une résolution spatiale de  $6 \times 6 \text{ km}^2$  au-dessus des nuages du bleu au proche infrarouge dans la région de l'Atlantique Sud-Est pendant la saison sèche de l'année 2008.

Les restitutions de POLDER-3/AERO-AC affichées sur la figure 3.7 confirment qu'une quantité significative d'aérosols est transportée au-dessus de la couche de stratocumulus marins présente dans cette région. Par exemple, l'ACAOD à 865 nm (courbe rouge, à gauche) augmente de 0.09 en juin jusqu'à une valeur maximale de 0.20 en septembre puis diminue à 0.10 en octobre. Ce pic d'ACAOD en septembre peut s'expliquer par le fait que la partie basse de l'atmosphère est la plus stable à cette période de l'année (Adebiyi et Zuidema 2016). Ainsi, l'entraînement du panache d'aérosols vers le bas est donc limité contrairement au début de la saison sèche où



les cas de contact avec les nuages sont plus fréquents (Rajapakshe et al. 2017 ; Zuidema et al. 2018). À la fin de la saison sèche, les vents zonaux compris entre trois et cinq kilomètres d'altitude sont plus forts favorisant le transport à très longue distance des aérosols qui se situent plutôt dans la troposphère libre (Richter et Mechoso 2004 ; Zhang et al. 2016 ; Zuidema et al. 2016b). À partir du mois d'octobre, la décroissance de l'ACAOD est due à l'apparition de la saison humide (feux moins nombreux et moins actifs) (Roberts et al. 2009).

Concernant l'absorption des aérosols, la figure 3.7 indique que les valeurs les plus faibles de l'ACSSA, correspondant aux absorptions les plus fortes, sont obtenues pour le mois de juillet 2008. Par exemple, la valeur de l'ACSSA à 865 nm (courbe rouge, à droite) diminue de 0.837 en juin à 0.825 en juillet puis augmente jusqu'à 0.887 en octobre. Ce cycle dans l'absorption des aérosols pourrait être lié à la variabilité saisonnière des émissions de carbone suie et de carbone brun par les feux de végétations (Zuidema et al. 2018 ; Pistone et al. 2019). Ce cycle de l'absorption au cours de la saison sèche de juillet à novembre a aussi été mis en évidence à partir des données du site AERONET de Mongu en Zambie pour la période 1997-2005 en ciel clair (Eck et al. 2013). Cette tendance a également été confirmée par les restitutions de POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages pour l'année 2006 (Peers et al. 2016) et par les résultats récents du projet de recherche ORACLES au niveau de l'île de l'Ascension en 2016 et 2017 (Zuidema et al. 2018).

Dans notre étude, nous nous sommes intéressés principalement au mois de juillet 2008 correspondant à une quantité importante en aérosols absorbants et à des cas de contacts fréquents avec des stratocumulus, favorables à des effets radiatifs direct, semi-directs et indirects.

Dans nos simulations, une période d'initialisation (« spin-up ») correspondant aux quinze derniers jours de juin 2008 a été prise en compte de manière à permettre à WRF-Chem d'atteindre un équilibre physique, en raison des incohérences entre la physique du modèle et celle imposée par les conditions initiales (sol et atmosphère) (Montavez et al. 2017). Les principales options choisies pour les processus physiques et chimiques simulés par cette version de base de WRF-Chem sont indiquées dans le tableau 3.8.

| Paramétrisation                               | Variable namelist  | Option | Module                  | Référence                                                         |
|-----------------------------------------------|--------------------|--------|-------------------------|-------------------------------------------------------------------|
| <i>Physique</i>                               |                    |        |                         |                                                                   |
| Microphysique nuageuse                        | mp_physics         | 2      | Lin (Purdue)            | Lin et al. (1983)                                                 |
| Convection nuageuse                           | cu_physics         | 5      | Grell-3                 | Grell (1993)<br>Grell et Dévényi (2002)                           |
| Schéma de surface                             | sf_surface_physics | 2      | Noah LSM                | Tewari et al. (2004)                                              |
| Couche limite planétaire                      | bl_pbl_physics     | 1      | YSU                     | Hong et al. (2006)                                                |
| Rayonnement aux courtes longueurs d'onde      | ra_sw_physics      | 2      | Goddard                 | Chou et Suarez (1994)                                             |
| Rayonnement aux grandes longueurs d'onde      | ra_lw_physics      | 1      | RRTM                    | Mlawer et al. (1997)                                              |
| <i>Chimie</i>                                 |                    |        |                         |                                                                   |
| Chimie                                        | chem_opt           | 112    | MOZCART + KPP           | Pfister et al. (2011)                                             |
| Schéma des émissions anthropiques             | emiss_opt          | 8      | MOZCART                 | Pfister et al. (2011)                                             |
| Schéma d'émissions des poussières désertiques | dust_opt           | 3      | GOCART AFWA             | Jones et al. (2010, 2012)                                         |
| Schéma des émissions biogéniques              | bio_emiss_opt      | 3      | MEGAN                   | Guenther et al. (2006)                                            |
| Schéma d'émissions des feux de biomasse       | biomass_burn_opt   | 3      | MOZCART                 | Pfister et al. (2011)                                             |
| Aérosols                                      | aer_op_opt         | 1      | Approximation en volume | Ghan et al. (2001)<br>Fast et al. (2006)<br>Barnard et al. (2010) |

Tableau 3.8 : Principales options physico-chimiques choisies pour la configuration de base de WRF-Chem V.3.9.1.1.

Le tableau 3.8 résume les principales paramétrisations physico-chimiques (internes au modèle) sélectionnées pour notre étude, recommandées dans le guide de l'utilisateur

de WRF-Chem version 3.9.1.1<sup>12</sup> pour la simulation détaillée de la chimie atmosphérique.

Le schéma de la microphysique nuageuse, Lin (Lin et al. 1983), est un modèle de nuage unidimensionnel qui prend en compte les effets de la pression non hydrostatique, l'entraînement, la microphysique des nuages, le mélange latéral et vertical des tourbillons. Dans ce schéma, cinq catégories d'hydrométéores sont considérées, chacune étant représentée par une distribution en taille : eau nuageuse, glace nuageuse, eau de pluie, neige et grésil. Le schéma de Lin est un schéma à simple moment, c'est-à-dire que seul le rapport de mélange est calculé pour chaque classe d'hydrométéore.

Le schéma de la convection nuageuse, Grell-3 (Grell, 1993 ; Grell et Dévényi 2002), est un schéma de flux de masse qui prédit le flux de masse optimal à la base du nuage à l'aide d'une approche statistique. Les nuages sont représentés en une dimension et comportent une branche ascendante et une branche descendante. Le mélange avec l'air environnant se produit seulement à la base (entraînement) et au sommet (déentraînement) du nuage. Ce schéma de convection nuageuse s'appuie sur le schéma de la microphysique nuageuse, Lin (Lin et al. 1983), pour simuler la formation et le développement des nuages.

Le schéma de surface, Noah LSM (Noah Land Surface Model, Tewari et al. 2004), prend en compte l'impact de la végétation (16 types de couverts végétaux) sur les échanges (dynamiques et thermiques) entre le sol (divisé en 4 couches d'épaisseurs variables), la surface terrestre (1 couche) et l'atmosphère. Ce schéma de surface permet de calculer la température et l'humidité de la surface. Les schémas de couche de surface utilisent ensuite ces données de surface pour déterminer les flux de chaleur, les flux de quantité de mouvement et les flux de vapeur d'eau qui s'opèrent entre la surface et l'atmosphère.

Le schéma de la couche limite planétaire, YSU (Yonsei University Scheme, Hong et al. 2006) prend en compte les transferts de mouvement et de masse causés par les tourbillons de grande échelle. Le schéma YSU prédit des températures et des humidités réalistes dans les basses couches de l'atmosphère en cours de journée

---

<sup>12</sup> [https://ruc.noaa.gov/wrf/wrf-chem/Users\\_guide.pdf](https://ruc.noaa.gov/wrf/wrf-chem/Users_guide.pdf)

grâce à son fort mélange vertical où le réchauffement et l'assèchement de la couche limite sont favorisés par un fort entraînement au sommet de la couche limite planétaire (Hu et al. 2010).

### 3.3 Post-traitement des simulations numériques de WRF-Chem

#### 3.3.1 Procédé

Pour être comparables, les paramètres aérosols et nuages simulés par WRF-Chem doivent être colocalisés spatialement et temporellement avec les paramètres de télédétection. D'abord, les données POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC initialement à une résolution spatiale horizontale de  $6 \times 6 \text{ km}^2$  sont agrégées sur la maille du modèle ( $30 \times 30 \text{ km}^2$ ). Ensuite, les masques POLDER-3 ciel clair et ciel nuageux sont appliqués aux données simulées par WRF-Chem. Enfin, les variables du modèle sont moyennées entre 13h et 14h pour être cohérent avec l'heure de passage du satellite PARASOL (environ 13h30 au-dessus de la région de l'Atlantique Sud-Est). Ainsi, chaque pixel simulé par WRF-Chem peut être comparé à un pixel agrégé coïncident restitué par le polarimètre POLDER-3 en ciel clair (GRASP) et au-dessus des nuages (AERO-AC).

Les propriétés optiques des aérosols simulées par WRF-Chem (entre 300 et 1 000 nm) vont être recalculées aux longueurs d'onde de la donnée d'observation de la manière suivante :

- à l'aide de l'exposant en longueur d'onde d'Angström pour l'épaisseur optique aérosol selon la relation :

$$AOD(\lambda_{interpol}) = AOD(\lambda_1) \left( \frac{\lambda_{interpol}}{\lambda_1} \right)^{\frac{\ln\left(\frac{AOD(\lambda_2)}{AOD(\lambda_1)}\right)}{\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right)}} \quad (3.8)$$

- linéairement pour l'albédo de simple diffusion selon la relation :

$$SSA(\lambda_{interpol}) = SSA(\lambda_1) + (SSA(\lambda_2) - SSA(\lambda_1)) \left( \frac{\lambda_{interpol} - \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) \quad (3.9)$$

$\lambda_{\text{interpol}}$  est la longueur d'onde à interpoler entre  $\lambda_1 = 400 \text{ nm}$  et  $\lambda_2 = 600 \text{ nm}$  si  $400 \text{ nm} < \lambda_{\text{interpol}} < 600 \text{ nm}$  ou entre  $\lambda_1 = 600 \text{ nm}$  et  $\lambda_2 = 1\,000 \text{ nm}$  si  $600 \text{ nm} < \lambda_{\text{interpol}} < 1\,000 \text{ nm}$ .

### 3.3.2 Estimateurs statistiques utilisés pour l'évaluation des simulations numériques du modèle WRF-Chem

La qualité des simulations numériques de WRF-Chem sera évaluée à l'aide de paramètres statistiques communément utilisés : coefficient de corrélation de Pearson R, biais moyen MB, erreur absolue moyenne MAE et erreur quadratique moyenne RMSE (Thunis et al. 2011 ; Lingard et al. 2013).

Le coefficient de corrélation de Pearson R se calcule de la manière suivante :

$$R = \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M}) (O_i - \bar{O})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (M_i - \bar{M})^2} \sqrt{\sum_{i=1}^N (O_i - \bar{O})^2}} \quad (3.10)$$

$M_i$ ,  $O_i$ ,  $\bar{M}$ ,  $\bar{O}$  et  $N$  sont respectivement la valeur simulée, observée, la moyenne des valeurs simulées et observées ainsi que le nombre total de pixels. R est compris entre -1 et +1, une valeur tendant vers zéro indiquant une absence de corrélation linéaire.

Le biais moyen MB (Mean Bias) est la moyenne de la différence entre une valeur simulée et une valeur observée sur un domaine ou sur une période spécifiée :

$$MB = \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)}{N} \quad (3.11)$$

Si la différence entre la valeur simulée et la valeur observée est non nulle alors la valeur simulée est dite biaisée, de manière positive dans le cas d'une surestimation ou négative dans le cas contraire.

L'erreur absolue moyenne MAE (Mean Absolute Error) se calcule à partir de la valeur absolue de la différence entre une valeur simulée et observée :

$$MAE = \frac{\sum_{i=1}^N |M_i - O_i|}{N} \quad (3.12)$$

Cette quantité est donc toujours positive et tend vers zéro lorsque les valeurs simulées sont proches de celles observées. Ce paramètre statistique est plus contraignant que le biais moyen car il évite d'éventuelles compensations d'erreurs.

L'erreur quadratique moyenne RMSE (Root Mean Square Error) est calculée à partir de la racine carrée de la différence quadratique moyenne entre les valeurs simulées et observées :

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2}{N}} \quad (3.13)$$

Des biais ponctuels mais importants peuvent produire une valeur de RMSE élevée. Cette statistique est donc couramment utilisée comme une mesure de la performance globale d'un modèle.

### 3.3.3 Approche scientifique

La démarche scientifique adoptée pour tenter de répondre à la problématique posée en introduction, c'est-à-dire l'amélioration de la représentation de l'absorption des aérosols de feux de biomasse dans WRF-Chem, se compose de deux grandes étapes.

Dans un premier temps, l'objectif sera d'évaluer le contenu des aérosols simulés par WRF-Chem dans la région de l'Atlantique Sud-Est. Notamment, la localisation et l'intensité des feux de biomasse inventoriés dans APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014) seront examinées à partir de l'épaisseur optique aérosol (AOD) restituée par POLDER-3/GRASP au-dessus du continent africain en ciel clair. Ensuite, l'épaisseur optique aérosol simulée au-dessus des nuages (ACAOD) sera comparée à celle restituée par POLDER-3/AERO-AC pour étudier le transport à longue distance des aérosols au-dessus de la couche de stratocumulus marins de l'océan Atlantique sud-oriental.

Dans un second temps, l'objectif sera d'étudier les propriétés d'absorption de ces aérosols à la fois en atmosphère claire et nuageuse, via leur albédo de simple diffusion (SSA). Cette propriété optique étant sensible à la taille des particules, la distribution en taille simulée par WRF-Chem sera évaluée de manière qualitative via l'exposant d'Angström restitué par POLDER-3. Ensuite la dépendance spectrale du SSA restituée par POLDER-3/GRASP, POLDER-3/AERO-AC et OMI/OMAERUV sera comparée à celle simulée pour différents niveaux d'absorption du carbone suie et du carbone brun afin d'estimer la quantité de carbone brun présente dans le panache d'aérosols de feux de biomasse sud-africain.





## 4 Évaluations des simulations numériques : mise en place de la configuration de référence de WRF-Chem

Ce quatrième chapitre présente la première partie des résultats de cette thèse. Il est consacré à la mise en place puis l'évaluation de la configuration de référence de WRF-Chem, à partir de l'étude de comparaison des propriétés optiques et microphysiques des aérosols simulées par cette version de WRF-Chem, avec les données POLDER-3. La configuration de référence de WRF-Chem sera la simulation numérique qui reproduira le mieux le contenu des aérosols émis et transportés dans la région de l'Atlantique Sud-Est, déduit des mesures du polarimètre POLDER-3, après ajustements de certains paramètres physico-chimiques du modèle décrit au chapitre 3.

### 4.1 Évaluation de l'épaisseur optique aérosol totale (AOD) en ciel clair

#### 4.1.1 Cadastre d'émissions de feux de biomasse africaine

Avant d'évaluer l'épaisseur optique aérosol totale, nous allons examiner les quantités de particules de feux de biomasse émises par la configuration initiale de WRF-Chem, à partir de l'inventaire d'émissions APIFLAMEv1 de Turquety et al. (2014). La configuration initiale de WRF-Chem est la configuration de départ, présentée au chapitre 3, sans aucune modification des schémas physico-chimiques du modèle (voir section 3.2.7). La figure 4.1 présente les concentrations massiques mensuelles (en  $\text{g.m}^{-2}$ ) de carbone suie (BC, à gauche), carbone organique (OC, au milieu) et  $\text{PM}_{10}$  (à droite) émises par les feux de biomasse durant la période juillet à septembre 2008 en Afrique.

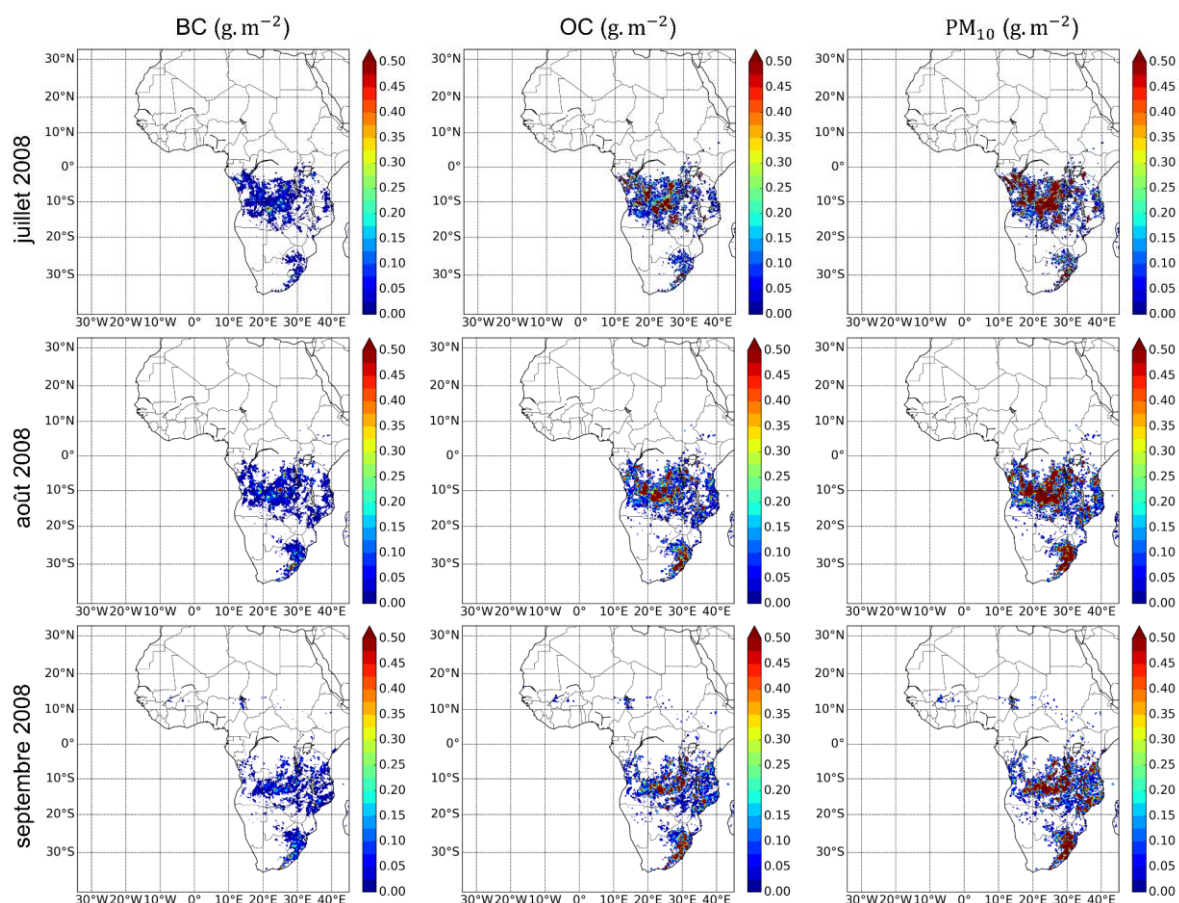


Figure 4.1 : Concentrations massiques mensuelles (en  $\text{g.m}^{-2}$ ) de carbone suie (BC, à gauche), carbone organique (OC, au milieu) et  $\text{PM}_{10}$  (à droite) émises par les feux de biomasse africaine sur la période juillet-septembre 2008, simulées par la configuration de base de WRF-Chem à partir de l'inventaire d'émissions des feux de biomasse APIFLAMEv1 de Turquety et al. (2014).

La figure 4.1 est indicative de la localisation des sources de feux de végétations avec une activité importante essentiellement dans la moitié sud de l'Afrique. Conformément à ce qui est attendu dans cette région, au cours de l'avancée dans la saison sèche qui s'étend de mai à octobre, les sources de feux se déplacent progressivement vers le Sud et l'Est (Cahoon et al. 1992 ; Roberts et al. 2009). Les mois de mai et d'octobre, où l'activité des feux est globalement la plus faible, représentent les périodes de transition entre la saison sèche et la saison humide (Roberts et al. 2009). La figure 4.1 montre que l'inventaire d'émissions de feux de biomasse de Turquety et al. (2014) rend bien compte de la variabilité attendue pour la détection des sources d'aérosols de feux de biomasse.

### 4.1.2 De la configuration de base de WRF-Chem à la configuration de référence

Une fois injectées dans l'atmosphère, ces grandes quantités d'aérosols de feux de biomasse vont pouvoir être transportées sur de longues distances en formant un panache optiquement actif détectable par satellite. La figure 4.2 compare l'épaisseur optique aérosol totale (AOD) à 565 nm en ciel clair restituée par POLDER-3/GRASP (à gauche) avec celle simulée par la configuration de base de WRF-Chem (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

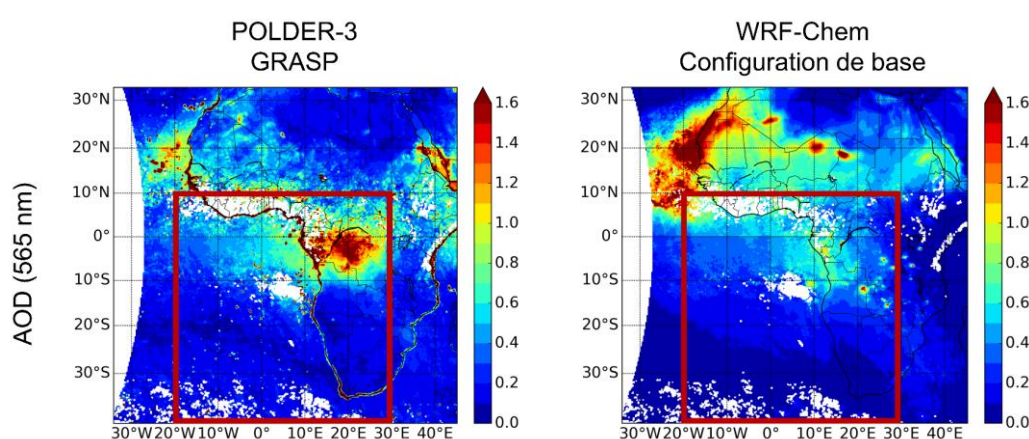


Figure 4.2 : Épaisseur optique aérosol totale (AOD) à 565 nm en ciel clair restituée par POLDER-3/GRASP (à gauche) et simulée par la configuration de base de WRF-Chem (à droite) avec l'inventaire APIFLAMEv1 de Turquety et al. (2014), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (20°O-30°E, 39.9°S-10°N) représente la région de l'Atlantique Sud-Est.

Au niveau des sources d'émissions de feux de biomasse (12°E-30°E, 10°S-0°S), la configuration de base de WRF-Chem ( $AOD_{mod,565} = 0.49$ ) semble sous-estimer de manière importante, d'un facteur 2 en moyenne, l'épaisseur optique aérosol totale restituée par POLDER-3/GRASP ( $AOD_{obs,565} = 1.10$ ). Une des hypothèses pouvant expliquer ce biais pourrait être une sous-estimation de l'activité des feux dans l'inventaire d'émissions de feux de biomasse utilisé. En effet, l'évaluation de l'inventaire APIFLAMEv1 réalisée par Turquety et al. (2014) indique des biais possibles pouvant aller jusqu'à un facteur 2-4 sur l'ensemble des quantités émises d'espèces gazeuses et particulaires par les feux de biomasse. Nous avons donc choisi d'appliquer un facteur multiplicatif à l'ensemble des espèces gazeuses et particulaires émises par les brûlis de végétations. Deux niveaux d'ajustement sont testés : un premier coefficient égal à 1.5 et un second égal à 2.

La figure 4.3 compare l'épaisseur optique aérosol totale (AOD) à 565 nm en ciel clair restituée par POLDER-3/GRASP (à gauche) avec celle simulée par la configuration de base de WRF-Chem avec l'inventaire de Turquety et al. (2014) modifié d'un facteur 1.5 (au milieu) et 2 (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

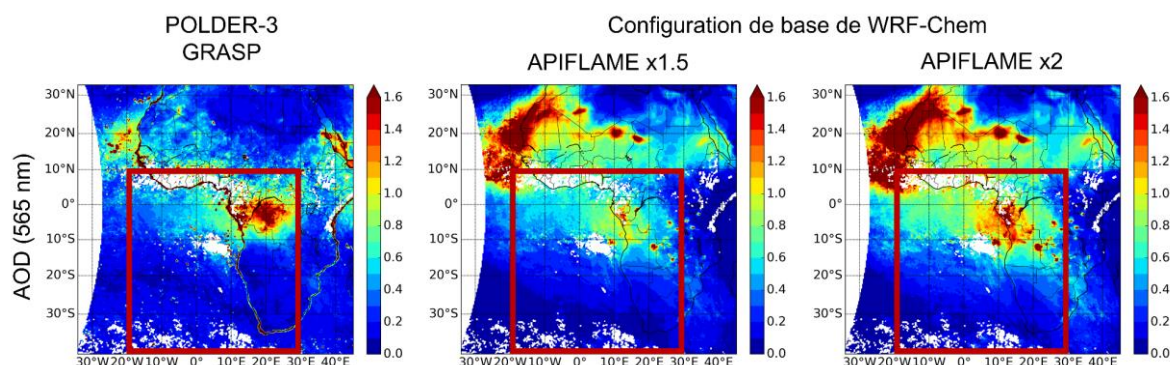


Figure 4.3 : Épaisseur optique aérosol totale (AOD) à 565 nm en ciel clair restituée par POLDER-3/GRASP (à gauche) et simulée par la configuration de base de WRF-Chem avec l'inventaire de Turquety et al. (2014) multiplié respectivement par les facteurs 1.5 (au milieu) et 2 (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (20°O-30°E, 39.9°S-10°N) représente la région de l'Atlantique Sud-Est.

Avec le facteur multiplicatif de 1.5, l'intensité des sources d'émissions de feux de biomasse simulée par la configuration de base de WRF-Chem dans la zone de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S) est mieux reproduite en moyenne ( $AOD_{mod,565} = 0.72$ ) par rapport à l'inventaire initial, même si elle reste encore sous-estimée en comparaison avec celle restituée par POLDER-3/GRASP ( $AOD_{obs,565} = 1.10$ ). Au-dessus de l'océan, l'accord est bon entre le modèle ( $AOD_{mod,565} = 0.62$ ) et les restitutions de POLDER-3/GRASP ( $AOD_{obs,565} = 0.61$ ).

Avec le facteur multiplicatif de 2, l'intensité des sources de feux de biomasse simulée par la configuration de base de WRF-Chem dans la zone de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S) est en bien meilleur accord avec les restitutions de POLDER-3/GRASP avec une sous-estimation modérée, de 0.12 en moyenne. En revanche, au-dessus de l'océan, les valeurs d'AOD sont surestimées par le modèle avec un biais positif de 0.25 en moyenne, pouvant s'expliquer d'une part, par une charge en aérosols émise puis transportée plus importante et/ou par un dépôt des aérosols insuffisant. D'autre part, le biais positif peut également être interprété comme un problème de diffusion numérique d'un panache de feux de biomasse dense provoquant un étalement de la charge entre le continent et l'océan dû à la largeur de la maille du modèle (pour rappel, grille de 30 x 30 km<sup>2</sup>).

Finalement, le facteur d'ajustement des sources d'émissions de feux de biomasse de 1.5 est choisi pour la suite de l'étude car il semble être un bon compromis, même si des biais sont encore présents.

La figure 4.3 montre que dans la moitié nord de l'Afrique, dans la région du Sahara et du Sahel, les valeurs moyennes de l'AOD sont fortement surestimées par la configuration de base de WRF-Chem ( $AOD_{mod,565} \geq 1.5$ ), en comparaison avec les restitutions de POLDER-3/GRASP ( $AOD_{obs,565} \simeq 1.0$ ). Le module d'émissions des poussières désertiques GOCART AFWA (Jones et al. 2010, 2012) basé sur le schéma de Marticorena et Bergametti (1995), utilisé dans WRF-Chem, semble soulever une quantité trop importante de poussières désertiques sur la zone Sahara/Sahel.

Sur ce point spécifique, Flaounas et al. (2016) ont réalisé une évaluation des performances de modélisation des poussières atmosphériques par WRF-Chem (version 3.6) sur les régions arides et semi-arides autour de la Méditerranée, pour la période du 21 février au 31 août 2011. Dans cette étude, Flaounas et al. (2016) ont comparé les trois schémas de soulèvement des poussières désertiques (GOCART, GOCART AFWA et GOCART UoC) disponibles dans WRF-Chem (détaillés dans la section 3.2.4), pour quatre coefficients d'ajustement (0.25, 0.5, 0.75 et 1) appliqués aux flux d'émissions des poussières minérales à la surface. La météorologie étant identique pour les douze tests réalisés, les différences sur les résultats obtenus entre ces trois schémas proviennent du choix de la paramétrisation des flux d'émissions à la surface. L'une des conclusions de leur étude est que la combinaison du module GOCART AFWA associé à un coefficient d'ajustement de 0.5 constitue la solution permettant de reproduire au mieux les valeurs de l'AOD satellitaire MODIS pour l'Afrique du Nord.

Ce facteur d'ajustement de 0.5 des flux d'émissions de poussières minérales a donc également été appliqué au schéma GOCART AFWA dans notre étude. La figure 4.4 présente l'épaisseur optique aérosol restituée par POLDER-3/GRASP à 565 nm en ciel clair (à gauche) et simulée par la configuration de base de WRF-Chem avec le schéma GOCART AFWA initial (au milieu) et avec sa version modifiée (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.



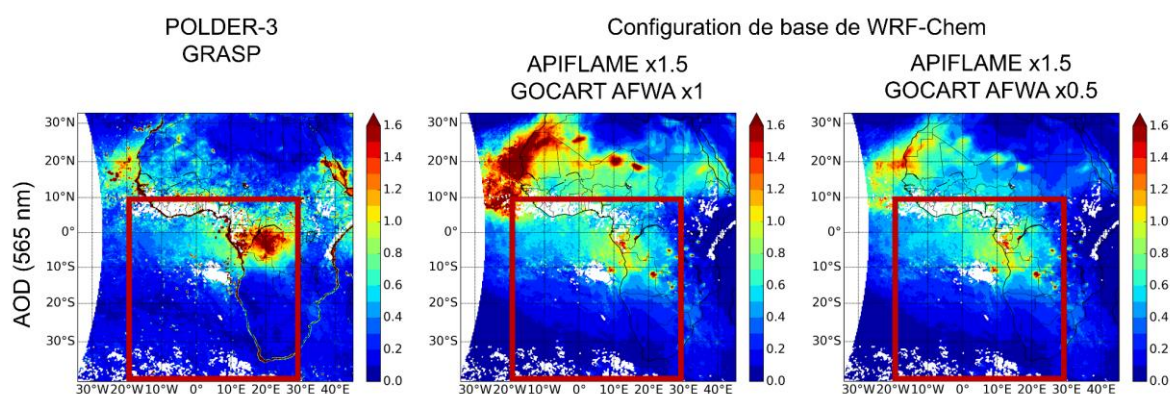


Figure 4.4 : Épaisseur optique aérosol totale (AOD) à 565 nm en ciel clair restituée par POLDER-3/GRASP (à gauche) et simulée par la configuration de base de WRF-Chem avec le schéma d'émissions de poussières désertiques GOCART AFWA initial (au milieu) et le schéma d'émissions de poussières désertiques GOCART AFWA modifié d'un facteur de 0.5 (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (20°O-30°E, 39.9°S-10°N) représente la région de l'Atlantique Sud-Est.

La figure 4.4 confirme bien qu'en utilisant le facteur d'ajustement de 0.5 de Flaounas et al. (2016), les valeurs d'AOD simulées par WRF-Chem dans la moitié nord de l'Afrique sont en bien meilleur accord avec les restitutions de POLDER-3/GRASP.

En conclusion, à partir de la comparaison des valeurs moyennes de l'AOD simulées par la configuration de base de WRF-Chem avec celles restituées par POLDER-3/GRASP, nous avons choisi de corriger l'inventaire d'émissions de feux de biomasse APIFLAMEv1 d'un facteur 1.5, en accord avec les incertitudes fournies par Turquety et al. (2014), et le schéma de soulèvement des poussières minérales GOCART AFWA d'un facteur 0.5, comme préconisé par Flaounas et al. (2016). Cette version corrigée de WRF-Chem constituera la configuration dite de référence pour la suite de notre étude.

## 4.2 Évaluation de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages (ACAOD)

Après avoir examiné l'AOD simulée par WRF-Chem sur toute la colonne atmosphérique, nous allons évaluer l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages (ACAOD). Les facteurs importants qui peuvent influencer ce paramètre sont l'altitude du sommet des nuages, le transport et la hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse.

## 4.2.1 Transport horizontal et vertical du panache d'aérosols de feux de biomasse

### 4.2.1.1 Altitude du sommet des nuages d'eau liquide

Le calcul des propriétés optiques des aérosols au-dessus des nuages nécessite de bien définir en amont l'altitude du sommet des nuages, qui n'est pas un paramètre directement fourni par WRF-Chem.

Afin d'avoir une estimation la plus statistiquement représentative, nous allons nous concentrer sur la zone encadrée en noir de coordonnées ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) sur la figure 4.5. Cette figure présente les altitudes des sommets des nuages,  $Z_{\text{nuage,obs}}$ , restituées par POLDER-3 dans la région de l'Atlantique Sud-Est en moyenne pour le mois de juillet 2008 (à gauche) et le nombre de jours d'observations de nuages,  $N_{\text{obs}}$ , au cours du mois de juillet 2008 (à droite).

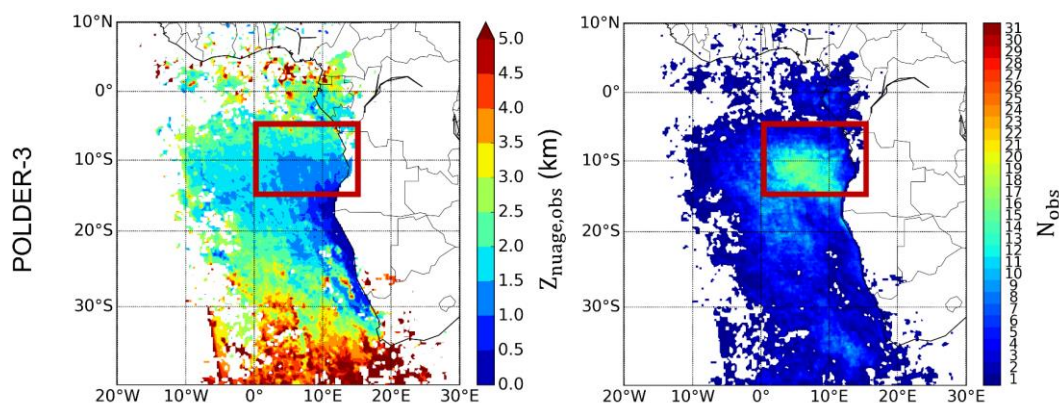


Figure 4.5 : À gauche, altitudes des sommets des nuages ( $Z_{\text{nuage,obs}}$ , en km) restituées par POLDER-3 en moyenne pour le mois de juillet 2008. À droite, nombre de jours d'observations de nuages,  $N_{\text{obs}}$ , par le capteur spatial POLDER-3 au cours du mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) représente la zone d'étude.

La figure 4.5 montre bien que le cadre rouge de coordonnées ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) englobe la couche de stratocumulus et correspond au nombre de jours d'observations de nuages marins le plus élevé dans notre région d'étude.

En première approche, nous sélectionnerons uniquement les nuages présentant une structure verticale monocouche dans le modèle, c'est-à-dire pour lesquels le profil vertical du contenu en eau liquide simulé comporte un seul maximum. Nous qualifierons ces nuages d'homogènes (au sens vertical) dans la suite. Les nuages

présentant une structure verticale complexe seront qualifiés d'hétérogènes. Pour ces situations, le profil vertical du contenu en eau liquide simulé possède plusieurs maximums et le sommet du stratocumulus ne peut, par conséquent, être facilement défini.

Pour la zone choisie au cours du mois de juillet 2008, le pourcentage de cas homogènes simulés par WRF-Chem atteint 99.6 %. Les situations nuageuses complexes correspondant aux 0.4% restants sont éliminées. La méthode adoptée est la suivante : pour chaque pixel du modèle WRF-Chem, le profil vertical du contenu en eau liquide du nuage, LWC (Liquid Water Content), est balayé de la surface jusqu'au sommet de l'atmosphère. Le nombre de changements de pente est compté lors de ce balayage vertical. Si le nombre de changements de pente est égal à 1, alors le pixel contient un nuage homogène ; le pixel est conservé. Si le nombre de changements de pente est supérieur ou égal à 2, alors le pixel contient soit un nuage hétérogène soit une situation nuageuse multicouche ; le pixel est rejeté. La figure 4.6 montre un exemple d'une situation nuageuse hétérogène (courbe bleue) avec trois changements de pente dénombrés.

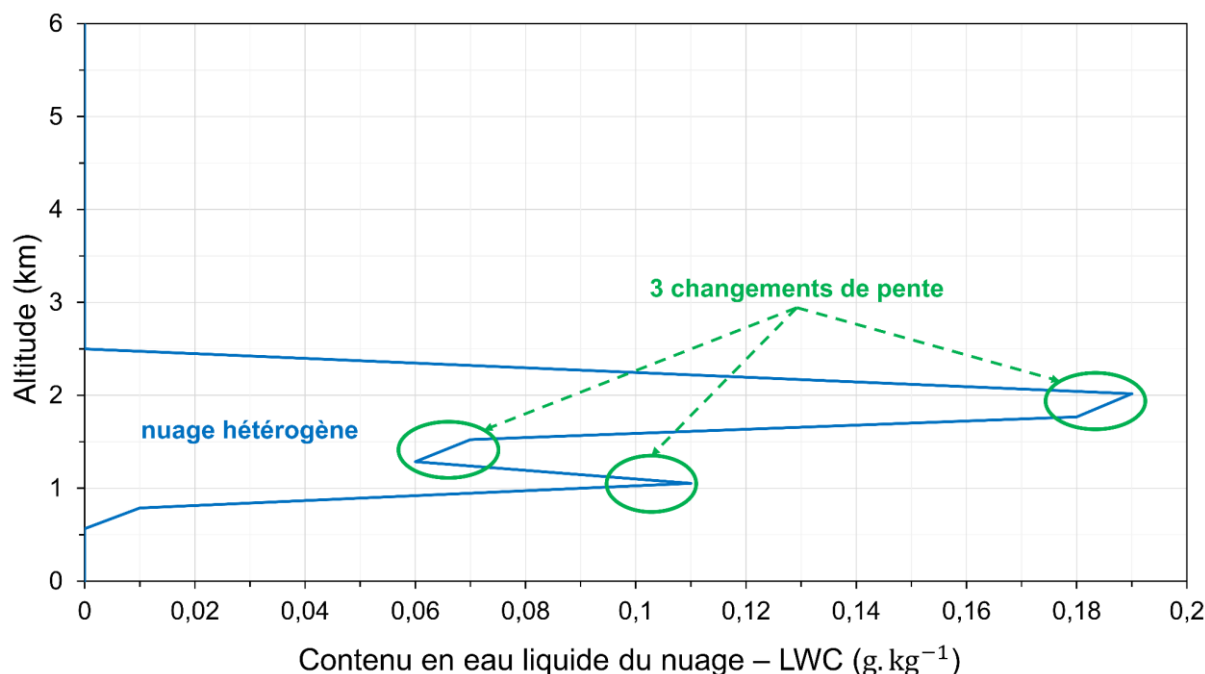


Figure 4.6 : Profil vertical du contenu en eau liquide du nuage (en  $g.kg^{-1}$ , en bleu) pour un pixel de WRF-Chem de coordonnées (13.21°E, 7.34°S) choisi dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

L'avantage de la technique mise en place ici est de garantir la sélection des situations nuageuses monocouches uniformes, ce qui est cohérent avec les données issues de



l'algorithme d'inversion POLDER-3/AERO-AC (Waquet et al. 2013a ; Waquet et al. 2013b ; Peers et al. 2015). De même, les situations présentant des cirrus, qui sont des nuages de glace se formant à haute altitude (entre 6 et 12 km d'altitude), sont rejetés comme dans le produit POLDER-3/AERO-AC.

L'altitude du sommet du nuage est ensuite déterminée en balayant le profil nuageux de bas en haut et en s'arrêtant à une valeur seuil du contenu en eau liquide. Une étude statistique a été effectuée pour déterminer la valeur optimale de ce seuil. Nous avons considéré des valeurs de seuil comprises entre 50 % et 100 % correspondant à une fraction du contenu en eau liquide intégré verticalement. L'altitude du sommet du nuage simulée par la configuration de référence de WRF-Chem pour ces différentes valeurs de seuil est comparée avec celle restituée par POLDER-3 à partir de la méthode de la pression oxygène. Cette technique fournit des estimations de la pression apparente du sommet du nuage par différence d'absorption dans la bande A de l'oxygène (canaux de POLDER-3 centrés sur 763 et 765 nm). Cette pression est ensuite convertie en altitude. Différents travaux ont montré que cette méthode est en fait plutôt indicative d'une altitude comprise entre le milieu et le sommet de la couche nuageuse (Vanbauce et al. 2003 ; Ferlay et al. 2010). Cette méthode a été évaluée récemment dans l'Atlantique Sud-Est en utilisant les mesures de profils verticaux du lidar CALIOP (Deaconu et al. 2019). Une relation empirique a été proposée pour obtenir l'altitude corrigée du sommet du nuage à partir des données de POLDER-3 :

$$CTH_{CALIOP} = \frac{P_{ZO_2, POLDER-3} - 0,36}{0,44} \quad (4.1)$$

$CTH_{CALIOP}$  est l'altitude réelle du sommet du nuage restituée par CALIOP (unité : km).  $P_{ZO_2, POLDER-3}$  est l'altitude du sommet du nuage restituée par POLDER-3 avec la méthode de la pression oxygène (unité : km).

La figure 4.7 compare les altitudes des sommets des nuages stratiformes (en km) restituées par la méthode de la pression oxygène avec POLDER-3 avec celles restituées par CALIOP, sous la trace du lidar CALIOP sur la région de l'Atlantique Sud-Est, en moyenne pour la période de mai à octobre 2006 à 2010.

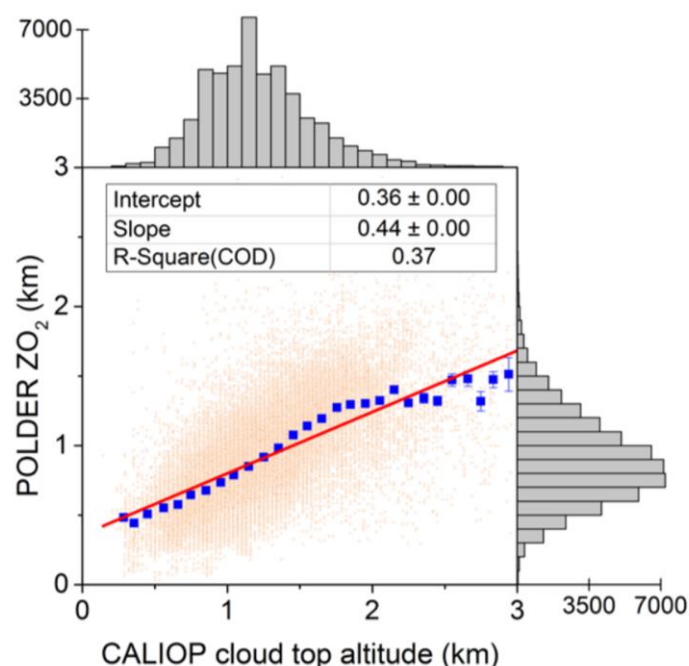


Figure 4.7 : Comparaison entre les altitudes des sommets des nuages stratiformes (en km) restituées par la méthode de la pression oxygène avec POLDER-3 et celles restituées par CALIOP sur la période de mai à octobre 2006 à 2010 le long de la trace du lidar CALIOP, sur la région de l'Atlantique Sud-Est. Les histogrammes latéraux représentent respectivement la distribution de ces données d'observations. Source : (Deaconu et al. 2019).

La figure 4.7 montre que les altitudes des sommets des nuages stratiformes restituées par POLDER-3 sont bien sous-estimées, d'environ 300 mètres, en comparaison avec celles fournies par CALIOP. La régression linéaire entre  $P_{\text{ZO}_2, \text{POLDER-3}}$  et  $\text{CTH}_{\text{CALIOP}}$  a été effectuée sur des données acquises sur l'Atlantique Sud-Est, pour des situations présentant des nuages bas marins survolés par des aérosols de feux biomasse et à partir de quatre ans de données (mai à octobre 2006 à 2010). Cette étude est donc représentative des situations rencontrées dans cette thèse. Ces travaux ont permis d'aboutir à l'équation 4.1 permettant de corriger l'altitude du sommet du nuage restituée par POLDER-3 (Deaconu et al. 2019). L'avantage des données POLDER-3 corrigées est la couverture spatiale beaucoup plus importante que celle du lidar CALIOP ce qui permet d'obtenir une meilleure statistique.

Notre analyse statistique montre que, dans la configuration de référence de WRF-Chem, le seuil à 95 % du contenu en eau liquide du nuage intégré verticalement est celui qui permet d'obtenir des résultats de modélisation les plus proches statistiquement des restitutions de POLDER-3. La figure 4.8 présente les courbes de régressions linéaires effectuées entre les altitudes des sommets des nuages simulées par la configuration de référence de WRF-Chem (valeurs de seuil comprises entre 50

et 100 %) et celles restituées par POLDER-3 dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les résultats obtenus avec WRF-Chem et POLDER-3, pour le seuil à 95 % (en rouge), sont notamment présentés sous la forme d'histogrammes sur la figure 4.8.

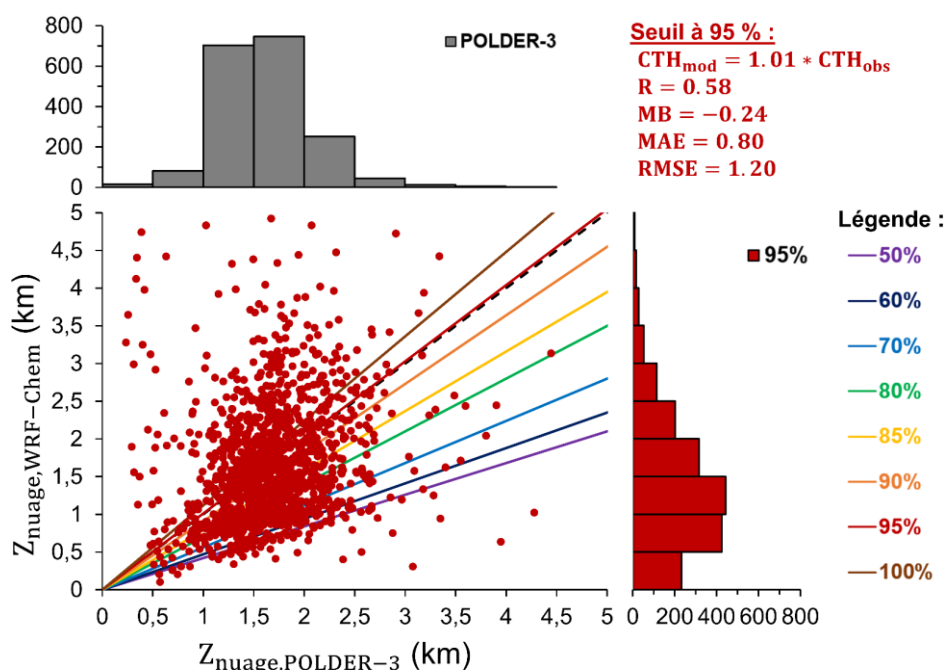


Figure 4.8 : Comparaison entre les altitudes des sommets des nuages marins (en km) simulées par la configuration de référence de WRF-Chem, pour les valeurs de seuil comprises entre 50 et 100 %, et celles restituées par POLDER-3 sur un échantillon de 1 863 pixels coincidents dans la zone d'étude indiquée par le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) sur la figure 4.5, en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les régressions linéaires sont forcées à l'origine pour maximiser la corrélation du paramètre CTH (Cloud Top Height) qui désigne l'altitude du sommet du nuage. Les histogrammes latéraux représentent la distribution des altitudes du sommet des nuages simulées par la configuration de référence de WRF-Chem avec le seuil à 95 % (en rouge) et restituées par POLDER-3 (en gris). R, MB, MAE et RMSE désignent respectivement le coefficient de corrélation de Pearson, le biais moyen, l'erreur absolue moyenne et l'erreur quadratique moyenne.

La figure 4.8 montre que le seuil à 95 % choisi dans la configuration de référence de WRF-Chem représente le meilleur compromis dans sa capacité à reproduire les altitudes des sommets des nuages restituées par POLDER-3. En effet, le coefficient directeur de la pente est égal à 1.01 pour cette valeur de seuil (courbe rouge) associé à un coefficient de corrélation de Pearson de 0.58. En-dessous du seuil à 95%, les altitudes des sommets des nuages simulées avec la configuration de référence de WRF-Chem se décalent vers les classes de valeurs les plus basses, renforçant la sous-estimation des valeurs simulées en comparaison avec celles restituées par POLDER-3. Pour le seuil à 100 %, le nombre de cas augmente pour les classes les plus hautes renforçant la surestimation des valeurs simulées par la configuration de référence de WRF-Chem en comparaison avec celles restituées par POLDER-3.

Cependant, les histogrammes de densité des altitudes des sommets des nuages sur la figure 4.8 montrent qu'avec le seuil à 95 %, la configuration de référence de WRF-Chem positionne les nuages légèrement plus en bas en altitude par rapport aux restitutions de POLDER-3. En effet, le plus grand nombre d'occurrences se situe dans l'intervalle [1.0 ; 1.49] pour WRF-Chem contre [1.5 ; 1.99] pour POLDER-3, indiquant une sous-estimation de l'altitude du sommet des nuages de l'ordre de 500 mètres d'altitude, en moyenne dans la zone géographique de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S). Cette légère sous-estimation par le modèle avec le seuil à 95 % se traduit par un biais moyen de -0.24, une erreur absolue moyenne de 0.80 et une erreur quadratique moyenne de 1.20.

La figure 4.9 présente les altitudes des sommets des nuages restituées par POLDER-3 (à gauche) et simulées par la configuration de référence de WRF-Chem avec le seuil fixé à 95 % (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

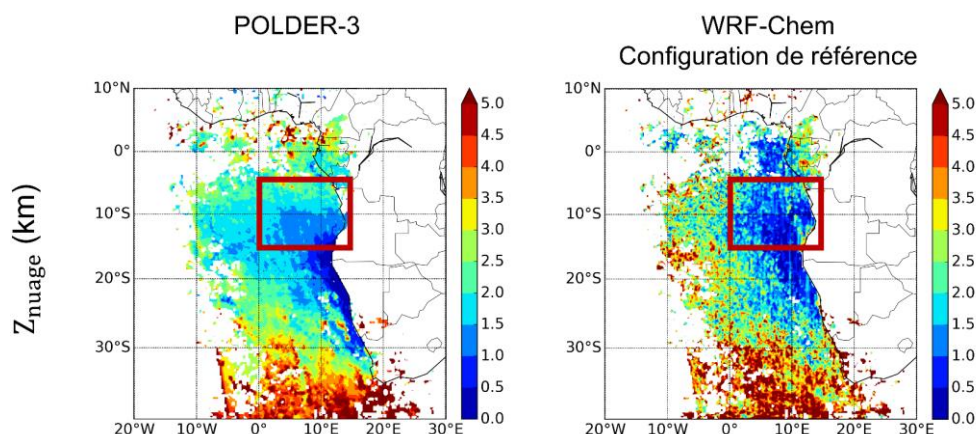


Figure 4.9 : Altitudes des sommets des nuages (en km) restituées par POLDER-3 (à gauche) et simulées par la configuration de référence de WRF-Chem avec le seuil fixé à 95 % du contenu en eau liquide du nuage intégré verticalement (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) représente la zone d'étude.

La figure 4.9 montre que le long de l'Angola et de la Namibie, la configuration de référence de WRF-Chem avec le seuil à 95 % reproduit bien la zone de nuages bas typiquement observée dans ces régions (Deaconu et al. 2019). Dans la zone d'étude matérialisée par le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S), la figure 4.9 montre que la configuration de référence de WRF-Chem avec le seuil à 95 % sous-estime légèrement l'altitude moyenne du sommet des nuages par rapport à la donnée d'observation spatiale. Au sud de la zone d'étude, et au nord au-dessus des terres (Congo, Gabon), les zones de convections nuageuses sont assez bien reproduites par la configuration de référence de WRF-Chem avec le seuil à 95 %, avec des altitudes

de sommet de nuages élevées, supérieures à 2 km en moyenne. En revanche, à l'ouest de la zone d'étude, une différence majeure est visible. Le modèle simule des nuages convectifs (cumulus) dont l'altitude moyenne du sommet des nuages est supérieure à 2.5 km, contrairement à POLDER-3 qui restitue des nuages bas dont l'altitude moyenne du sommet des nuages est aux alentours de 1.5-2.0 km. La différence entre la modélisation et les restitutions de POLDER-3 pourrait provenir de la paramétrisation des nuages dans la configuration de référence de WRF-Chem.

La figure 4.10 résume la méthodologie établie pour la détermination de l'altitude du sommet des nuages dans la configuration de référence de WRF-Chem, et le calcul subséquent des propriétés optiques des aérosols au-dessus des nuages pour chaque pixel du modèle. La première étape consiste à conserver uniquement les situations monocouches homogènes caractérisées par un seul maximum lors du balayage du profil vertical du contenu en eau liquide du nuage. La deuxième étape consiste à calculer l'altitude du sommet du nuage, non fournie directement par WRF-Chem, définie par la méthode statistique ci-dessus et correspondant au seuil à 95 % du contenu en eau liquide du nuage intégré verticalement sur la colonne atmosphérique. La troisième étape consiste à calculer l'ACAOD et l'ACSSA, en intégrant ces quantités sur la verticale, depuis le sommet du nuage jusqu'au sommet de l'atmosphère. La dernière étape consiste à comparer ces deux propriétés optiques des aérosols avec celles restituées par POLDER-3 à 550 nm, par exemple, pour l'évaluation du modèle.

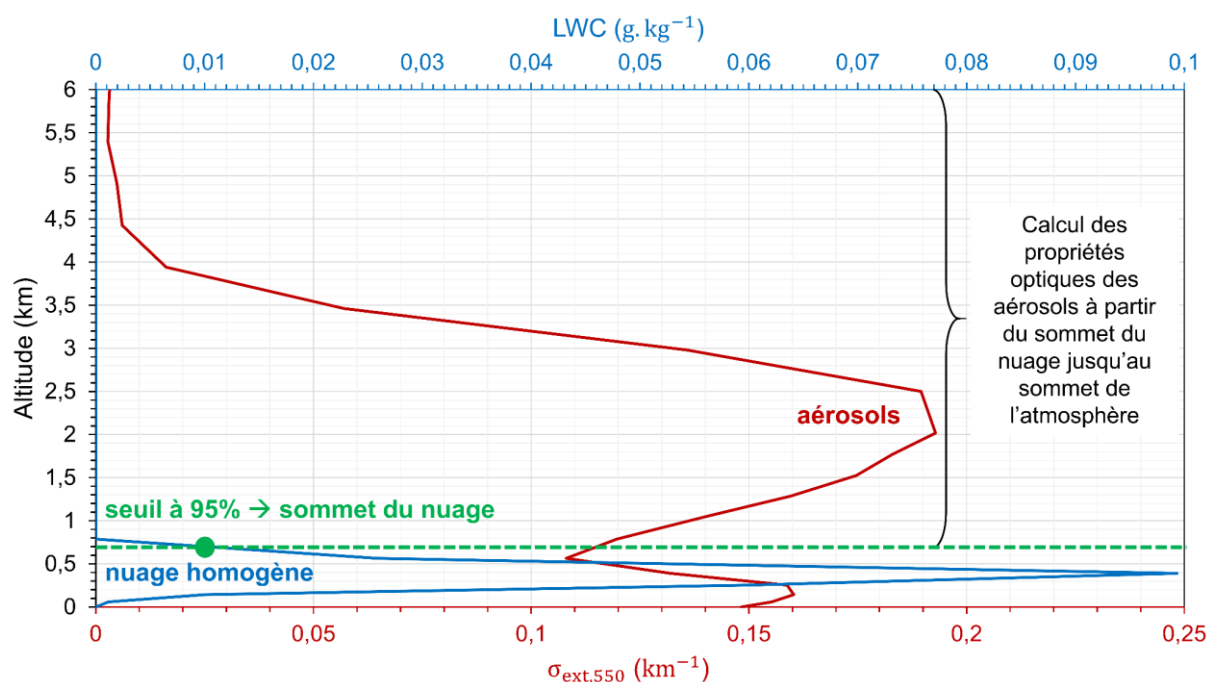


Figure 4.10 : Profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 550 nm ( $\sigma_{ext}$  en  $km^{-1}$ , en rouge) et du contenu en eau liquide du nuage (LWC en  $g.kg^{-1}$ , en bleu) pour un pixel de WRF-Chem de coordonnées (6.18°E, 11.50°S) choisi dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

La figure 4.10 montre un exemple d'une situation nuageuse monocouche (un seul changement de pente dénombré, courbe bleue) avec la présence de deux couches d'aérosols distinctes (courbe rouge). La première est comprise entre 0 et 600 mètres d'altitude environ avec un pic de concentration d'aérosols situé à 100-200 mètres d'altitude et pourrait correspondre à la présence de sels marins. La seconde est comprise entre 0.6 et 6 kilomètres d'altitude environ avec un pic de concentration d'aérosols situé vers 2 kilomètres d'altitude et pourrait correspondre à la présence d'aérosols de feux de biomasse. La couche prédominante, supposée d'aérosols de feux de biomasse, surplombe un stratocumulus marin (en bleu) dont l'altitude de son sommet est située à 700 mètres (point vert).

#### 4.2.1.2 Hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse

La hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse est également un paramètre important qui va conditionner le transport du panache d'aérosols de feux de biomasse et ses potentielles interactions avec la couche nuageuse (Hansen et al. 1997 ; Podgorny et Ramanathan 2001 ; Rosenfeld et al. 2014 ; Lee et al. 2016).



Une fois la phase initiale d'injection réalisée, les aérosols entrent dans la circulation atmosphérique générale. Une fraction de ces aérosols se situe alors dans la couche limite planétaire et ces particules sont bien mélangées grâce à la convection diurne. Lorsque la puissance d'injection est suffisamment forte, une partie des aérosols peut dépasser la couche limite, atteindre la troposphère libre et ensuite être transportée sur de très longues distances (Labonne et al. 2007).

Rappelons que l'un des points forts de WRF-Chem pour la simulation des aérosols de feux de biomasse est que la hauteur d'injection de ces aérosols est calculée de manière dynamique en fonction des conditions thermodynamiques des feux (Freitas et al. 2006, 2007 ; Grell et al. 2011). La hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse dans la configuration de référence de WRF-Chem est évaluée qualitativement à partir des profils verticaux des concentrations massiques de  $PM_{10}$  (en  $mg.m^{-3}$ ) injectés dans l'atmosphère par trois sources majeures de feux de biomasse dans la moitié sud de l'Afrique, indiquées sur la figure 4.11, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

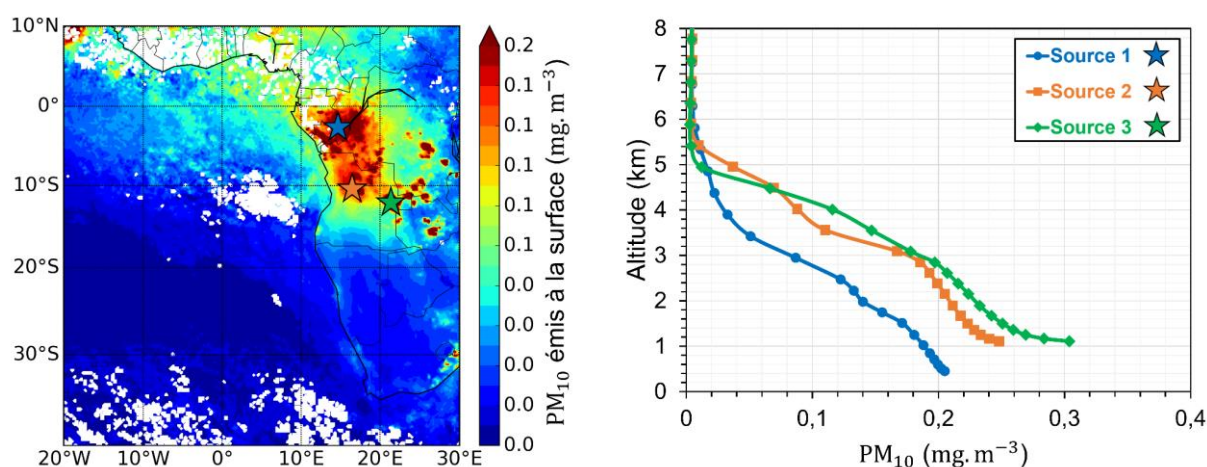


Figure 4.11 : À gauche, concentrations massiques de  $PM_{10}$  (en  $mg.m^{-3}$ ) émises à la surface par la configuration de référence de WRF-Chem au cours du mois de juillet 2008. À droite, profils verticaux des  $PM_{10}$  injectés dans l'atmosphère par trois sources majeures de feux de biomasse africaine simulées par la configuration de référence de WRF-Chem, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

La figure 4.11 montre que les aérosols de feux de biomasse simulés par la configuration de référence de WRF-Chem sont injectés dans l'atmosphère jusqu'à environ 6 kilomètres d'altitude, ce qui est cohérent avec les observations CALIOP analysées dans cette région du monde (Koffi et al. 2012, 2016). La configuration de référence de WRF-Chem injecte donc les aérosols de feux de biomasse suffisamment haut dans l'atmosphère pour permettre leur transport à longue distance.

#### 4.2.1.3 Distribution verticale des aérosols et des nuages

L'altitude du sommet des nuages dans la configuration de référence de WRF-Chem étant définie et la hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse étant vérifiée, nous pouvons examiner la répartition verticale des aérosols et des nuages au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental.

La figure 4.12 présente les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols ( $\sigma_{ext}$ , en  $\text{km}^{-1}$ ) restitué par le lidar CALIOP à 532 nm (courbes oranges en pointillés) et simulé par la configuration de référence de WRF-Chem à 550 nm (courbes rouges en trait plein) pour le 12 juillet 2008 (en haut) et le 28 juillet 2008 (en bas). Ces deux journées particulières ont été choisies en raison d'un panache d'aérosols de feux de biomasse dense transporté au-dessus des nuages marins de l'océan Atlantique sud-oriental. Les profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols sont moyennés sous la trace CALIOP dans la zone de coordonnées ( $0^\circ\text{E}$ - $15^\circ\text{E}$ ,  $15^\circ\text{S}$ - $5^\circ\text{S}$ ), cette étendue étant caractérisée par la présence d'une couche semi-permanente de stratocumulus marins (voir figure 4.5). Les altitudes moyennes des sommets des nuages restituées par CALIOP (courbes vertes en pointillés) et simulées par la configuration de référence de WRF-Chem (courbes bleues) sont également indiquées sur la figure 4.12 pour chacune de ces deux journées. Il est à noter que l'extinction des aérosols restituée par CALIOP au-dessus des nuages a été corrigée avec le produit POLDER-3/AERO-AC selon la relation (Deaconu et al. 2019) :

$$\sigma_{ext,CALIOP\_corr}(532) = \sigma_{ext,CALIOP}(532) * \frac{ACAOD_{POLDER}(532)}{ACAOD_{CALIOP}(532)} \quad (4.2)$$

$\sigma_{ext,CALIOP}(532)$  et  $\sigma_{ext,CALIOP\_corr}(532)$  sont respectivement le coefficient d'extinction des aérosols à 532 nm restitué par CALIOP et corrigé par POLDER-3/AERO-AC.  $ACAOD_{CALIOP}(532)$  et  $ACAOD_{POLDER}(532)$  sont respectivement l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages à 532 nm restituée par CALIOP et par POLDER-3/AERO-AC (interpolée). Deaconu et al. (2017) ont montré que CALIOP sous-estimait la charge des aérosols au-dessus des nuages d'un facteur variant de 2 à 4 en comparaison avec les restitutions de POLDER-3/AERO-AC.



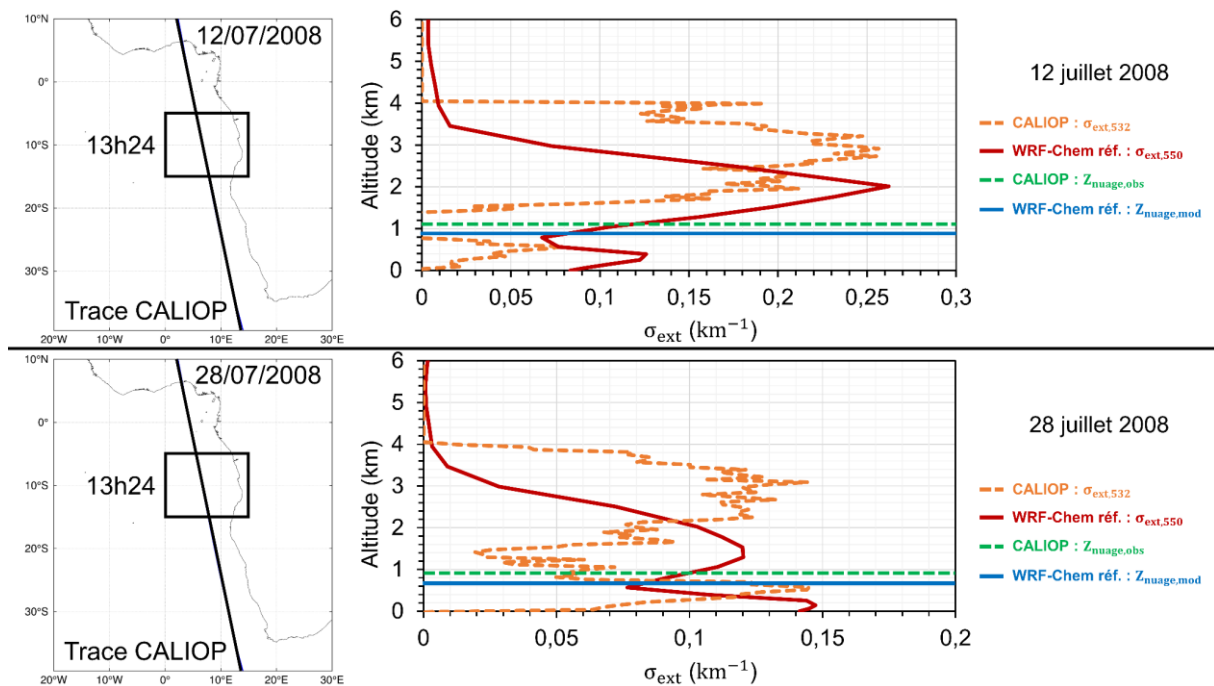


Figure 4.12 : À gauche, traces CALIOP dans la région de l'Atlantique Sud-Est pour le 12 juillet 2008 (en haut) et pour le 28 juillet 2008 (en bas). À droite, profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols restitué par le lidar CALIOP à 532 nm ( $\sigma_{ext,532}$ , courbes oranges en pointillés) et simulé par la configuration de référence de WRF-Chem à 550 nm ( $\sigma_{ext,550}$ , courbes rouges en trait plein), moyennés sous la trace CALIOP dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S). Les altitudes moyennes des sommets des nuages restituées par CALIOP (Z<sub>nuage,obs</sub>, courbes vertes en pointillés) et simulées par la configuration de référence de WRF-Chem (Z<sub>nuage,mod</sub>, courbes bleues en trait plein) sont également reportées sur les graphiques de droite. Les données CALIOP (initialement à 5 km<sup>2</sup> de résolution spatiale horizontale) sont agrégées sur la maille de WRF-Chem (résolution spatiale horizontale de 30 km<sup>2</sup>) et seuls les pixels coïncidents sont conservés pour l'étude de comparaison.

La figure 4.12 montre un bon accord général avec deux couches d'aérosols distinctes et la présence d'une couche de nuages bas restituées par CALIOP et simulées par la configuration de référence de WRF-Chem pour les deux cas d'étude. Cependant, les altitudes moyennes des couches d'aérosols et des nuages diffèrent légèrement et semblent systématiquement sous-estimées par la configuration de référence de WRF-Chem, en comparaison avec les restitutions du lidar CALIOP. Prenons le cas du 12 juillet 2008. La première couche d'aérosols, comprise entre 0 et 0.8 (0 et 0.8) kilomètre d'altitude environ pour CALIOP (WRF-Chem), pourrait correspondre à un mélange d'aérosols comprenant des sels marins. La seconde, comprise entre 1.4 et 4.0 (0.8 et 3.4) kilomètres d'altitude environ pour CALIOP (WRF-Chem), pourrait correspondre au panache d'aérosols de feux de biomasse habituellement observé dans cette région à cette période de l'année (Koffi et al. 2012, 2016 ; Zuidema et al. 2016b ; Formenti et al. 2019). À propos des nuages, la configuration de référence de WRF-Chem sous-estime d'environ 200 mètres l'altitude du sommet des nuages le 12 juillet 2008 (sous-estimation d'environ 300 mètres le 28 juillet 2008), en moyenne sous la trace CALIOP.

Cette différence entre la modélisation et les restitutions de CALIOP pourrait provenir de la paramétrisation des nuages dans la configuration de référence de WRF-Chem, comme énoncé dans la section 4.2.1.1.

En résumé, la figure 4.12 montre que la configuration de référence de WRF-Chem place la majeure partie de la charge des aérosols de feux de biomasse au-dessus des nuages.

## 4.2.2 Contenu des aérosols transportés au-dessus des nuages

L'altitude du sommet des nuages, la hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse et la distribution verticale des aérosols et des nuages étant, en moyenne, reproduites de façon cohérente par la configuration de référence de WRF-Chem, nous pouvons maintenant étudier le contenu des aérosols transportés au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental. La figure 4.13 présente l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages à 550 nm restituée par POLDER-3/AERO-AC (à gauche) et simulée par la configuration de référence de WRF-Chem (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

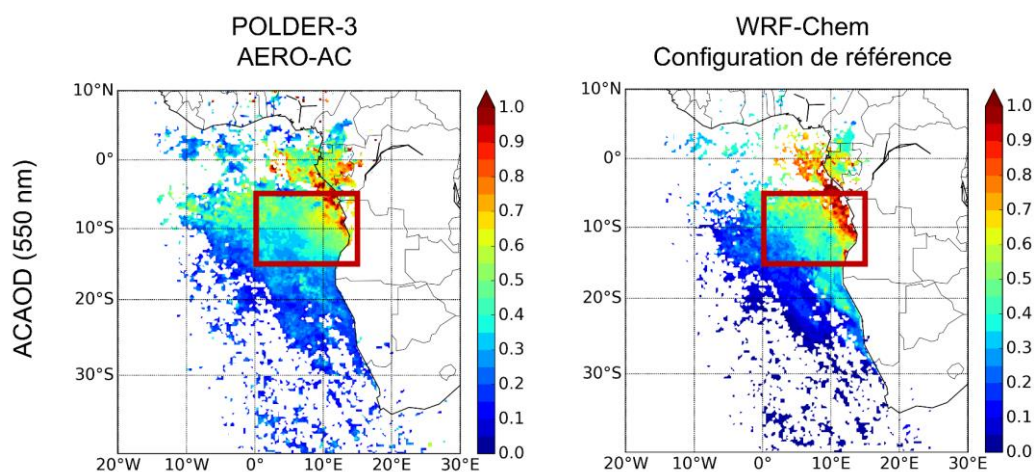


Figure 4.13 : Épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages (ACAOD) à 550 nm restituée par POLDER-3/AERO-AC (à gauche) et simulée par la configuration de référence de WRF-Chem (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) représente la zone d'étude.

La figure 4.13 montre, en moyenne dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) pour le mois de juillet 2008, un bon accord général entre la configuration de référence de WRF-Chem ( $ACAOD_{mod,550nm} = 0.49$ ) et les restitutions de POLDER-

3/AERO-AC ( $ACAOD_{obs,550nm} = 0.42 \pm 0.08$ ). Localement, des différences sont observées au niveau de l'intensité et de la localisation de l'ACAOD. Par exemple, la configuration de référence de WRF-Chem surestime la charge en aérosols le long des côtes sud-africaines. Inversement, le modèle sous-estime la quantité d'aérosols transportés au large de l'océan Atlantique sud-oriental ( $10^{\circ}O-0^{\circ}O$ ,  $15^{\circ}S-5^{\circ}S$ ).

En résumé, ces premiers résultats indiquent que les quantités d'aérosols simulées en ciel clair et au-dessus des nuages par la configuration de référence de WRF-Chem sont en bon accord, respectivement avec les données POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC. Ceci suggère que les émissions d'aérosols de feux de biomasse, ainsi que leur transport horizontal et vertical depuis les zones sources jusqu'à la zone de transport au large de l'océan Atlantique sud-oriental, au-dessus des stratocumulus marins, sont correctement simulés par notre configuration de référence de WRF-Chem. Nous allons maintenant étudier les propriétés d'absorption de ces particules, via notamment leur albédo de simple diffusion.

## 4.3 Taille, composition chimique et absorption des aérosols en ciel clair et au-dessus des nuages

### 4.3.1 Taille des aérosols

L'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA), qui rend compte de leurs propriétés d'absorption, est une propriété optique qui dépend à la fois de la taille des particules et de leur composition chimique. Bien simuler l'albédo de simple diffusion du panache d'aérosols de feux de biomasse nécessite donc, au préalable, de bien estimer leur taille.

La taille des aérosols peut être estimée de manière qualitative par l'exposant d'Angström  $\alpha$  qui fournit l'information sur la taille des particules, les valeurs de  $\alpha$  les plus grandes correspondant aux tailles de particules les plus petites. La figure 4.14 présente l'exposant d'Angström restitué par POLDER-3 (à gauche) et simulé par la configuration de référence de WRF-Chem (à droite) en ciel clair ( $\alpha$ , en haut) et au-dessus des nuages (AC- $\alpha$ , en bas), calculé entre 670 et 865 nm en moyenne pour le mois de juillet 2008.

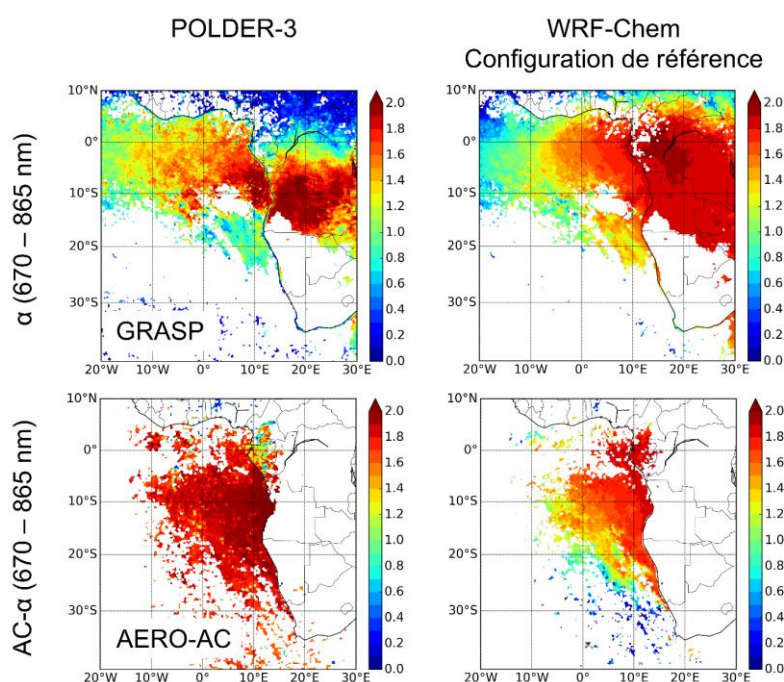


Figure 4.14 : Exposant d'Angström restitué par POLDER-3 (à gauche) et simulé par la configuration de référence de WRF-Chem (à droite) en ciel clair ( $\alpha$ , en haut) et au-dessus des nuages ( $AC-\alpha$ , en bas), calculé entre 670 et 865 nm, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

La figure 4.14 montre, en moyenne pour le mois de juillet 2008, un bon accord avec les restitutions de POLDER-3/GRASP avec des valeurs de  $\alpha$  simulées par la configuration de référence de WRF-Chem supérieures à 1 dans la région de l'Atlantique Sud-Est, et proches de 2 au niveau des sources d'émissions de feux de biomasse. Ces valeurs sont typiques des fines particules de feux de biomasse habituellement rencontrées dans cette région (Dubovik et al. 2002). Au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, l'accord est légèrement moins bon avec les restitutions de POLDER-3/AERO-AC. Les valeurs moyennes de  $AC-\alpha$  simulées par la configuration de référence de WRF-Chem sont aux alentours de 1.8 tandis que celles restituées par POLDER-3/AERO-AC sont proches de 2.0, indiquant des particules simulées plus grosses en taille par rapport aux restitutions de POLDER-3/AERO-AC.

Nous pouvons remarquer sur la figure 4.14 une tendance à la diminution des valeurs de  $\alpha$  au fur et à mesure de la progression vers l'ouest du panache d'aérosols de feux de biomasse, suggérant un grossissement graduel de la taille des particules de feux de biomasse et/ou une évolution de la composition chimique de ces aérosols. Ce gradient pourrait aussi être lié à une diminution des quantités de particules fines (de biomasse) au cours du transport et donc à une augmentation en proportion de celles du mode grossier (sels marins et/ou poussières désertiques). Ces caractéristiques sont illustrées sur la figure 4.15 qui montre l'évolution, au cours du transport du



panache d'aérosols de feux de biomasse, de la distribution en taille (en volume) des aérosols intégrée sur la colonne atmosphérique et simulée par la configuration de référence de WRF-Chem, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

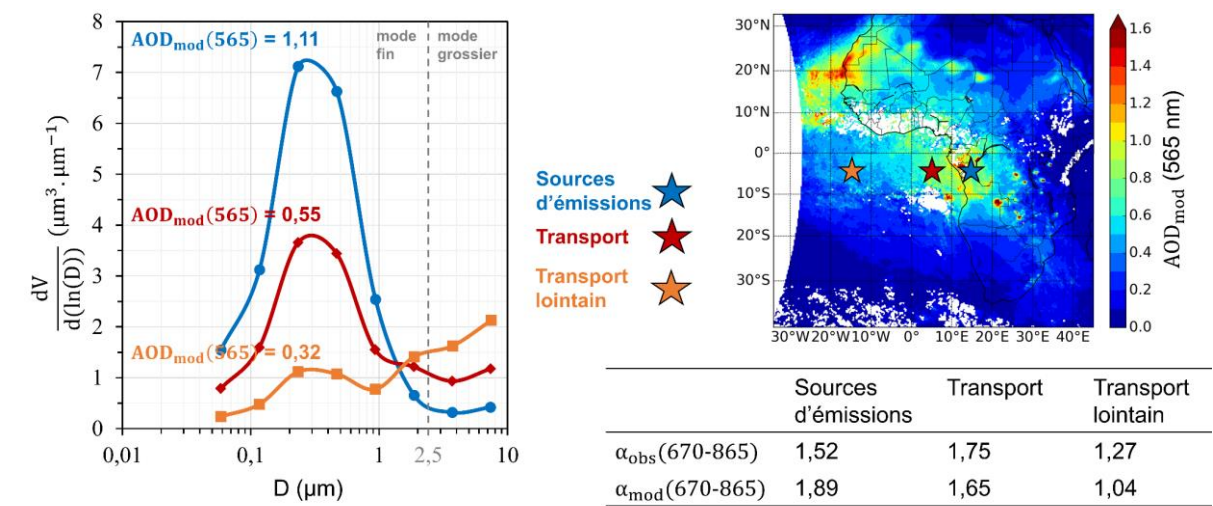


Figure 4.15 : Évolution de la distribution en taille (en volume) des aérosols intégrée sur la colonne atmosphérique (à gauche) et simulée par la configuration de référence de WRF-Chem pour trois secteurs représentatifs du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse, indiqués sur la carte de l'épaisseur optique aérosol totale à 565 nm en ciel clair (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. L'étoile bleue correspond au pixel de coordonnées (14.83°E, 4.00°S) et symbolise les sources d'émission des particules de feux de biomasse. L'étoile rouge correspond au pixel de coordonnées (4.82°E, 4.00°S) et symbolise le transport du panache d'aérosols de feux de biomasse au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental. L'étoile orange correspond au pixel de coordonnées (14.93°O, 4.00°S) et symbolise le transport à longue distance du panache d'aérosols de feux de biomasse. Sont également reportées dans le tableau les valeurs moyennes correspondantes de l'exposant d'Angström  $\alpha$  (à droite) simulées par la configuration de référence de WRF-Chem.

La figure 4.15 indique que, près des sources d'émissions d'aérosols de feux de biomasse, le mode fin domine la distribution en taille en volume des aérosols avec un diamètre moyen des particules centré à 0.3  $\mu\text{m}$  correspondant au mode d'accumulation. Au cours du transport, il y a apparition progressive de plus grosses particules qui est liée aux processus de vieillissement et aussi à une influence un peu plus marquée de plus grosses particules comme les sels marins et notamment les poussières désertiques, comme illustré sur la figure 4.16. La figure 4.16 présente l'effet des aérosols désertiques sur l'évolution de la distribution en taille (en volume) des aérosols intégrée verticalement et simulée par la configuration de référence de WRF-Chem au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse, en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les courbes en trait plein prennent en compte les aérosols désertiques dans la distribution en taille des aérosols contrairement aux courbes en pointillés.

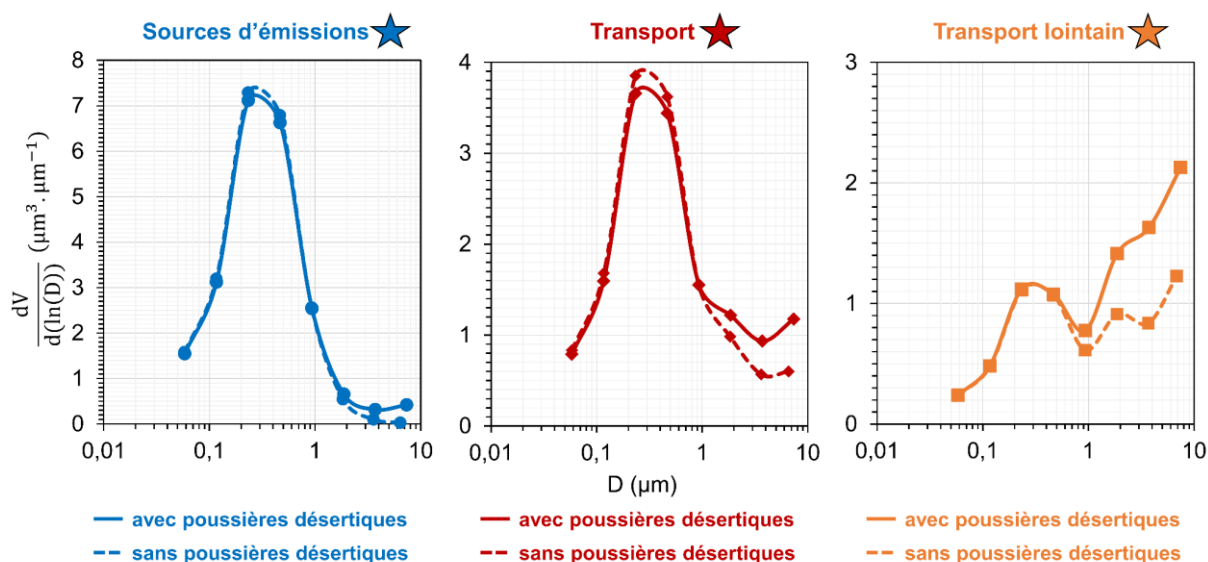


Figure 4.16 : Impact des aérosols désertiques sur l'évolution de la distribution en taille (en volume) des aérosols intégrée sur la colonne atmosphérique et simulée par la configuration de référence de WRF-Chem pour les trois secteurs représentatifs du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse indiqués sur la figure 4.15, avec (courbes en trait plein) et sans (courbes en pointillés) poussières désertiques, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

La figure 4.16 montre que les poussières désertiques agissent, comme attendu d'après la figure 2.5, principalement au niveau du mode grossier avec une domination de ce mode loin des sources de feux (transport lointain, courbes oranges). En effet, ce secteur est sous l'influence des poussières désertiques venant de l'Afrique de l'Ouest et l'essentiel du panache d'aérosols de feux de biomasse est éliminé par dépôt du fait de son transport à très longue distance.

Concernant les valeurs moyennes de l'exposant d'Angström reportées dans le tableau de la figure 4.15, la configuration de référence de WRF-Chem simule une diminution des valeurs de  $\alpha$  au fur et à mesure de l'éloignement des sources d'émissions de feux de biomasse. Ceci indique un grossissement progressif de la taille des particules et la modification de leur composition chimique (apparition de sels marins/poussières désertiques), en accord avec la distribution en taille (en volume) des particules simulée (figure 4.15 et figure 4.16). POLDER-3/GRASP restitue également cette tendance à la diminution des valeurs moyennes de  $\alpha$ , même si au niveau des zones sources la valeur restituée de  $\alpha$  (de l'ordre de 1.5) est inférieure à celle simulée par la configuration de référence de WRF-Chem (de l'ordre de 1.9). Un léger biais avec POLDER-3/GRASP est donc présent près des sources d'émissions d'aérosols de feux de biomasse, mais les observations POLDER-3 restituent bien une évolution caractérisée par une

diminution des valeurs de l'exposant d'Angström au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse.

En résumé, la taille des particules simulée par la configuration de référence de WRF-Chem semble réaliste, même si quelques désaccords avec les données satellitaires POLDER-3 sont observés au niveau de l'exposant d'Angström près des zones d'émissions et durant le transport des particules de feux de biomasse. Cependant, dans la suite de l'étude, nous ferons l'hypothèse que ces divergences ne sont pas suffisamment prononcées pour influencer de manière significative la modélisation de l'albédo de simple diffusion des aérosols. Par conséquent, nous admettrons que le SSA sera essentiellement sensible au niveau d'absorption des aérosols simulés par WRF-Chem.

#### 4.3.2 Composition chimique des aérosols

Les propriétés d'absorption du panache d'aérosols de feux de biomasse vont dépendre de sa composition chimique, mais peuvent aussi être influencées par d'autres types d'aérosols présents dans la région d'étude. La figure 4.17 présente la composition chimique des  $PM_{2,5}$  simulée par la configuration de référence de WRF-Chem au niveau du continent sud-africain en ciel clair ((12°E-30°E, 10°S-0°S), à gauche) et au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental ((0°E-15°E, 15°S-5°S), à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les  $PM_{2,5}$  incluent les aérosols organiques (OA, en vert), les aérosols inorganiques secondaires (SIA, en gris), le carbone organique (OC, hachures marron), le carbone noir (BC, en noir), les poussières désertiques (DUST, en jaune) et les sels marins (SEAS, en bleu). Les concentrations massiques (en  $mg.m^{-2}$ ) des aérosols sont intégrées sur la verticale, depuis le sol au niveau de la région continentale et depuis le sommet des nuages au niveau de la région océanique.

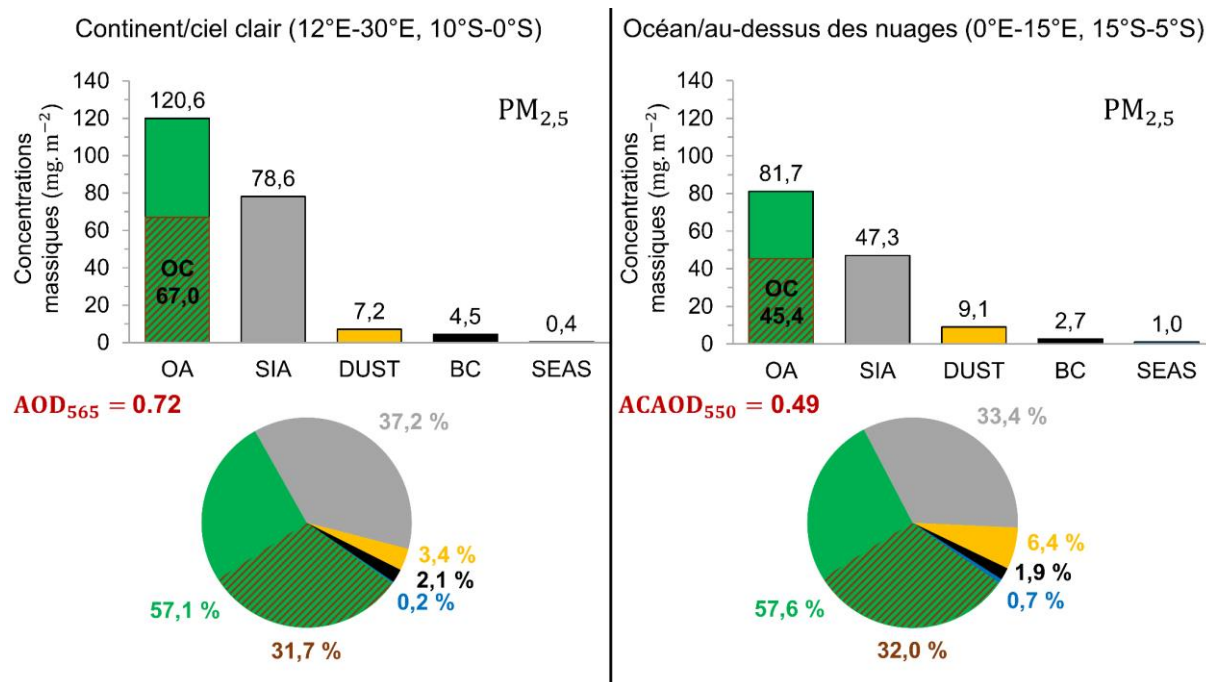


Figure 4.17 : Évolution de la composition chimique des  $PM_{2,5}$  simulée par la configuration de référence de WRF-Chem depuis les zones sources du continent sud-africain en ciel clair ((12°E-30°E, 10°S-0°S), à gauche) jusqu'au large de l'océan Atlantique sud-oriental au-dessus des nuages ((0°E-15°E, 15°S-5°S), à droite). Les concentrations massiques (en  $mg.m^{-2}$ ) des aérosols organiques (OA, en vert), des aérosols inorganiques secondaires (SIA, en gris), du carbone organique (OC, hachures marron), du carbone suie (BC, en noir), des poussières désertiques (DUST, en jaune) et des sels marins (SEAS, en bleu) sont intégrées sur la verticale, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

Près des sources d'émissions d'aérosols de feux de biomasse (12°E-30°E, 10°S-0°S), les aérosols organiques (OA, en vert) sont les espèces majoritaires avec une masse intégrée verticalement sur la colonne atmosphérique de  $120.6 mg.m^{-2}$ , représentant 57.1 % de la composition totale des  $PM_{2,5}$ . Les aérosols inorganiques secondaires (SIA, en gris) comprenant les sulfates, les nitrates et l'ammonium sont les deuxièmes espèces prédominantes avec une masse intégrée verticalement de  $78.6 mg.m^{-2}$ , représentant environ 37.2 % des  $PM_{2,5}$ . Les aérosols carbonés, BC (en noir) et OC (hachures marron), représentent respectivement 2.1 % et 31.7 % des  $PM_{2,5}$ . Au cours du transport au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental (0°E-15°E, 15°S-5°S), les concentrations massiques des OA, SIA, BC et OC, diminuent. Cette diminution est causée par l'élimination d'une partie de ces aérosols par dépôt sec, la majeure partie de la charge des aérosols étant placée au-dessus des nuages (voir figure 4.12).

Nous pouvons noter que l'influence des poussières désertiques s'accroît au fur et à mesure de l'avancée du panache d'aérosols de feux de biomasse au large de l'océan Atlantique sud-oriental avec une masse intégrée sur la verticale augmentant de 7.2



$\text{mg. m}^{-2}$  à  $9.1 \text{ mg. m}^{-2}$  (proportions relatives de 3.4 % et 6.4 % respectivement). La figure 4.17 montre que la contribution des sels marins reste très minoritaire aussi bien au-dessus du continent sud-africain (0.2 %), qu'en zone de transport (0.7 %), ce qui semble logique puisqu'au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental les masses d'aérosols sont intégrées verticalement à partir de l'altitude du sommet des nuages.

Même si la zone géographique n'est pas exactement la même, la composition chimique des aérosols simulée par la configuration de référence de WRF-Chem paraît réaliste en comparaison avec les résultats récents du projet DACCIWA (Dynamics-Aerosol-Chemistry-Cloud Interactions in West Africa, campagnes aéroportées menées en juin-juillet 2016 en Afrique de l'Ouest, Flamant et al. 2017). En effet, les résultats de DACCIWA ont montré que les OA dominaient de près de 50 % la masse totale des aérosols, que les SIA représentaient environ 34 % de la masse totale des aérosols et que la contribution du BC était de l'ordre de 14 % (Haslett et al. 2019). Nous pouvons noter toutefois que la configuration de référence de WRF-Chem, dans notre zone d'étude, simule des contributions plus faibles de carbone suie ( $< 3 \%$ ) que celles mesurées au cours de DACCIWA.

La figure 4.18 présente l'évolution de la composition chimique des aérosols carbonés (BC en noir et OC en marron), des DUST (en jaune) et des SEAS (en bleu) sur la colonne atmosphérique et de l'extinction des aérosols à 550 nm (COEFF\_EXT\_550, courbes rouges en pointillés) le long du parcours du panache d'aérosols de feux de biomasse dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

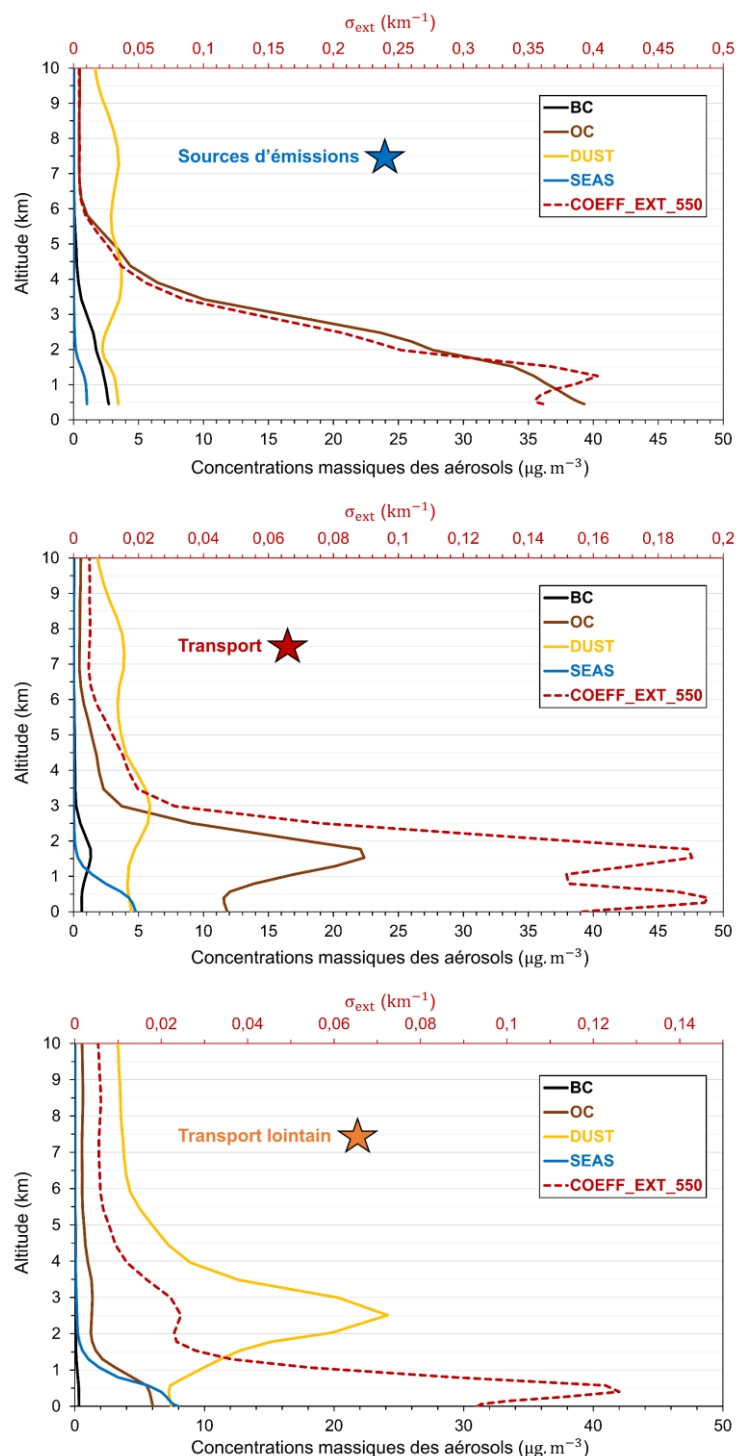


Figure 4.18 : Profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 550 nm ( $\sigma_{ext}$  en  $km^{-1}$ , courbes rouges en pointillés) et des concentrations massiques (en  $\mu g. m^{-3}$ ) des aérosols carbonés, c'est-à-dire le carbone suie (BC, courbes noires) et le carbone organique (OC, courbes marrons), et des poussières désertiques (DUST, courbes jaunes) et des sels marins (SEAS, courbes bleues) simulés par la configuration de référence de WRF-Chem le long du parcours du panache d'aérosols de feux de biomasse, depuis son émission jusqu'à son transport à longue distance au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental, en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les profils verticaux en haut, au milieu et en bas sont tracés respectivement pour les pixels sources d'émission (étoile bleue), transport (étoile rouge) et transport lointain (étoile orange), reportés sur la figure 4.15.

À l'émission, le carbone organique (OC, courbe marron) domine la concentration en masse des aérosols où il est injecté dans l'atmosphère jusqu'à 6 km d'altitude environ. Ensuite, l'altitude du panache d'aérosols de feux de biomasse décroît progressivement avec un maximum de la concentration en masse des aérosols aux alentours de 1.5 km (transport) puis 500 m (transport lointain). Au niveau du transport lointain, les poussières désertiques (DUST, courbe jaune) deviennent prédominantes, leur présence étant liée à la proximité des sources d'émissions désertiques de l'Afrique de l'Ouest.

L'évolution de la composition chimique des aérosols simulée par la configuration de référence de WRF-Chem, représentée sur la figure 4.18, est en accord avec celle illustrée sur la figure 4.17. Les concentrations massiques des aérosols carbonés du panache d'aérosols de feux de biomasse, le carbone suie (BC, courbes noires) et le carbone organique (OC, courbes marrons), diminuent petit à petit. Celles des sels marins (SEAS, courbes bleues) et des poussières désertiques (DUST, courbes jaunes) augmentent progressivement entre les zones sources d'émissions et le transport du panache d'aérosols de feux de biomasse à longue distance au large des côtes sud-africaines, ce qui est cohérent.

De l'émission à l'élimination du panache d'aérosols de feux de biomasse, les variations du coefficient d'extinction des aérosols à 550 nm (COEFF\_EXT\_550, courbes rouges en pointillés) semblent peu influencées par la présence de poussières minérales. Par exemple, au niveau du transport lointain du panache d'aérosols de feux de biomasse, le pic de concentration des poussières désertiques situé à 2.5 kilomètres d'altitude environ (courbe jaune) n'est pas associé à une augmentation significative du coefficient d'extinction des aérosols à 550 nm (courbe rouge en pointillés). Cela suggérerait que l'influence des poussières désertiques sur les propriétés optiques des aérosols paraît faible à 550 nm du moins contrairement aux aérosols carbonés (carbone suie et carbone organique) constituant le panache d'aérosols de feux de biomasse. Ce point est discuté dans la section suivante.

### 4.3.3 Absorption des aérosols

À partir de la taille et de la composition chimique des particules, WRF-Chem peut calculer l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA), les valeurs de SSA les plus faibles correspondant aux absorptions des aérosols les plus fortes. La figure 4.19 présente le SSA en ciel clair (en haut) et au-dessus des nuages (en bas) restitué par les algorithmes d'inversion GRASP/AERO-AC (à gauche) et simulé par la configuration de référence de WRF-Chem (à droite) à 565/550 nm, respectivement, en moyenne pour le mois de juillet 2008.

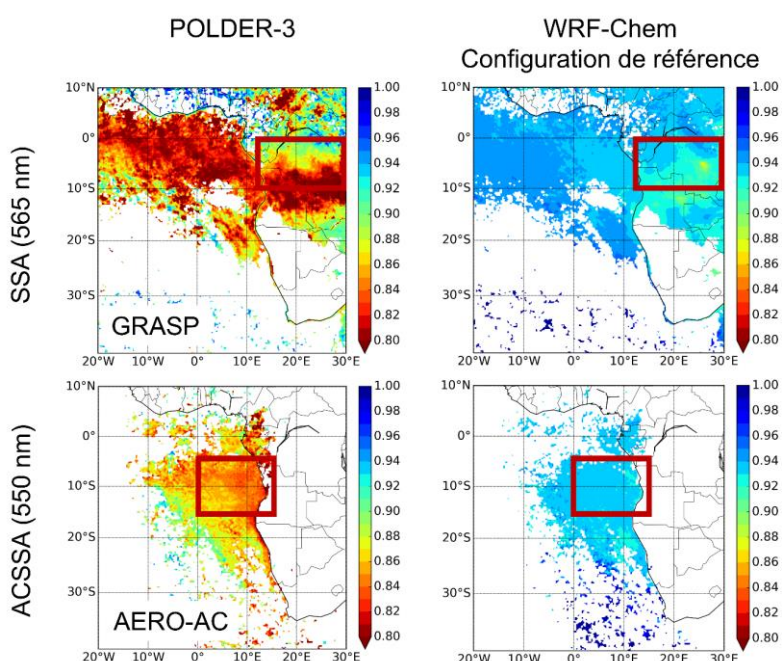


Figure 4.19 : Albédo de simple diffusion des aérosols à 565 nm en ciel clair (SSA, en haut) et à 550 nm au-dessus des nuages (ACSSA, en bas) restitué par POLDER-3 (à gauche) et simulé par la configuration de référence de WRF-Chem (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les cadres rouges de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S) et (0°E-15°E, 15°S-5°S) représentent respectivement les deux régions d'étude, en ciel clair (en haut) et au-dessus des nuages (en bas).

La figure 4.19 montre clairement que les aérosols simulés avec la configuration de référence de WRF-Chem, dans laquelle seul le carbone suie absorbe dans le panache d'aérosols de feux de biomasse, sont trop diffusants avec un écart moyen de l'ordre de 0.08 entre le SSA simulé par la configuration de référence de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3. En effet, dans notre zone d'étude continentale en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S), la valeur moyenne du SSA simulée par la configuration de référence de WRF-Chem est de 0.93 à 565 nm tandis que celle restituée par POLDER-3/GRASP est égale à 0.85 à 565 nm. Dans notre zone d'étude océanique au-dessus des nuages (0°E-15°E, 15°S-5°S), la valeur moyenne du SSA simulée par la

configuration de référence de WRF-Chem est de 0.93 à 550 nm, donc bien supérieure à la valeur de 0.85 à 550 nm restituée par POLDER-3/AERO-AC.

Pour expliquer cet écart, quatre hypothèses peuvent être émises :

- il n'y aurait pas assez de quantité de carbone suie dans les aérosols de feux de biomasse simulés par la configuration de référence de WRF-Chem ;
- il y aurait trop d'aérosols organiques diffusants dans les aérosols de feux de biomasse simulés par la configuration de référence de WRF-Chem ;
- l'indice de réfraction du carbone suie utilisé dans la configuration de référence de WRF-Chem ne serait pas assez réaliste ;
- il y aurait la présence d'une autre espèce absorbante dans le panache d'aérosols de feux de biomasse, le carbone brun, à prendre en compte dans la configuration de référence de WRF-Chem.

Avant d'explorer ces différentes hypothèses dans le chapitre 5, nous allons nous assurer que la présence des poussières minérales dans le panache d'aérosols de feux de biomasse simulé par la configuration de référence de WRF-Chem n'impacte pas de manière significative l'albédo de simple diffusion des aérosols.

Le but est d'évaluer la possible influence des poussières désertiques dans la région de l'Atlantique Sud-Est et leurs effets sur la dépendance spectrale du SSA des aérosols. Rappelons que les propriétés d'absorption des poussières désertiques sont caractérisées par l'augmentation des valeurs du SSA avec la longueur d'onde croissante de l'ultraviolet au proche infrarouge (voir section 2.3.4). Les résultats des tests réalisés concernant les effets des poussières minérales sur le SSA des aérosols sont reportés sur la figure 4.20.

Nous avons réalisé trois tests de simulations numériques avec WRF-Chem : le premier scénario correspond au schéma d'émissions de poussières désertiques GOCART AFWA initial (configuration de base de WRF-Chem, courbes oranges), le deuxième au même schéma d'émissions de poussières désertiques modifié (configuration de référence de WRF-Chem, courbes bleues), et le troisième à la désactivation des poussières minérales dans WRF-Chem (courbes jaunes).

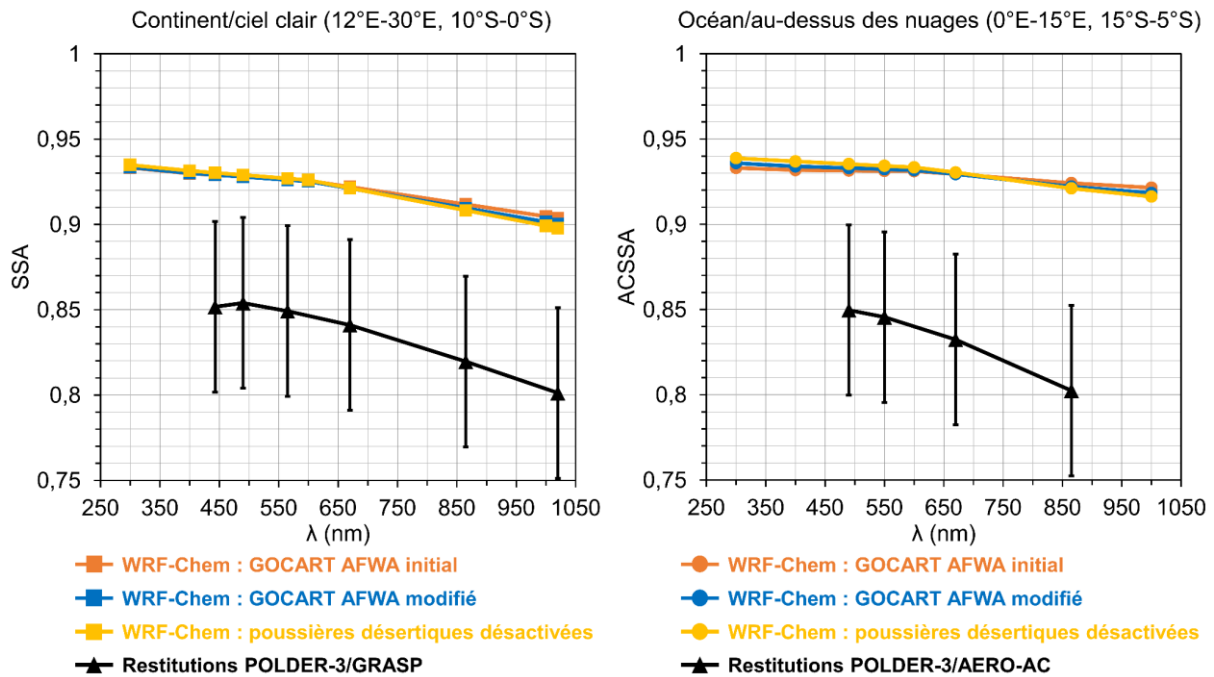


Figure 4.20 : Dépendances spectrales de l'albédo de simple diffusion des aérosols simulées par trois scénarios de WRF-Chem (courbes colorées) et restituées par POLDER-3/GRASP (à gauche, courbe noire) au niveau du continent en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S) et par POLDER-3/AERO-AC (à droite, courbe noire) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental (0°E-15°E, 15°S-5°S), en moyenne pour le mois de juillet 2008. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 0.05$  sur l'albédo de simple diffusion des aérosols sur l'ensemble du domaine spectral. Le premier scénario de WRF-Chem correspond au schéma d'émissions de poussières désertiques GOCART AFWA initial (configuration de base, courbes oranges). Le deuxième scénario de WRF-Chem correspond au schéma d'émissions de poussières désertiques GOCART AFWA modifié (configuration de référence, courbes bleues). Le dernier scénario de WRF-Chem correspond à la suppression des poussières désertiques dans WRF-Chem (courbes jaunes).

La figure 4.20 compare les valeurs spectrales de SSA issues de ces trois simulations tests (courbes colorées) aux restitutions de POLDER-3/GRASP en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S) et de POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (0°E-15°E, 15°S-5°S), en moyenne pour le mois de juillet 2008. La décroissance des valeurs du SSA avec la longueur d'onde croissante du visible au proche infrarouge restituée par POLDER-3 (courbes noires) aussi bien en atmosphère claire (GRASP, à gauche) qu'en atmosphère nuageuse (AERO-AC, à droite) est typique des aérosols du mode fin contenant du carbone suie. Les trois jeux de simulations tests montrent que dans le proche infrarouge (1 000 nm) l'effet des poussières désertiques est très légèrement visible avec une très faible diminution de l'absorption avec l'accroissement de leur concentration : les valeurs du SSA augmentent d'environ 0.002 entre le scénario sans poussières désertiques (courbes jaunes) et la configuration de référence de WRF-Chem (scénario GOCART AFWA modifié, courbes bleues), aussi bien en ciel clair (figure 4.20, à gauche) qu'au-dessus des nuages (figure 4.20, à droite). Dans

l'ultraviolet (300-400 nm), l'absorption marquée des poussières désertiques est absente : les valeurs du SSA diminuent seulement d'environ 0.001 et 0.003 entre la configuration de référence de WRF-Chem (scénario GOCART AFWA modifié, courbes bleues) et le scénario sans poussières désertiques (courbes jaunes), respectivement en ciel clair (figure 4.20, à gauche) et au-dessus des nuages (figure 4.20, à droite). Nous pouvons conclure de ces simulations tests que la présence de poussières minérales dans notre zone d'étude a peu d'influence sur la modélisation du SSA, comme annoncé dans la section précédente, et ne peut expliquer les larges biais observés sur la figure 4.19.

## 4.4 Conclusions

Le chapitre 4, qui constitue la première partie des résultats de cette thèse, a été consacré à la mise en place et à l'analyse générale des performances des simulations numériques d'une configuration de référence de WRF-Chem sur les propriétés microphysiques et optiques des aérosols dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

L'inventaire d'émissions de feux biomasse APIFLAMEv1 de Turquety et al. (2014), utilisé dans WRF-Chem, a d'abord été évalué à travers l'étude de l'épaisseur optique aérosol totale (AOD) en ciel clair, qui rend compte de la quantité d'aérosols sur la colonne atmosphérique et donne également une indication sur l'activité des feux de biomasse. L'étude de ce paramètre optique a montré une sous-estimation importante des émissions d'aérosols de feux de biomasse par la configuration de base de WRF-Chem, pouvant être due à des incertitudes dans l'inventaire de feux de biomasse utilisé. Pour réduire ce biais, un coefficient multiplicatif de 1.5 a été appliqué à l'ensemble des espèces gazeuses et particulaires émises par les brûlis de végétations, ce facteur d'ajustement étant cohérent avec les incertitudes établies sur les facteurs d'émissions dans APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014). Au niveau de l'Afrique du Nord, en particulier sur la zone Sahara/Sahel, les valeurs moyennes de l'AOD simulées par la configuration de base de WRF-Chem étaient fortement surestimées, indiquant une quantité trop importante de poussières minérales soulevée dans ces régions. Le schéma de soulèvement des poussières désertiques GOCART AFWA (Jones et al. 2010, 2012), utilisé dans la configuration de base de WRF-Chem, a été corrigé d'un

facteur 0.5 en suivant les recommandations de l'étude réalisée avec le modèle WRF-Chem de Flaounas et al. (2016) dans la moitié nord de l'Afrique. Ces deux niveaux d'ajustements de la version de base du modèle ont permis la mise en place de la configuration de référence de WRF-Chem.

Une fois la quantité totale des aérosols simulée par la configuration de référence de WRF-Chem et contrainte par celle déduite des observations satellitaires POLDER-3, l'étude s'est portée sur la quantité de particules transportée au-dessus des nuages, à travers l'étude de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages (ACAOD). Les facteurs pouvant influencer ce paramètre optique, comme le calcul de l'altitude du sommet des nuages dans WRF-Chem, la hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse et leur transport à longue distance au large des côtes sud-africaines, ont été analysés et comparés aux observations satellitaires de l'A-Train. Les premiers résultats obtenus sur l'AOD total et l'ACAOD suggèrent que le transport horizontal et vertical des aérosols de feux de biomasse est correctement simulé par la configuration de référence de WRF-Chem dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

Pour finir, l'étude s'est portée sur les propriétés d'absorption des aérosols, via leur albédo de simple diffusion (SSA). Ce paramètre optique dépend à la fois de la taille des particules et de leur composition chimique. Globalement, la taille des particules simulée par la configuration de référence de WRF-Chem s'est révélée réaliste même si quelques désaccords avec les données satellitaires ont été observés au niveau de l'exposant d'Angström, suggérant des particules simulées légèrement plus grosses en taille. Les simulations numériques de WRF-Chem montrent que la composition chimique du panache d'aérosols de feux de biomasse transporté dans la région de l'Atlantique Sud-Est au-dessus des nuages marins est dominée par les aérosols organiques (~58 %) mais présente une quantité assez faible de carbone suie (~2 %). Les comparaisons du SSA simulé par la configuration de référence de WRF-Chem avec celui restitué par POLDER-3 en conditions claires (GRASP) et nuageuses (AERO-AC) ont montré un biais positif important, de l'ordre de 0.08, indiquant une sous-estimation importante de l'absorption des aérosols simulée par la configuration de référence de WRF-Chem. Sur ce point, la présence de poussières désertiques dans notre zone d'étude ne semble pas influencer de manière significative les valeurs simulées du SSA et ne paraît donc pas pouvoir expliquer ces biais.



## 5 Étude des propriétés d'absorption du panache d'aérosols de feux de biomasse

Ce dernier chapitre présente la seconde partie des résultats de cette thèse. Nous allons étudier la sensibilité de l'albédo de simple diffusion à la composition chimique des aérosols, notamment carbonée, à travers la construction d'un ensemble de simulations numériques à la manière d'une table de type LUT. À partir de la configuration de WRF-Chem reproduisant le mieux les dépendances spectrales de l'AOD et du SSA déduites des données satellitaires POLDER-3, nous proposerons une estimation en carbone suie, organique diffusant et carbone brun absorbant constituant le panache d'aérosols de feux de biomasse.

### 5.1 Mise en place des tests de sensibilité

L'estimation de l'albédo de simple diffusion des aérosols est difficile car ce paramètre ne dépend pas seulement de la composition chimique des particules, mais également de leur taille. D'après les résultats obtenus au chapitre précédent, le biais important sur le SSA (surestimation) simulé par la configuration de référence de WRF-Chem serait principalement dû à une mauvaise représentation de l'absorption des aérosols de feux de biomasse dans WRF-Chem.

Plusieurs facteurs peuvent expliquer les difficultés du modèle numérique à simuler correctement les propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse. Nous allons étudier, en particulier, les éléments suivants :

- incertitudes sur le rapport de mélange en aérosols carbonés, à travers le rapport carbone suie (BC) sur carbone organique (OC),  $\frac{BC}{OC}$  ;
- incertitudes sur les valeurs d'indices de réfraction du carbone suie (BC) et du carbone brun (BrOC) ;
- incertitudes sur la présence de carbone brun (BrOC) et sa quantité.

### 5.1.1 Rapport de mélange en aérosols carbonés

Dans la littérature est reportée une gamme de valeurs de rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  pour les panaches d'aérosols de feux de biomasse sur laquelle nous pouvons nous appuyer pour mettre en place nos simulations numériques. Le tableau 5.1 regroupe ces estimations, issues de campagnes aéroportées ou d'inventaires d'émissions correspondant à différents types de végétations brûlées recensées en Afrique : forêts extratropicales, forêts tropicales, savane, prairies et résidus de culture (Bond et al. 2004 ; Liousse et al. 2010 ; Werf et al. 2010 ; Akagi et al. 2011).

| Type de végétation brûlée | Méthode                         | BC/OC                  | Référence                                            |
|---------------------------|---------------------------------|------------------------|------------------------------------------------------|
| Savane africaine          | Mesures aéroportées EXPRESSO    | 0.22-0.24              | Ruellan et al. (1999)                                |
| Biomasse africaine        | Mesures aéroportées SAFARI 2000 | 0.11±0.02<br>0.18±0.06 | Formenti et al. (2003)<br>Kirchstetter et al. (2003) |
| Feux de forêt             | Inventaire d'émission           | 0.08-0.11              | Bond et al. (2004)                                   |
| Savane                    |                                 | 0.14                   |                                                      |
| Résidus de culture        |                                 | 0.21                   |                                                      |
| Biomasse africaine        | Mesures aéroportées DABEX       | 0.12                   | Capes et al. (2008)                                  |
| Biomasse africaine        | Inventaire d'émission           | 0.13-0.14              | Liousse et al. (2010)                                |
| Forêt extratropicale      | Inventaire d'émission           | 0.06                   | Werf et al. (2010)                                   |
| Tourbes                   |                                 | 0.10                   |                                                      |
| Savane et prairies        |                                 | 0.14                   |                                                      |
| Forêt extratropicale      | Inventaire d'émission           | 0.06-0.07              | Akagi et al. (2011)                                  |
| Forêt tropicale           |                                 | 0.11                   |                                                      |
| Savane                    |                                 | 0.14                   |                                                      |
| Résidus de culture        |                                 | 0.33                   |                                                      |

Tableau 5.1 : Valeurs des rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  reportées dans la littérature pour différents types d'aérosols de feux de biomasses africaines.

D'après le tableau 5.1, le rapport de mélange en aérosols carbonés peut être très variable, allant de valeurs comprises entre 0.06 et 0.33 à l'émission (Werf et al. 2010 ; Akagi et al. 2011) jusqu'à 0.11-0.24 au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse (Ruellan et al. 1999 ; Formenti et al. 2003 ; Kirchstetter et al. 2003 ; Capes et al. 2008).

La figure 5.1 présente les rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulés par la configuration de référence de WRF-Chem en surface (à gauche) et intégrés verticalement sur la colonne atmosphérique (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

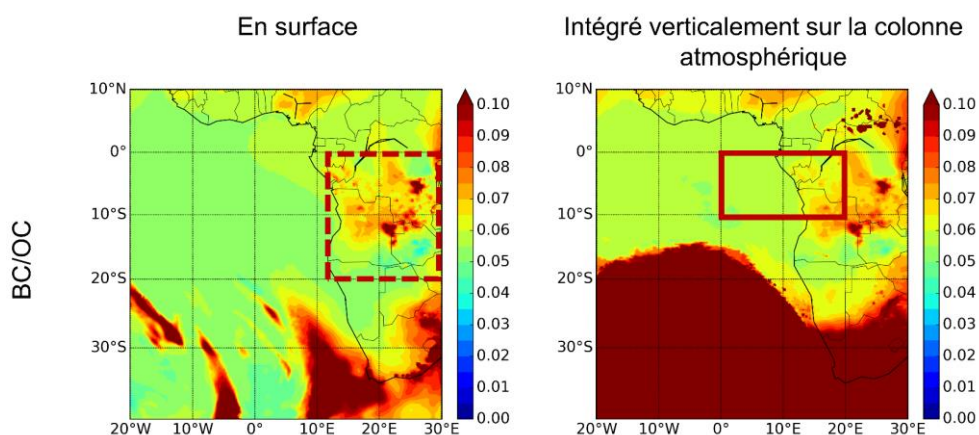


Figure 5.1 : Rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  en surface (à gauche) et intégrés verticalement sur la colonne atmosphérique (à droite) simulés par la configuration de référence de WRF-Chem, en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge en trait discontinu (12°E-30°E, 20°S-0°S), où le rapport de mélange en aérosols carbonés est calculé à la surface, correspond aux sources d'émissions des aérosols de feux de biomasse. Le cadre rouge en trait plein (0°E-20°E, 10°S-0°S), où le rapport de mélange en aérosols carbonés est intégré sur la verticale, prend en compte les émissions et le transport des aérosols de feux de biomasse depuis les zones sources. En-dessous du 15<sup>ème</sup> parallèle sud, l'échelle de couleur saturée est due à une quantité très faible d'aérosols carbonés ( $AOD_{565nm}$  proche de 0, voir figure 4.4), le rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$  n'ayant alors plus de sens physique.

La figure 5.1 montre que les rapports de mélange en aérosols carbonés simulés par la configuration de référence de WRF-Chem varient de 0.04-0.10 près des sources d'émissions à 0.05-0.07 au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse. En comparaison aux valeurs de la littérature reportées dans le tableau 5.1, les valeurs de  $\frac{BC}{OC}$  simulées sont donc dans la gamme de valeurs basses près des sources d'émissions voire inférieures à celles estimées précédemment au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse.

Cette sous-estimation autorise l'ajustement, en entrée du modèle WRF-Chem, des fractions massiques de carbone suie (BC) et de carbone organique primaire (OC) émises au niveau des sources de feux de biomasse en se basant sur les valeurs de la littérature.

### 5.1.2 Indice de réfraction du carbone suie (BC)

Parmi les propriétés physico-chimiques du carbone suie (BC), son indice de réfraction est l'une des plus incertaines car il ne peut pas être observé ou mesuré directement. Il est estimé à partir des mesures d'absorption, de diffusion ou d'extinction du rayonnement solaire par les particules et de leur distribution en taille (Bond et

Bergström 2006 ; Liu et al. 2018). La figure 5.2 met en évidence un grand panel de valeurs estimées de l'indice de réfraction  $m_{BC}(\lambda)$  du carbone suie de l'ultraviolet au proche infrarouge, allant de 1.6-2.0 pour sa partie réelle à 0.45-1.0 pour sa partie imaginaire.

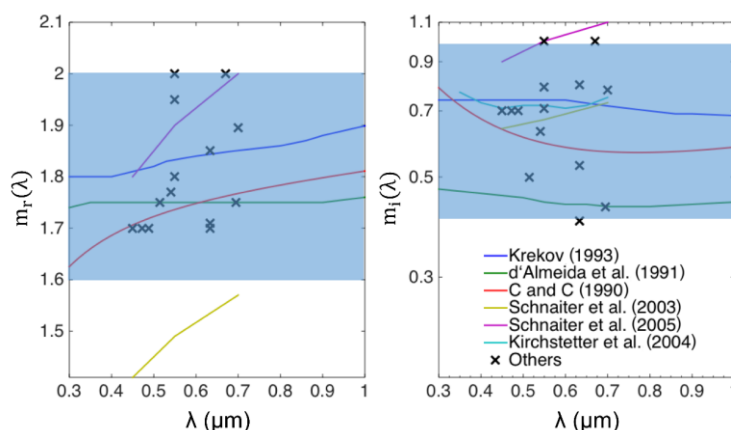


Figure 5.2 : Parties réelles  $m_r(\lambda)$  (à gauche) et imaginaires  $m_i(\lambda)$  (à droite) de l'indice de réfraction  $m_{BC}(\lambda) = m_r(\lambda) - m_i(\lambda)i$  du carbone suie (BC) en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$  sur la gamme spectrale ultraviolet-proche infrarouge estimées à partir des observations. Les zones bleues correspondent respectivement aux plages de valeurs restituées pour la partie réelle et la partie imaginaire de l'indice de réfraction du carbone suie. Adapté de Liu et al. (2018).

Cette variabilité s'explique, par exemple, par la diversité des techniques expérimentales mises en œuvre avec leurs propres incertitudes ou par des prélèvements d'échantillons non parfaitement purs (contaminés par d'autres espèces chimiques) (Bond et Bergström 2006 ; Bond et al. 2013). De plus, la morphologie fractale d'un agrégat de suie, c'est-à-dire composé de longues chaînes carbonées ramifiées, introduit des erreurs dans le calcul de son indice de réfraction par la théorie de Mie qui suppose les particules sphériques (Sorensen, 2001). Les incertitudes sont aussi liées aux conditions de combustion, aux types de combustibles brûlés et au vieillissement du carbone suie (Sorensen, 2001 ; Bond et Bergström 2006).

Il convient de noter qu'aucune observation ne montre un indice de réfraction parfaitement indépendant de la longueur d'onde comme généralement admis dans les modèles de climat (Liu et al. 2018). C'est le cas, par exemple, de celui recommandé par Bond et Bergström (2006) et utilisé en donnée d'entrée dans les modèles de climat :  $m_{BC}(550 \text{ nm}) = 1.95 - 0.79i$ . Il est largement utilisé dans la communauté scientifique. C'est en l'occurrence l'indice de réfraction du carbone suie utilisé par défaut dans WRF-Chem.

Un paramètre optique important traduisant les capacités d'absorption du carbone suie est le  $MAC_{BC}$  (Mass Absorption Cross section) (Bond et Bergström 2006 ; Bond et al. 2013 ; Wu et al. 2018) :

$$MAC_{BC} = \frac{S_{abs}}{M_{BC}} \quad (5.1)$$

$MAC_{BC}$  est la section efficace d'absorption massique d'une particule de carbone suie (unité :  $m^2 \cdot g^{-1}$ ),  $S_{abs}$  sa section efficace d'absorption (unité :  $m^2$ ) et  $M_{BC}$  sa masse (unité : g).

Bond et Bergström (2006) suggèrent une valeur de  $7.5 \pm 1.2 m^2 \cdot g^{-1}$  à 550 nm (moyenne de 17 mesures reportées dans la littérature) pour le  $MAC_{BC,jeune}$  du carbone suie fraîchement émis, c'est-à-dire non vieilli et sans revêtement. Cette quantité préconisée est d'ailleurs soutenue par d'autres études de mesures plus récentes reportées dans le tableau 5.2, qui montrent des valeurs proches et dans la gamme des incertitudes de celle de Bond et Bergström (2006).

| Longueur d'onde (nm) | $MAC_{BC,jeune} (m^2 \cdot g^{-1})$ | Référence           |
|----------------------|-------------------------------------|---------------------|
| 760                  | $7.7 \pm 2.2$                       | Knox et al. (2009)  |
| 532                  | $7.43 \pm 0.5$                      | Cross et al. (2010) |
| 532                  | $7.8 \pm 0.1$                       | Cheng et al. (2016) |

Tableau 5.2 : Valeurs publiées de la section efficace d'absorption en masse,  $MAC_{BC,jeune}$ , associée à l'indice de réfraction du carbone suie (BC) fraîchement émis.

La figure 5.3, issue de Liu et al. (2020), modélise les valeurs du  $MAC_{BC,jeune}$  à 550 nm en fonction de la variation des parties réelles  $m_r$  (en abscisse) et imaginaires  $m_i$  (en ordonnée) des indices de réfraction  $m$  à 550 nm du carbone suie fraîchement émis.

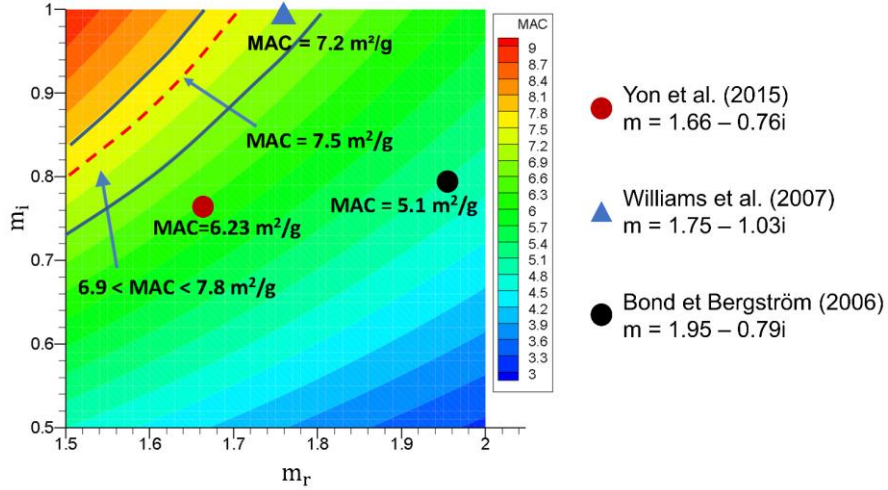


Figure 5.3 : Section efficace d'absorption massique  $MAC_{BC,jeune}$  du carbone suie (BC) fraîchement émis en fonction de son indice de réfraction  $m_{BC} = m_r - m_i i$  à 550 nm. Source : Liu et al. (2020).

La figure 5.3 montre qu'il existe une gamme de valeurs d'indices de réfraction, matérialisée par la courbe rouge en trait discontinu, pouvant reproduire le  $MAC_{BC,jeune}$  communément admis de  $7.5 \pm 1.2 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  à 550 nm. Nous voyons que le  $MAC_{BC,jeune}$  associé à l'indice de réfraction de Bond et Bergström (2006) vaut  $5.1 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  à 550 nm et sous-estime d'environ 30 % la valeur de référence de  $7.5 \pm 1.2 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ . Le  $MAC_{BC,jeune}$  associé à celui de Yon et al. (2015), plus récent, vaut  $6.23 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  à 550 nm correspondant à une sous-estimation d'environ 17 %. Finalement, le  $MAC_{BC,jeune}$  associé à celui de Williams et al. (2007) ( $7.2 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$  à 550 nm) est le plus proche avec une sous-estimation de seulement 4 %, en comparaison à la valeur de référence de Bond et Bergström (2006).

De ce fait, il paraît intéressant de tester cet indice de Williams et al. (2007),  $m_{BC}(550 \text{ nm}) = 1.75 - 1.03i$ , plus absorbant que l'indice de Bond et Bergström (2006), dans le jeu de simulations numériques que nous allons mettre en place (détaillé dans la section 5.2.3).

### 5.1.3 Présence et indice de réfraction du carbone brun (BrOC)

La configuration de référence de WRF-Chem, mise en place dans le chapitre précédent, considère les aérosols organiques primaires et secondaires (OC) comme uniquement diffusants. En plus de tester les deux indices de réfraction du carbone suie (voir section précédente) dans le jeu de simulations numériques que nous allons

mettre en place (décrit dans la section 5.2.3), deux proportions de carbone brun, fraction absorbante des aérosols organiques, vont également être étudiées : 2.5 et 5 % des OC (voir section 3.2.5).

L'intensité et la dépendance spectrale de l'absorption du carbone brun sont encore mal connues à ce jour (Barnard et al. 2008 ; Bahadur et al. 2012 ; Kirchstetter et Thatcher 2012 ; Lack et al. 2012 ; McMeeking et al. 2014 ; Olson et al. 2015). En effet, malgré les preuves de son omniprésence dans l'atmosphère (Arola, 2011 ; Laskin et al. 2015), les tentatives de prise en compte du carbone brun dans les modèles de climat sont relativement rares (Jacobson 2012, 2014 ; Feng et al. 2013 ; Lin et al. 2014 ; Wang et al. 2014 ; Brown et al. 2018). Or, ces quelques études de modélisation ont montré que le forçage radiatif dû au carbone brun peut potentiellement rivaliser avec celui du carbone suie. Considérer le carbone brun dans les aérosols apparaît donc d'une importance capitale pour les estimations des effets radiatifs des aérosols et permettrait de réduire les incertitudes associées. Cependant, la large gamme de valeurs de l'absorption du carbone brun reportée dans la littérature (tableau 5.3), issues de mesures en laboratoire empêche une représentation précise de ce composé dans les modèles de climat (Kirchstetter et al. 2004 ; Alexander et al. 2008 ; Chen et Bond 2010 ; Hoffer et al. 2016, 2017 ; Sumlin et al. 2017).

| $\lambda$ (nm) | Indice de réfraction du carbone brun (BrOC)<br>$m_{\text{BrOC}}(\lambda) = m_r(\lambda) - m_i(\lambda)i$ |              |             |              |              |             | Référence                                                  |
|----------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------|-------------|--------------|--------------|-------------|------------------------------------------------------------|
|                | 350                                                                                                      | 450          | 550         | 650          | 700          | 950         |                                                            |
| $m_r(\lambda)$ | -                                                                                                        | -            | -           | -            | -            | -           | Kirchstetter et al. (2004)                                 |
| $m_i(\lambda)$ | 0.168                                                                                                    | 0.063        | 0.030       | 0.005        | 0.001        | -           |                                                            |
| $m_r(\lambda)$ | 1.57                                                                                                     | 1.64         | 1.67        | 1.71         | 1.72         | 1.76        | Alexander et al. (2008)                                    |
| $m_i(\lambda)$ | 0.33                                                                                                     | 0.30         | 0.27        | 0.25         | 0.24         | 0.19        |                                                            |
| $m_r(\lambda)$ | 1.55                                                                                                     | 1.55         | 1.55        | 1.55         | -            | -           | Chen et Bond (2010)                                        |
| $m_i(\lambda)$ | 0.1000                                                                                                   | 0.0200       | 0.0060      | 0.0001       | -            | -           |                                                            |
| $m_r(\lambda)$ | <b>1.86</b>                                                                                              | <b>1.86</b>  | <b>1.86</b> | <b>1.77</b>  | <b>1.64</b>  | <b>1.61</b> | <b>Hoffer et al. (2016)</b><br><b>Hoffer et al. (2017)</b> |
|                | <b>(370)</b>                                                                                             | <b>(467)</b> |             | <b>(652)</b> | <b>(880)</b> |             |                                                            |
| $m_i(\lambda)$ | <b>0.59</b>                                                                                              | <b>0.34</b>  | <b>0.25</b> | <b>0.18</b>  | <b>0.10</b>  | <b>0.09</b> |                                                            |
|                | <b>(370)</b>                                                                                             | <b>(467)</b> |             | <b>(652)</b> | <b>(880)</b> |             |                                                            |
| $m_r(\lambda)$ | 1.62                                                                                                     | 1.57         | 1.52        | -            | -            | 1.56        | Sumlin et al. (2017)                                       |
|                | (375)                                                                                                    | (405)        | (532)       |              |              | (1047)      |                                                            |
| $m_i(\lambda)$ | 0.014                                                                                                    | 0.007        | 0.003       | -            | -            | 0.002       |                                                            |
|                | (375)                                                                                                    | (405)        | (532)       |              |              | (1047)      |                                                            |

Tableau 5.3 : Valeurs publiées de l'indice de réfraction du carbone brun (BrOC) sur la gamme de longueurs d'onde 350-950 nm à partir de mesures expérimentales en laboratoire.



Le tableau 5.3 nous montre une forte variabilité de la partie imaginaire de l'indice de réfraction et donc de l'intensité de l'absorption du carbone brun en fonction des études. Cependant, leur point commun est l'augmentation de la partie imaginaire  $m_i(\lambda)$  de l'indice de réfraction  $m_{\text{BrOC}}(\lambda)$  pour les courtes longueurs d'onde, avec une absorption maximale dans l'ultraviolet-bleu. Dans les études expérimentales de Alexander et al. (2008) et de Hoffer et al. (2016, 2017), les parties imaginaires de l'indice de réfraction sont les plus fortes sur l'ensemble de la gamme spectrale 350-950 nm en comparaison aux autres études, témoignant d'une forte absorption du carbone brun sur le spectre ultraviolet-proche infrarouge. Bien qu'Alexander et al. (2008) fournissent des valeurs d'indices de réfraction du carbone brun sur toute la gamme spectrale, les travaux de Hoffer et al. (2016, 2017) sont les premiers à proposer une mesure expérimentale directe de l'absorption des particules de carbone brun de l'ultraviolet au proche infrarouge, à l'aide d'un aethalomètre disposant de sept bandes spectrales (370-950 nm). Nous utiliserons donc les valeurs spectrales d'indice de réfraction fournies par Hoffer et al. (2016, 2017), soit  $m_{\text{BrOC}} = 1.86 - 0.25i$  à 550 nm, dans nos simulations numériques lorsque nous intégrerons le carbone brun dans WRF-Chem.

## 5.2 Étude de la dépendance spectrale des propriétés optiques des aérosols

### 5.2.1 Sensibilité à la composition des aérosols de feux de biomasse

#### Domaine temporel

Pour construire notre jeu de simulations numériques, la période simulée correspond à celle de la configuration de référence de WRF-Chem du chapitre 4, juillet 2008, avec les quinze derniers jours de juin correspondant au temps de mise à l'équilibre du modèle (spin-up).

#### Domaine géographique

La zone géographique d'étude considérée, matérialisée par le cadre rouge de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) sur la figure 5.4 rend compte à la fois des émissions des aérosols de feux de biomasse depuis les zones sources et leur transport à longue distance au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental. La figure 5.4 présente



l'épaisseur optique aérosol (en haut) et l'albédo de simple diffusion (en bas) restitués par POLDER-3/GRASP à 565 nm en ciel clair (à gauche) et par POLDER-3/AERO-AC à 550 nm au-dessus des nuages (à droite), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

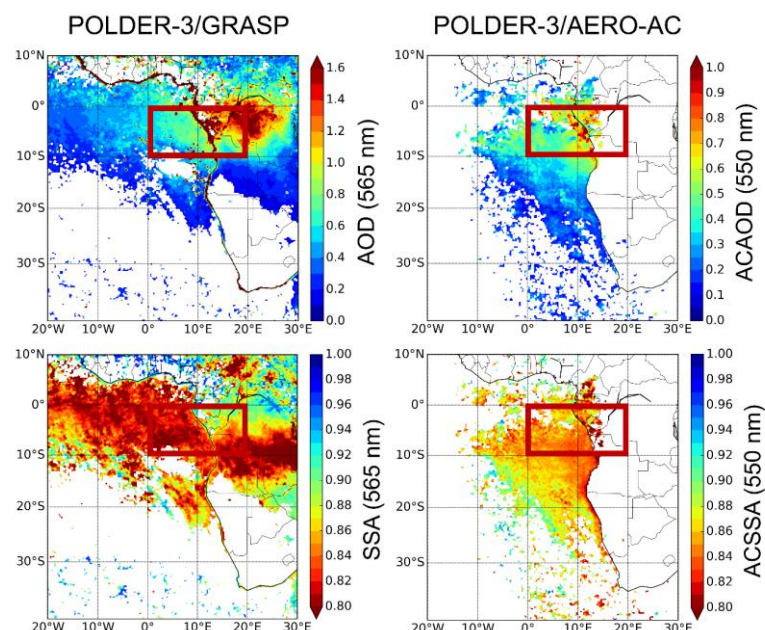


Figure 5.4 : En haut, épaisseur optique aérosol restituée par POLDER-3/GRASP à 565 nm en ciel clair (AOD, à gauche) et par POLDER-3/AERO-AC à 550 nm au-dessus des nuages (ACAOD, à droite). En bas, albédo de simple diffusion des aérosols restitué par POLDER-3/GRASP à 565 nm en ciel clair (SSA, à gauche) et par POLDER-3/AERO-AC à 550 nm au-dessus des nuages (ACSSA, à droite). Les propriétés optiques des aérosols sont moyennées sur le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) indique la zone géographique d'étude.

La figure 5.4 nous confirme que les sources d'émissions des aérosols de feux de biomasse et leur transport au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental, en atmosphère claire et nuageuse, sont importants dans la région considérée et durant la période étudiée. En moyenne sur le mois de juillet 2008 dans la zone d'étude présentée sur la figure 5.4 (cadre rouge), les aérosols sont caractérisés par de fortes valeurs d'épaisseur optique ( $AOD_{obs,565} = 0.94$  et  $ACAOD_{obs,550} = 0.50$ ) et par des valeurs d'albédo de simple diffusion assez faibles traduisant une forte absorption ( $SSA_{obs,565} = 0.82$  et  $ACSSA_{obs,550} = 0.85$ ).

#### Discussion autour des premiers tests de sensibilité de WRF-Chem

Dans une première approche, nous avons testé différents scénarios de proportions relatives de BC et OC, avec ou sans BrOC dans les simulations de WRF-Chem, sans modification de l'indice de réfraction du BC, représenté par celui de Bond et Bergström (2006), par défaut dans WRF-Chem. La figure 5.6 présente les dépendances

spectrales de l'AOD (en haut) et du SSA (en bas) simulées en ciel clair (en trait plein) et au-dessus des nuages (en trait pointillé) par quatre scénarios de WRF-Chem (courbes colorées), dont les caractéristiques sont indiquées dans le tableau 5.4, ainsi que les restitutions de POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC coïncidentes (courbes noires). Les propriétés optiques des aérosols sont moyennées géographiquement dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) (cadre rouge sur la figure 5.4) et temporellement sur le mois de juillet 2008.

| Test de sensibilité de WRF-Chem |                          | BC/OC      |                                                    |
|---------------------------------|--------------------------|------------|----------------------------------------------------|
|                                 |                          | En surface | Intégré verticalement sur la colonne atmosphérique |
| Configuration de référence      | BCx1, OC/1, 0 % de BrOC  | 0.06       | 0.06                                               |
| Test 1                          | BCx10, OC/1, 0 % de BrOC | 0.16       | 0.13                                               |
| Test 2                          | BCx3, OC/10, 0 % de BrOC | 0.21       | 0.16                                               |
| Test 3                          | BCx3, OC/10, 5 % de BrOC | 0.21       | 0.16                                               |

Tableau 5.4 : Rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulés au-dessus du continent africain à la surface (12°E-30°E, 20°S-0°S) et verticalement sur la colonne atmosphérique (0°E-20°E, 10°S-0°S), calculés à partir des concentrations en masse de carbone suie (BC) et carbone organique (OC) pour quatre scénarios de WRF-Chem, en moyenne pour le mois de juillet 2008. À chaque couple de facteurs d'ajustement BC et OC à la source est associée une contribution variable du carbone brun (BrOC) égale à 0 ou 5 %. Pour ces premiers tests de sensibilité, l'indice de réfraction de Bond et Bergström (2006) est utilisé pour le carbone suie.

Nous pouvons noter que pour les quatre scénarios de WRF-Chem présentés dans le tableau 5.4, les rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  sont compris entre 0.06 et 0.21 et restent en bon accord avec les valeurs issues de la littérature et reportées dans le tableau 5.1.

Nous pouvons également remarquer que les valeurs de ces rapports ne sont pas fortement impactées malgré des facteurs d'ajustements parfois très importants (par exemple, BCx10). La figure 5.5 présente les proportions des concentrations massiques (en  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2}$ , intégrées sur la verticale) des aérosols carbonés hydrophobes (BC1 et OC1) et hydrophiles (BC2 et OC2) simulées par la configuration de référence de WRF-Chem (BCx1, OC/1 avec 0 % de BrOC, en bleu) et par le test 1 du tableau 5.4 (BCx10, OC/1 avec 0 % de BrOC, en orange) dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

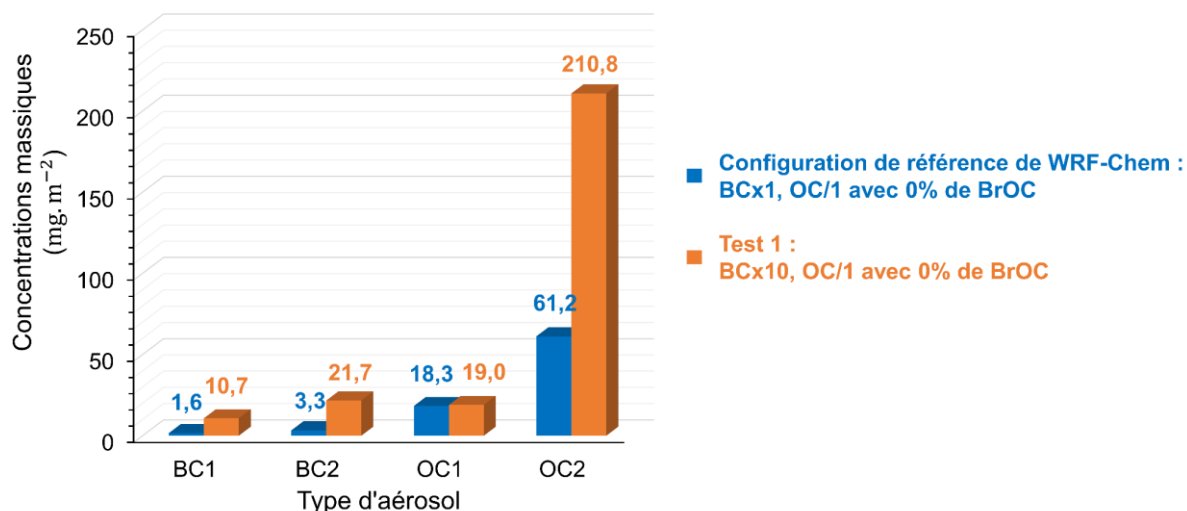


Figure 5.5 : Concentrations en masse (en  $\text{mg} \cdot \text{m}^{-2}$ ) des aérosols carbonés hydrophobes (BC1 et OC1) et hydrophiles (BC2 et OC2), intégrées sur la colonne atmosphérique et simulées par la configuration de référence de WRF-Chem (BCx1, OC/1 avec 0 % de BrOC, en bleu) et par le test 1 du tableau 5.4 (BCx10, OC/1 avec 0 % de BrOC, en orange) dans la zone d'étude de coordonnées ( $0^\circ\text{E}$ - $20^\circ\text{E}$ ,  $10^\circ\text{S}$ - $0^\circ\text{S}$ ), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

La figure 5.5 montre que le fait d'augmenter fortement la concentration de carbone suie vieilli hydrophile augmente le nombre de noyaux de condensation disponibles pour créer de la masse d'aérosols organiques, ce qui entraîne un lissage du rapport de masse  $\frac{\text{BC}}{\text{OC}}$  dans nos tests de sensibilité numériques.

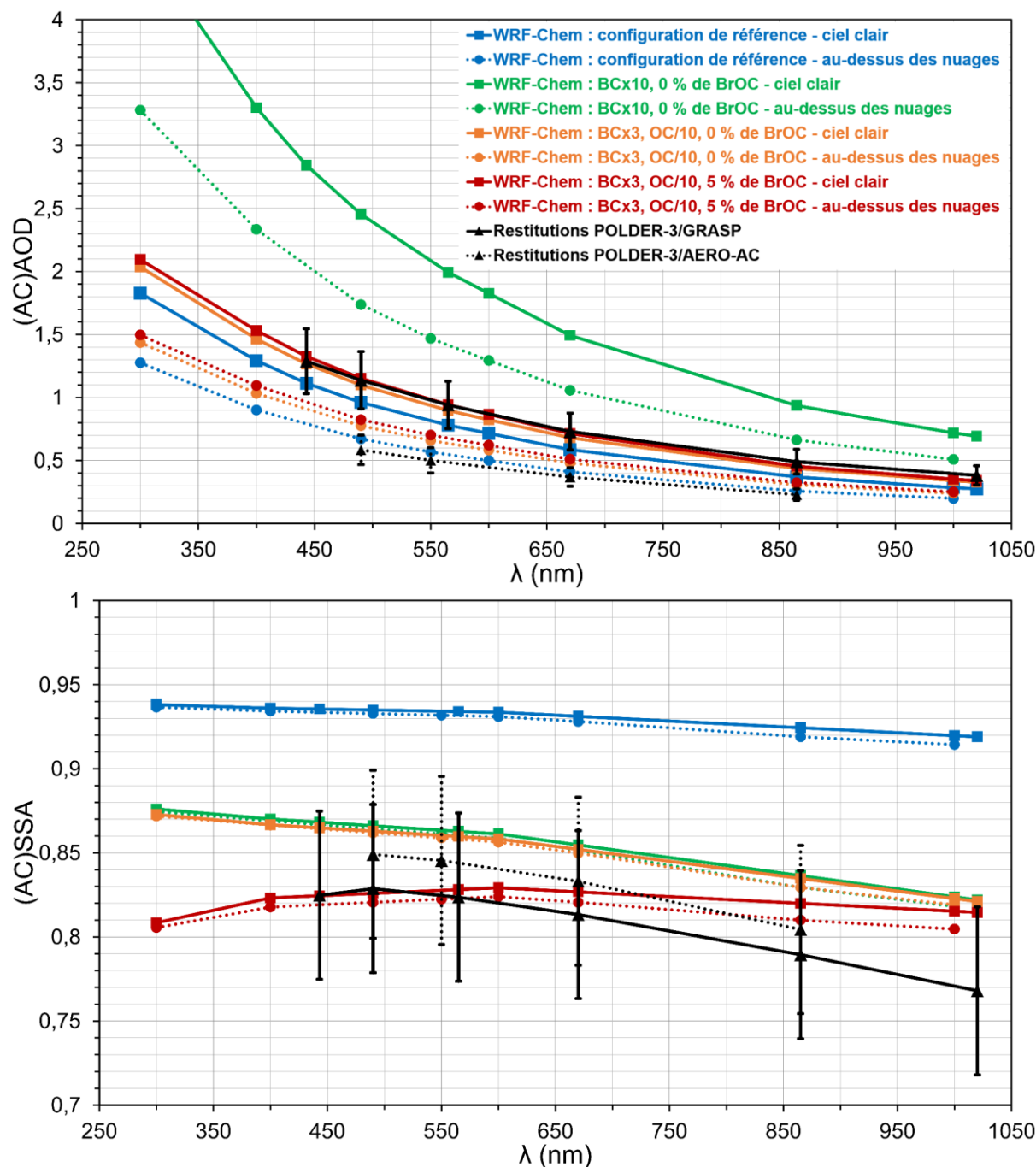


Figure 5.6 : Dépendances spectrales de l'AOD (en haut) et du SSA (en bas) restituées par POLDER-3 (courbes noires) et simulées par quatre scénarios de WRF-Chem (courbes colorées) en ciel clair (trait plein) et au-dessus des nuages (trait en pointillé), moyennées géographiquement dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) et temporellement sur le mois de juillet 2008. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'épaisseur optique aérosol et de  $\pm 0.05$  sur l'albédo de simple diffusion sur l'ensemble du domaine spectral. Les courbes bleues correspondent à la configuration de référence de WRF-Chem. Les courbes vertes correspondent au premier test de sensibilité (BCx10, OC/1 sans BrOC). Les courbes oranges correspondent au deuxième test de sensibilité (BCx3, OC/10, sans BrOC). Les courbes rouges correspondent au troisième test de sensibilité (BCx3, OC/10, avec 5 % de BrOC).

La configuration de référence de WRF-Chem (courbes bleues) présente une décroissance de l'AOD avec la longueur d'onde croissante suggérant une prédominance des aérosols du mode fin, comportement en bon accord avec les

restitutions de POLDER-3 en ciel clair et en ciel nuageux. De plus, les valeurs d'AOD simulées par la configuration de référence de WRF-Chem en atmosphère claire et au-dessus des nuages sont proches de celles observées et sont comprises dans les incertitudes associées aux valeurs d'AOD restituées par POLDER-3 ( $\Delta(AC)AOD_{obs}(\lambda) = \pm 0.20 * (AC)AOD_{obs}(\lambda)$ ). Néanmoins, la figure 5.6 montre que les valeurs de SSA simulées par la configuration de référence de WRF-Chem, où seul le carbone suie absorbe le rayonnement dans le panache d'aérosols de feux de biomasse (courbes bleues), sont en dehors des incertitudes associées aux valeurs de SSA restituées par POLDER-3 ( $\Delta(AC)SSA_{obs}(\lambda) = \pm 0.05$ ). En effet, le biais moyen sur le SSA entre la configuration de référence de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3 est de 0.10 dans le bleu et 0.15 dans le proche infrarouge en ciel clair et de 0.08 dans le bleu et 0.12 dans le proche infrarouge au-dessus des nuages, indiquant une sous-estimation importante de l'absorption des aérosols par la configuration de référence de WRF-Chem.

Dans un premier test de sensibilité, nous avons augmenté significativement la fraction de carbone suie (BC) dans le panache d'aérosols de feux de biomasse en multipliant par un facteur 10 sa masse émise à la source (courbes vertes). La figure 5.6 montre que le biais sur le SSA est alors fortement réduit avec un écart moyen de seulement 0.03 dans le bleu et 0.05 dans le proche infrarouge en ciel clair et de 0.015 dans le bleu et 0.03 dans le proche infrarouge au-dessus des nuages. Ces valeurs de SSA simulées par ce premier test de sensibilité de WRF-Chem sont comprises dans les incertitudes associées aux valeurs de SSA restituées par POLDER-3. Cependant, le contenu des aérosols n'est plus simulé de manière réaliste. En effet, ce scénario de WRF-Chem surestime fortement les valeurs d'AOD restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (biais moyen de 1.70 à 550 nm par exemple) et d'ACAOD restituées par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (biais moyen de 1.05 à 550 nm par exemple), qui sont en dehors des incertitudes associées aux données restituées.

Dans un deuxième test de sensibilité, nous avons augmenté la masse émise de carbone suie (BC) d'un facteur 3 et réduit celle de carbone organique primaire diffusant (OC) par un facteur 10 à la source (courbes oranges). L'avantage de ce scénario de WRF-Chem est de simuler un niveau d'absorption des aérosols similaire au premier test de sensibilité (courbes de SSA oranges et vertes superposées), tout en ayant un

contenu d'aérosols émis réaliste (biais moyen de l'AOD en ciel clair proche de 0 du visible au proche infrarouge). Le contenu des aérosols transportés au-dessus des nuages est toutefois légèrement surestimé par ce scénario avec un biais moyen sur l'ACAOD de l'ordre de 0.2 sur l'ensemble du domaine spectral considéré.

Il est intéressant de remarquer sur la figure 5.6 qu'aux plus courtes longueurs d'onde de POLDER-3/GRASP, les valeurs spectrales du SSA semblent stagner voire légèrement diminuer (0.82-0.83 entre 443 et 490 nm respectivement). Cette tendance demande à être confirmée mais nous constatons qu'elle ne peut pas être reproduite par WRF-Chem en considérant uniquement le carbone suie comme seule espèce absorbante dans le panache d'aérosols de feux de biomasse. Ceci suggérerait la présence d'une autre espèce chimique absorbante ayant des propriétés d'absorption différentes du carbone suie dans cette gamme de longueurs d'onde. Ce composé pourrait être le carbone brun qui possède une absorption importante dans l'ultraviolet-bleu (Kirchstetter et al. 2004 ; Hoffer et al. 2006).

Dans un troisième test de sensibilité, nous avons introduit une fraction de carbone brun (BrOC) dans le panache d'aérosols de feux de biomasse en considérant que 5 % du carbone organique (primaire et secondaire) est absorbant (courbes rouges). Les facteurs d'ajustement de BC et OC à la source sont identiques au deuxième test de sensibilité. Dans ce scénario de WRF-Chem, la figure 5.6 (courbes rouges) montre que l'ajout de carbone brun augmente l'absorption des aérosols dans l'ultraviolet et provoque un point d'inflexion sur la courbe simulée du SSA autour de 500 nm. Nous pouvons également noter que le contenu des aérosols simulé reste sensiblement le même que pour le deuxième test de sensibilité.

### 5.2.2 Analyse des données OMI/OMAERUV coïncidentes

Afin d'évaluer si le point d'inflexion suggéré par les données POLDER-3/GRASP est significatif, nous avons examiné les propriétés des aérosols restituées par le spectromètre OMI avec l'algorithme d'inversion OMAERUV, qui permet d'étendre la gamme spectrale d'observations des aérosols vers l'ultraviolet. OMI/OMAERUV restitue l'épaisseur optique aérosol (AOD) et l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) en ciel clair à 354, 388 et 500 nm (Torres et al. 2007,

2013). La figure 5.7 compare les dépendances spectrales de l'AOD (à gauche) et du SSA (à droite) restituées en atmosphère claire par OMI/OMAERUV (courbes violettes) et par POLDER-3/GRASP (courbes noires). Les valeurs sont moyennées géographiquement dans notre zone d'étude de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) et temporellement sur le mois de juillet 2008.

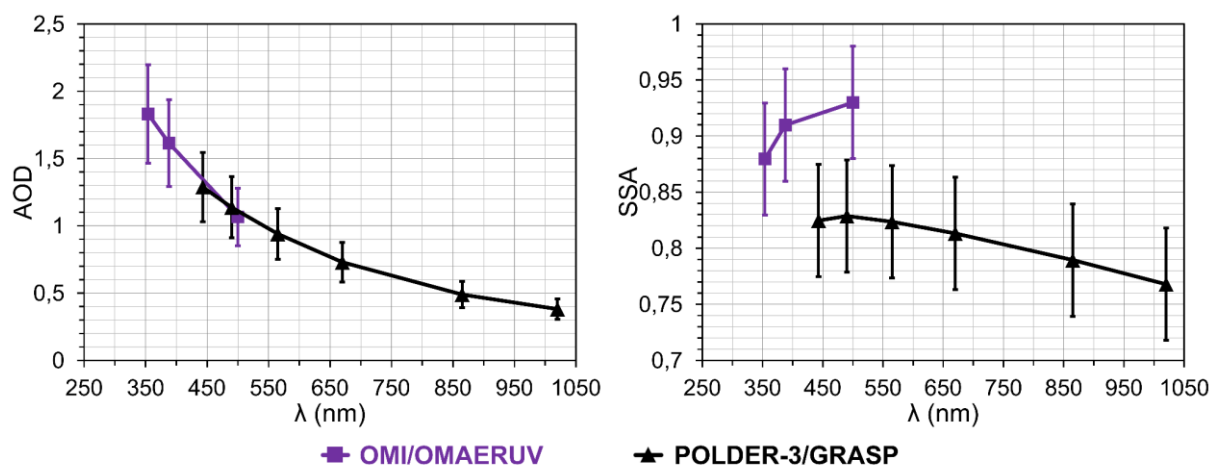


Figure 5.7 : Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol (AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA, à droite) restituées en ciel clair par OMI/OMAERUV (courbes violettes) et par POLDER-3/GRASP (courbes noires), moyennées géographiquement dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) et temporellement sur le mois de juillet 2008. Les barres d'erreurs verticales correspondent aux incertitudes associées aux données OMI (en violet) et POLDER-3 (en noir) avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'épaisseur optique aérosol et de  $\pm 0.05$  sur l'albédo de simple diffusion des aérosols sur l'ensemble du domaine spectral pour chacun des deux algorithmes d'inversion.

Pour l'AOD (à gauche), la figure 5.7 montre un bon accord entre les restitutions de OMI/OMAERUV (courbe violette) et de POLDER-3/GRASP (courbe noire) sur leur bande spectrale commune (443-500 nm). La décroissance observée des valeurs d'AOD avec la longueur d'onde croissante est caractéristique des aérosols du mode fin, notamment des particules de feux de biomasse.

Pour le SSA (à droite), la figure 5.7 met en évidence un désaccord prononcé, avec des valeurs restituées par OMI/OMAERUV (courbe violette) bien supérieures à celles inversées par POLDER-3/GRASP (courbe noire) dans la gamme de longueurs d'onde 443-500 nm, avec un écart moyen sur les valeurs de SSA de l'ordre de 0.1. Ce désaccord peut s'expliquer par une microphysique des particules moins détaillée dans OMI/OMAERUV et par des incertitudes concernant l'altitude des couches d'aérosols ayant un impact sur l'inversion du SSA aux courtes longueurs d'onde (voir section 3.1.5). Cependant, les restitutions de SSA par ces deux algorithmes d'inversion indiquent une absorption des aérosols plus marquée dans l'ultraviolet que dans le



visible, suggérant la présence de carbone brun dans le panache d'aérosols de feux de biomasse.

La figure 5.8 présente l'épaisseur optique aérosol (AOD, à gauche) et l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA, à droite) restitués par OMI/OMAERUV à 354 nm (en haut), 388 nm (au milieu) et 500 nm (en bas), en moyenne pour le mois de juillet 2008.

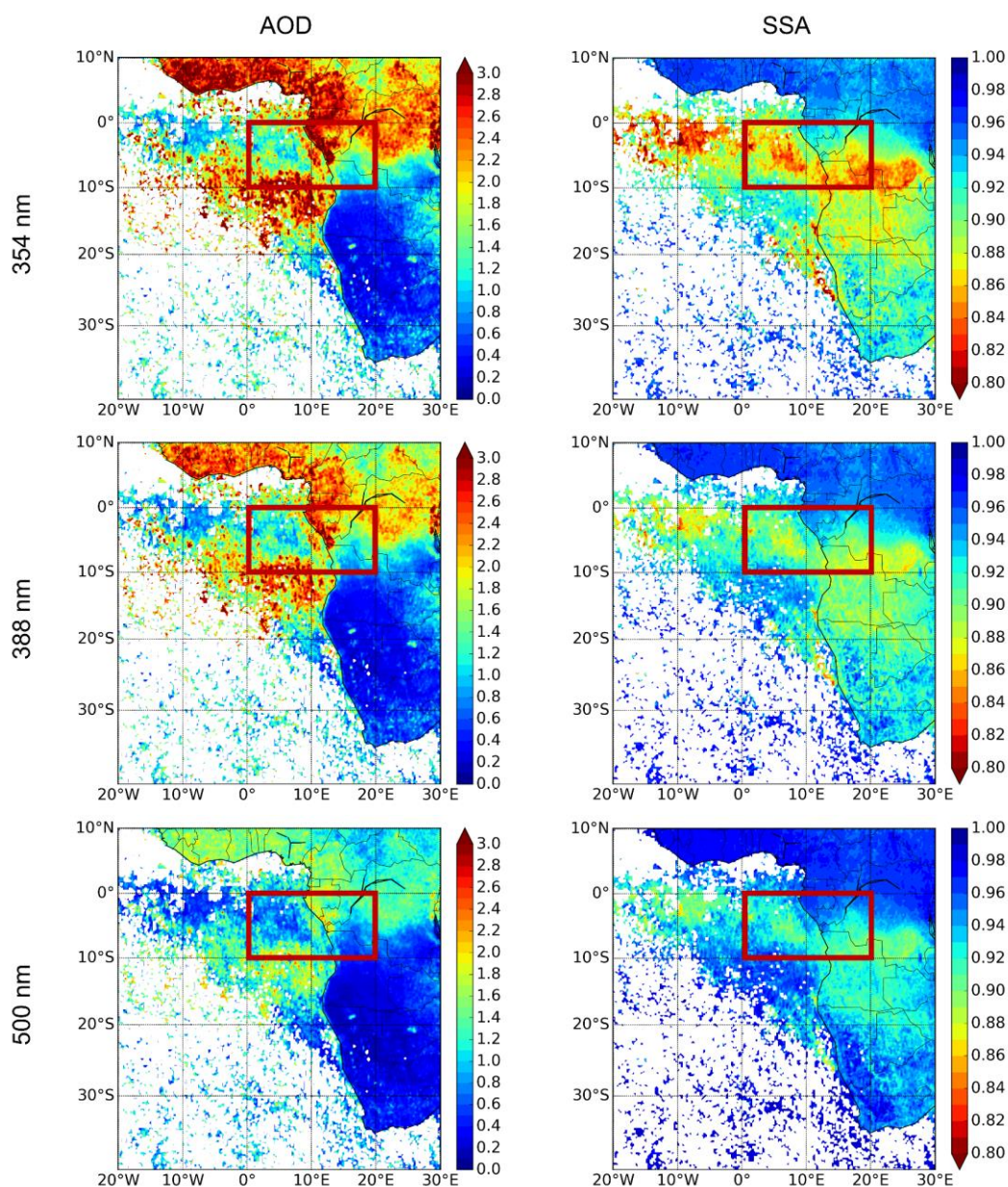


Figure 5.8 : Épaisseur optique aérosol (AOD, à gauche) et albédo de simple diffusion des aérosols (SSA, à droite) restitués par OMI/OMAERUV à 354, 388 et 500 nm (de haut en bas) en ciel clair, en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (0°E-20°E, 10°S-0°S) représente la zone géographique d'étude.



La figure 5.8 nous indique que la tendance observée par le spectromètre OMI sur la figure 5.7 est confirmée en dehors de notre zone d'étude géographique. En effet, même si la valeur absolue de l'AOD varie en fonction de la position, sa dépendance spectrale reste proche de celle observée sur le domaine géographique d'étude avec des valeurs d'AOD qui diminuent avec la longueur d'onde croissante. Également, les valeurs de SSA restituées par OMI/OMAERUV diminuent aux plus courtes longueurs d'onde, suggérant la présence de carbone brun dans le panache d'aérosols de feux de biomasse à l'échelle régionale.

En résumé, ces premiers tests de sensibilité numériques réalisés avec WRF-Chem montrent qu'en modifiant les rapports de mélange en aérosols carbonés,  $\frac{BC}{OC}$ , à la source et la fraction absorbante des aérosols organiques (en incluant une fraction de carbone brun, BrOC), nous pouvons diminuer les biais entre le modèle et les propriétés des aérosols restituées par POLDER-3. Dans la suite, nous allons généraliser ces tests de sensibilité par la mise en place d'un jeu de simulations numériques. L'objectif est d'essayer de déterminer la configuration de WRF-Chem, autrement dit un scénario type de propriétés des aérosols de feux de biomasse, qui reproduise au mieux les propriétés spectrales des aérosols restituées à partir des mesures de POLDER-3 dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

### 5.2.3 Généralisation des tests de sensibilité

L'étape suivante est de généraliser les tests de sensibilité effectués avec WRF-Chem par la construction d'un jeu de simulations numériques à partir d'une part, de différentes proportions de BC, OC et BrOC et d'autre part, de deux niveaux d'absorption du carbone suie, correspondant aux indices de réfraction de Bond et Bergström (2006) et Williams et al. (2007). Nous veillerons à ce que le contenu des aérosols simulé reste réaliste et que le rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$  soit compris dans la gamme de valeurs reportées dans la littérature (tableau 5.1).

#### Domaine temporel

Afin de réduire les coûts numériques, nous ne simulerons que la première quinzaine de juillet 2008 (plus 15 jours de spin-up). La figure 5.9 montre que ces quinze premiers

jours de juillet 2008 semblent représentatifs du mois entier. En effet, cette figure qui présente l'ACAOD (en haut) et l'ACSSA (en bas) restitués par POLDER-3/AERO-AC à 550 nm au-dessus des nuages, et moyennés sur les quinze premiers jours de juillet 2008 (à gauche) et sur le mois entier (à droite), montre des écarts faibles sur ces deux paramètres entre les deux périodes.

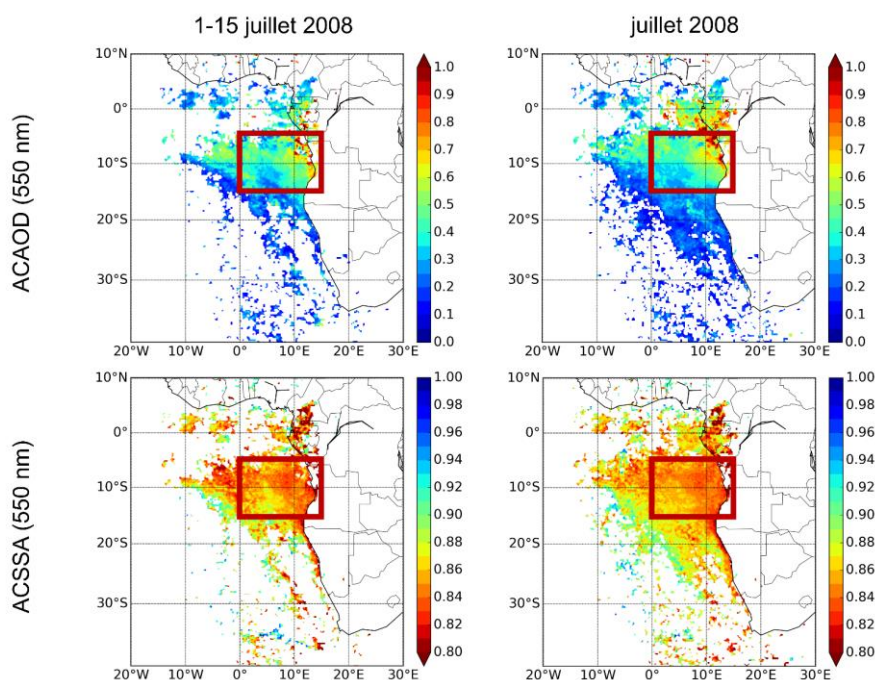


Figure 5.9 : Épaisseur optique aérosol (ACAOD, en haut) et albédo de simple diffusion des aérosols (ACSSA, en bas) restitués par POLDER-3/AERO-AC à 550 nm au-dessus des nuages, en moyenne sur la première quinzaine de juillet 2008 (à gauche) et sur le mois complet (à droite). Le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) indique la zone géographique d'étude correspondant au transport des aérosols de feux de biomasse au-dessus des stratocumulus marins.

En moyenne spatiale sur notre zone d'étude (cadre rouge sur la figure 5.9), l'ACAOD et l'ACSSA à 550 nm sont respectivement égaux à 0.45 et 0.85 sur la première quinzaine de juillet 2008 et à 0.42 et 0.85 sur le mois entier. Ces valeurs confirment bien des quantités importantes en aérosols absorbants transportés au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental durant cette période de l'année.

### Domaine géographique

Contrairement au domaine géographique considéré pour les premiers tests de sensibilité numériques (voir section 5.2.1), la zone d'étude est maintenant séparée en deux secteurs distincts (cadres rouges sur la figure 5.10). La première zone de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S) à gauche de la figure 5.10 correspond aux sources d'émissions des aérosols de feux de biomasse au niveau du continent sud-

africain, et sera analysée en atmosphère claire pour la comparaison avec les données de POLDER-3/GRASP. La seconde zone de coordonnées ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) à droite de la figure 5.10 correspond au transport du panache d'aérosols de feux de biomasse au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental, et sera analysée en atmosphère nuageuse pour la comparaison avec les données de POLDER-3/AERO-AC. Cette distinction a pour but de mieux différencier les divers mécanismes physico-chimiques mis en jeu entre l'émission et le transport des aérosols de feux de biomasse (évolutions de la distribution en taille et de la composition chimique des particules) impactant les propriétés optiques des aérosols. Cette différenciation permet aussi de maximiser le nombre d'observations satellitaires disponibles, comme indiqué sur la figure 5.10 qui présente le nombre de jours d'observations en ciel clair ( $N_{\text{obs,ciel\_clair}}$ , à gauche) et en ciel nuageux ( $N_{\text{obs,ciel\_nuageux}}$ , à droite), en moyenne pour les quinze premiers jours de juillet 2008.

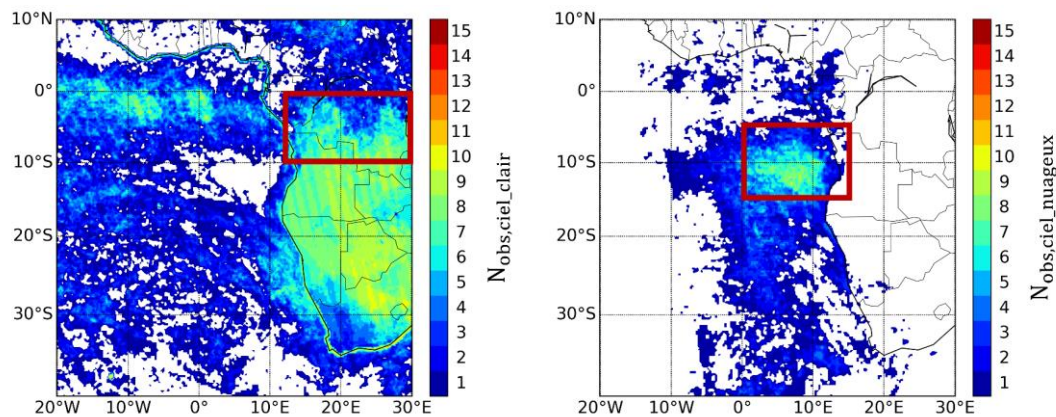


Figure 5.10 : Nombre de journées d'observations en atmosphère claire ( $N_{\text{obs,ciel\_clair}}$ , à gauche) et en atmosphère nuageuse ( $N_{\text{obs,ciel\_nuageux}}$ , à droite) restitué par le polarimètre POLDER-3 en moyenne pour la période 01-15 juillet 2008. Les cadres rouges indiquent respectivement les deux zones d'intérêt pour l'étude des dépendances spectrales des propriétés optiques des aérosols au-dessus du continent sud-africain en ciel clair ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) et au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ).

La figure 5.10 est indicative de l'état du ciel (clair ou nuageux) dans la région de l'Atlantique Sud-Est, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008. Sur cette figure, nous pouvons observer la couche semi-permanente de stratocumulus marins dans la zone géographique de coordonnées ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ), caractérisée par l'absence de données satellitaires en ciel clair (à gauche) et par le plus grand nombre de données satellitaires en ciel nuageux (à droite).

### 5.2.3.1 Premier jeu de simulations numériques

Dans un premier temps, l'indice de réfraction du carbone suie de Bond et Bergström (2006), implémenté par défaut dans WRF-Chem, est utilisé. Au total, 48 simulations numériques sont mises en place, dont les caractéristiques sont indiquées dans le tableau 5.5. Ce tableau regroupe les valeurs des rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulés à l'émission et intégrés sur la verticale pour différentes fractions de mélange de carbone suie (BC) et carbone organique primaire (OC) à la source, avec une contribution variable de carbone brun (BrOC), c'est-à-dire 0, 2.5 et 5 %. Rappelons que le carbone brun correspond à la fraction absorbante de carbone organique primaire et secondaire : 0 % de BrOC signifie que 100 % des OC sont purement diffusants tandis que 5 % de BrOC signifie que 95 % des OC sont purement diffusants, les 5 % restants étant absorbants.

| Test de sensibilité de WRF-Chem |     |               | BC/OC      |                          |                            |
|---------------------------------|-----|---------------|------------|--------------------------|----------------------------|
| BC                              | OC  | BrOC          | En surface | Intégré sur la verticale |                            |
|                                 |     |               |            | Continent/ciel clair     | Océan/au-dessus des nuages |
| x1                              | /1  | 0, 2.5 et 5 % | 0.06       | 0.06                     | 0.06                       |
|                                 | /5  |               | 0.14       | 0.15                     | 0.11                       |
|                                 | /10 |               | 0.17       | 0.19                     | 0.12                       |
|                                 | /15 |               | 0.18       | 0.20                     | 0.13                       |
| x2                              | /1  | 0, 2.5 et 5 % | 0.09       | 0.10                     | 0.08                       |
|                                 | /5  |               | 0.17       | 0.19                     | 0.12                       |
|                                 | /10 |               | 0.19       | 0.22                     | 0.13                       |
|                                 | /15 |               | 0.20       | 0.23                     | 0.13                       |
| x3.5                            | /1  | 0, 2.5 et 5 % | 0.12       | 0.13                     | 0.10                       |
|                                 | /5  |               | 0.19       | 0.21                     | 0.13                       |
|                                 | /10 |               | 0.20       | 0.23                     | 0.14                       |
|                                 | /15 |               | 0.21       | 0.24                     | 0.14                       |
| x4                              | /1  | 0, 2.5 et 5 % | 0.13       | 0.14                     | 0.10                       |
|                                 | /5  |               | 0.19       | 0.22                     | 0.13                       |
|                                 | /10 |               | 0.21       | 0.24                     | 0.14                       |
|                                 | /15 |               | 0.21       | 0.25                     | 0.14                       |

Tableau 5.5 : Rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulés en surface et sur la colonne atmosphérique au niveau du continent sud-africain en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S) et au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse (0°E-15°E, 15°S-5°S), en moyenne sur la première quinzaine de juillet 2008. Ces rapports de mélange en aérosols carbonés sont calculés à partir des concentrations en masse de carbone suie (BC) et carbone organique (OC) pour les 48 tests de sensibilité du premier jeu de simulations numériques. À chaque couple de facteurs d'ajustement BC et OC à la source est associée une contribution variable du carbone brun (BrOC) égale à 0, 2.5 et 5 %.

Les facteurs d'ajustement indiqués dans le tableau 5.5 sont généralement cohérents avec les incertitudes présentes dans l'inventaire d'émissions de feux de biomasse APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014), comme discuté au chapitre 3. Les facteurs de réduction des OC primaires diffusants à la source, 10 et 15, peuvent être considérés en dehors des incertitudes sur les facteurs d'émissions du carbone organique primaire (70 % d'incertitude dans APIFLAMEv1). Ces tests de sensibilité vont néanmoins être expérimentés pour tenter de renforcer l'absorption des aérosols car ils donnent plus de poids à la fraction absorbante de carbone suie. Les rapports de mélange en aérosols carbonés à l'émission pour l'ensemble des cas tests sont compris entre 0.06 et 0.21 et restent dans l'ordre de grandeur de ceux reportés dans la littérature (voir tableau 5.1 au début de ce chapitre). Au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse, comme le montre le tableau 5.5, ces valeurs tendent généralement vers 0.13-0.14, en accord avec les résultats des mesures aéroportées répertoriées dans le tableau 5.1 (Formenti et al. 2003 ; Kirchstetter et al. 2003 ; Capes et al. 2008).

L'analyse complète des résultats du premier jeu de simulations numériques est fournie en Annexe B. Parmi les 48 tests de sensibilité de WRF-Chem, 11 scénarios peuvent être considérés comme des solutions possibles, reportées dans le tableau 5.6, reproduisant les propriétés optiques spectrales de l'AOD et du SSA restituées par POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. Ces onze solutions envisageables de WRF-Chem simulent des valeurs spectrales d'(AC)AOD et d'(AC)SSA qui sont comprises dans les gammes d'incertitudes associées à celles restituées par POLDER-3 ( $\Delta(AC)AOD_{obs}(\lambda) = \pm 0.20 * (AC)AOD_{obs}(\lambda)$  et  $\Delta(AC)SSA_{obs}(\lambda) = \pm 0.05$ ) à la fois en atmosphère claire et nuageuse (voir figures 7.6 et 7.7 de l'Annexe B).

|                                     | Continent/<br>ciel clair |                  | Océan/<br>au-dessus des nuages |                    |       |
|-------------------------------------|--------------------------|------------------|--------------------------------|--------------------|-------|
| Tests de sensibilité<br>de WRF-Chem | AOD( $\lambda$ )         | SSA( $\lambda$ ) | ACAOD( $\lambda$ )             | ACSSA( $\lambda$ ) | Total |
| BCx3.5, OC/5, 0 % de BrOC           | 0.23                     | 0.10             | 0.02                           | 0.11               | 0.47  |
| BCx3.5, OC/5, 2.5 % de BrOC         | 0.30                     | 0.03             | 0.06                           | 0.05               | 0.43  |
| BCx3.5, OC/5, 5 % de BrOC           | 0.47                     | 0.03             | 0.25                           | 0.05               | 0.80  |
| BCx3.5, OC/10, 0 % de BrOC          | 0.19                     | 0.08             | 0.11                           | 0.10               | 0.49  |
| BCx3.5, OC/10, 2.5 % de BrOC        | 0.18                     | 0.01             | 0.02                           | 0.04               | 0.25  |
| BCx3.5, OC/10, 5 % de BrOC          | 0.24                     | 0.07             | 0.05                           | 0.06               | 0.41  |
| BCx3.5, OC/15, 0 % de BrOC          | 0.16                     | 0.07             | 0.15                           | 0.10               | 0.47  |
| BCx3.5, OC/15, 2.5 % de BrOC        | 0.34                     | 0.02             | 0.02                           | 0.04               | 0.42  |
| BCx3.5, OC/15, 5 % de BrOC          | 0.24                     | 0.07             | 0.05                           | 0.06               | 0.42  |
| BCx4, OC/10, 0 % de BrOC            | 0.52                     | 0.05             | 0.21                           | 0.09               | 0.87  |
| BCx4, OC/15, 2.5 % de BrOC          | 0.46                     | 0.04             | 0.16                           | 0.04               | 0.70  |

Tableau 5.6 : Sommes des erreurs absolues moyennes calculées entre les propriétés optiques spectrales des aérosols simulées par les onze solutions possibles du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP au niveau du continent sud-africain en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental (0°E-15°E, 15°S-5°S), du visible au proche infrarouge.

Le tableau 5.6 présente les sommes des erreurs absolues moyennes, calculées entre les onze solutions acceptables de WRF-Chem et POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD( $\lambda$ ) et SSA( $\lambda$ )) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD( $\lambda$ ) et ACSSA( $\lambda$ )), sur l'ensemble des longueurs d'onde disponibles des deux produits d'aérosols. Le total représente l'addition des erreurs absolues moyennes de chaque propriété optique des aérosols (AOD( $\lambda$ )+SSA( $\lambda$ )+ACAOD( $\lambda$ )+ACSSA( $\lambda$ )), la valeur la plus faible correspondant à l'écart le plus petit entre la simulation numérique de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3. Seuls les pixels coïncidents entre les restitutions de POLDER-3 et la modélisation de WRF-Chem (pixels colocalisés spatialement et temporellement) sont pris en compte dans les calculs d'erreurs. Ainsi, le tableau 5.6 montre que seule la combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx3.5, OC/10 avec 2.5 % de BrOC, permet d'approcher aux mieux les restitutions spectrales des propriétés optiques fournies par POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC, respectivement en zones d'émissions et de transport du panache d'aérosols de feux de biomasse. L'erreur absolue moyenne totale associée à ce scénario de WRF-Chem est de seulement 0.25, indiquant un bon niveau de reproduction des propriétés optiques spectrales des aérosols restituées par POLDER-3, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008.



La figure 5.11 présente les dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol (à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols (à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par la meilleure configuration du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem, BCx3.5, OC/10 avec 2.5 % de BrOC (courbe verte), en moyenne pour les quinze premiers jours de juillet 2008.

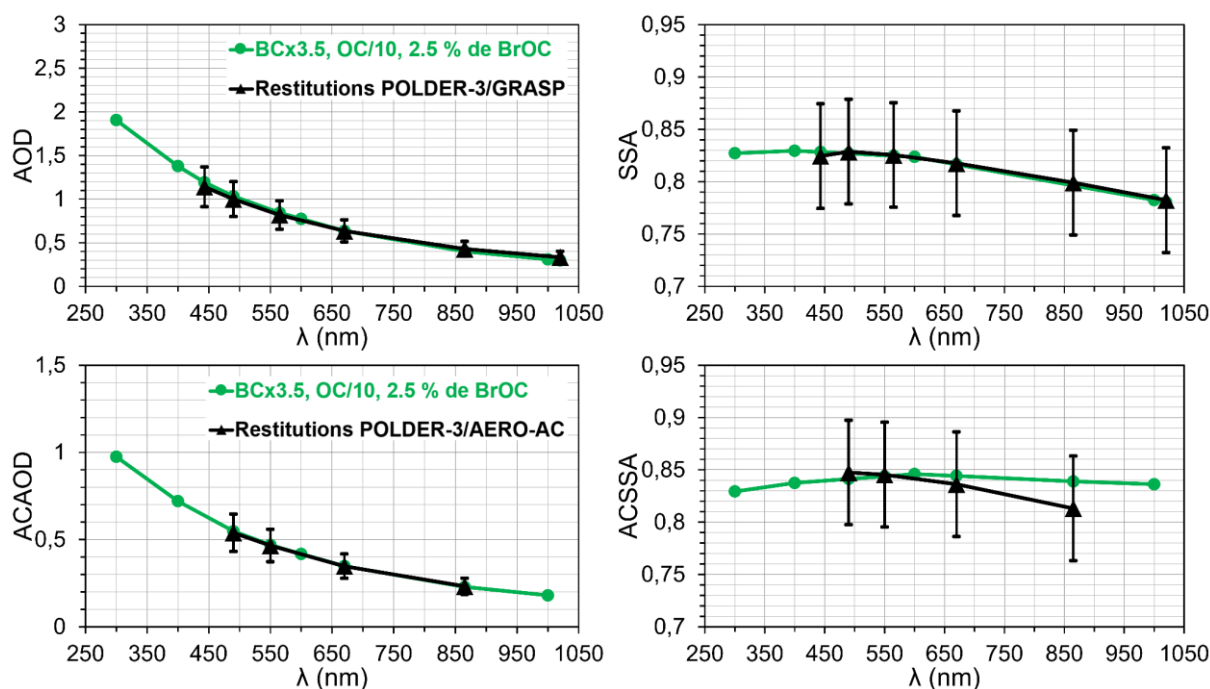


Figure 5.11 : Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol (AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par le meilleur scénario du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem (BCx3.5, OC/10 avec 2.5 % de BrOC, courbe verte). Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec  $\pm 20\%$  sur l'(AC)AOD et  $\pm 0.05$  sur l'(AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) au niveau du continent sud-africain en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

La figure 5.11 montre bien que la combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx3.5, OC/10 avec 2.5 % de BrOC, minimise les écarts entre les propriétés optiques spectrales des aérosols simulées et celles restituées par POLDER-3. En effet, les valeurs d'AOD simulées par ce scénario de WRF-Chem sont quasiment identiques à celles restituées par POLDER-3 aussi bien en ciel clair qu'au-dessus des nuages (biais moyens proches de zéro du visible au proche infrarouge). De même, la courbe du SSA simulée par ce scénario de WRF-Chem est superposée à celle restituée par POLDER-3/GRASP en ciel clair (biais moyens proches de zéro du visible au proche infrarouge). La seule différence se situe au niveau de l'inversion de la pente du SSA : elle est

simulée autour de 300-400 nm par ce scénario de WRF-Chem tandis qu'elle est restituée entre 443 et 490 nm par POLDER-3/GRASP. En revanche, le comportement spectral de l'ACSSA simulé par ce scénario de WRF-Chem est légèrement différent de celui restitué par POLDER-3/AERO-AC, notamment dans le proche infrarouge où la diminution de l'ACSSA est plus marquée dans les restitutions de POLDER-3/AERO-AC. Le biais positif de 0.03 à 865 nm sur l'ACSSA pourrait s'expliquer par des particules simulées au-dessus des nuages marins de l'océan Atlantique sud-oriental plus grosses en taille que celles observées par POLDER-3 (voir section 4.3.1). Par conséquent, la diffusion du rayonnement solaire et tellurique par ces particules serait favorisée dans le proche infrarouge par cet effet de taille (augmentation des valeurs de SSA).

Néanmoins, le niveau de carbone organique primaire (OC) a été réduit de façon considérable dans cette combinaison de mélange, d'un facteur 10 au niveau des sources d'émissions de feux de biomasse, en désaccord avec les incertitudes annoncées par Turquety et al. (2014) dans l'inventaire d'émissions APIFLAMEv1. Ce résultat montre que d'autres combinaisons BC, OC et BrOC doivent être testées, notamment en ajustant le niveau d'absorption du carbone suie (BC), afin d'évaluer si d'autres scénarios de WRF-Chem sont possibles pour fournir des résultats cohérents, équivalents ou améliorés, avec les restitutions de POLDER-3.

#### 5.2.3.2 Second jeu de simulations numériques

Le second jeu de simulations numériques, construit à partir de l'analyse des résultats du premier jeu de simulations numériques (voir Annexe B), comprend un total de 45 tests de sensibilité détaillés dans le tableau 5.7. Ici, l'indice de réfraction du carbone suie considéré est celui de Williams et al. (2007) afin d'augmenter son niveau d'absorption. Constatant un écart assez important entre les cas tests  $\frac{OC}{1}$  et  $\frac{OC}{5}$  au niveau du contenu des aérosols et de leur absorption (voir Annexe B), le cas test intermédiaire  $\frac{OC}{2.5}$  est ajouté. Également, le facteur d'ajustement du carbone suie (BC) a été affiné en rajoutant BCx2.5.



| Test de sensibilité de WRF-Chem |      |               | BC/OC      |                          |                            |
|---------------------------------|------|---------------|------------|--------------------------|----------------------------|
| BC                              | OC   | BrOC          | En surface | Intégré sur la verticale |                            |
|                                 |      |               |            | Continent/ciel clair     | Océan/au-dessus des nuages |
| x2                              | /1   |               | 0.09       | 0.10                     | 0.08                       |
|                                 | /2.5 |               | 0.14       | 0.15                     | 0.11                       |
|                                 | /5   | 0, 2.5 et 5 % | 0.17       | 0.19                     | 0.12                       |
|                                 | /10  |               | 0.19       | 0.22                     | 0.13                       |
|                                 | /15  |               | 0.20       | 0.23                     | 0.13                       |
| x2.5                            | /1   |               | 0.10       | 0.11                     | 0.09                       |
|                                 | /2.5 |               | 0.15       | 0.16                     | 0.11                       |
|                                 | /5   | 0, 2.5 et 5 % | 0.18       | 0.20                     | 0.13                       |
|                                 | /10  |               | 0.20       | 0.22                     | 0.13                       |
|                                 | /15  |               | 0.21       | 0.24                     | 0.14                       |
| x3                              | /1   |               | 0.11       | 0.12                     | 0.09                       |
|                                 | /2.5 |               | 0.16       | 0.17                     | 0.12                       |
|                                 | /5   | 0, 2.5 et 5 % | 0.19       | 0.21                     | 0.13                       |
|                                 | /10  |               | 0.20       | 0.23                     | 0.13                       |
|                                 | /15  |               | 0.21       | 0.24                     | 0.14                       |

Tableau 5.7 : Rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulés en surface et sur la colonne atmosphérique au niveau du continent sud-africain en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S) et au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse (0°E-15°E, 15°S-5°S), en moyenne sur la première quinzaine de juillet 2008. Ces rapports de mélange en aérosols carbonés sont calculés à partir des concentrations en masse de carbone suie (BC) et carbone organique (OC) pour les 45 tests de sensibilité du second jeu de simulations numériques. À chaque couple de facteurs d'ajustement BC et OC à la source est associée une contribution variable du carbone brun (BrOC) égale à 0, 2.5 et 5 %.

Comme pour le premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem, les facteurs d'ajustement des tests de sensibilité du second jeu indiqués dans le tableau 5.7 sont cohérents avec les incertitudes présentes dans l'inventaire de feux de biomasse APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014), excepté pour les cas tests OC/10 et OC/15. De plus, le tableau 5.7 montre que les rapports de masse  $\frac{BC}{OC}$  à l'émission sont compris entre 0.09 et 0.21 et restent donc dans l'ordre de grandeur de ceux reportés dans la littérature (voir tableau 5.1 au début de ce chapitre). Au cours du transport du panache d'aérosols de feux de biomasse, les rapports de mélange en aérosols carbonés tendent majoritairement vers 0.13-0.14, et restent donc en accord avec les résultats des mesures aéroportées recensées dans le tableau 5.1 (Formenti et al. 2003 ; Kirchstetter et al. 2003 ; Capes et al. 2008).

L'analyse complète des résultats du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem est fournie en Annexe C. Elle s'appuie également sur des analyses statistiques

basées sur des scores de comparaisons entre WRF-Chem et POLDER-3 pour l'ensemble des produits AOD, ACAOD, SSA et ACSSA (voir figures 7.8, 7.9 et 7.10 et tableaux 7.1 et 7.2). Parmi les 45 tests de sensibilité de WRF-Chem, deux scénarios réalistes sont considérés comme solutions du second jeu de simulations numériques. La première combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, simule statistiquement le mieux les valeurs spectrales de l'AOD et du SSA restituées par POLDER-3/GRASP au-dessus du continent sud-africain en ciel clair (12°E-30°E, 10°S-0°S). La seconde combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC, simule statistiquement le mieux les valeurs spectrales de l'ACAO et de l'ACSSA restituées par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental (0°E-15°E, 15°S-5°S).

Avec l'indice de réfraction du carbone suie de Williams et al. (2007), nous pouvons donc simuler correctement les restitutions de POLDER-3 tout en conservant une proportion de carbone organique significative ce qui constitue un premier résultat important. Le second résultat important est que nos tables de simulations numériques montrent que les facteurs d'ajustement à appliquer au niveau des sources de feux de biomasse correspondent à une augmentation d'un coefficient 2-2.5 sur la quantité émise de carbone suie (BC) et à une réduction d'un coefficient 2.5 sur la quantité émise de carbone organique primaire (OC). Pour le carbone brun (BrOC), la fraction absorbante des aérosols organiques est comprise entre 0 et 2.5 %.

La figure 5.12 présente l'AOD( $\lambda$ ) (à gauche) et le SSA( $\lambda$ ) (à droite) simulées par les combinaisons de mélange en aérosols carbonés, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC (courbes rouges) et BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC (courbes bleues) issues du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et restituées par POLDER-3/GRASP en atmosphère claire (en haut, courbes noires) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (en bas, courbes noires). Les propriétés optiques des aérosols sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives (cadres rouges de la figure 5.10) et temporellement sur les quinze premiers jours de juillet 2008.

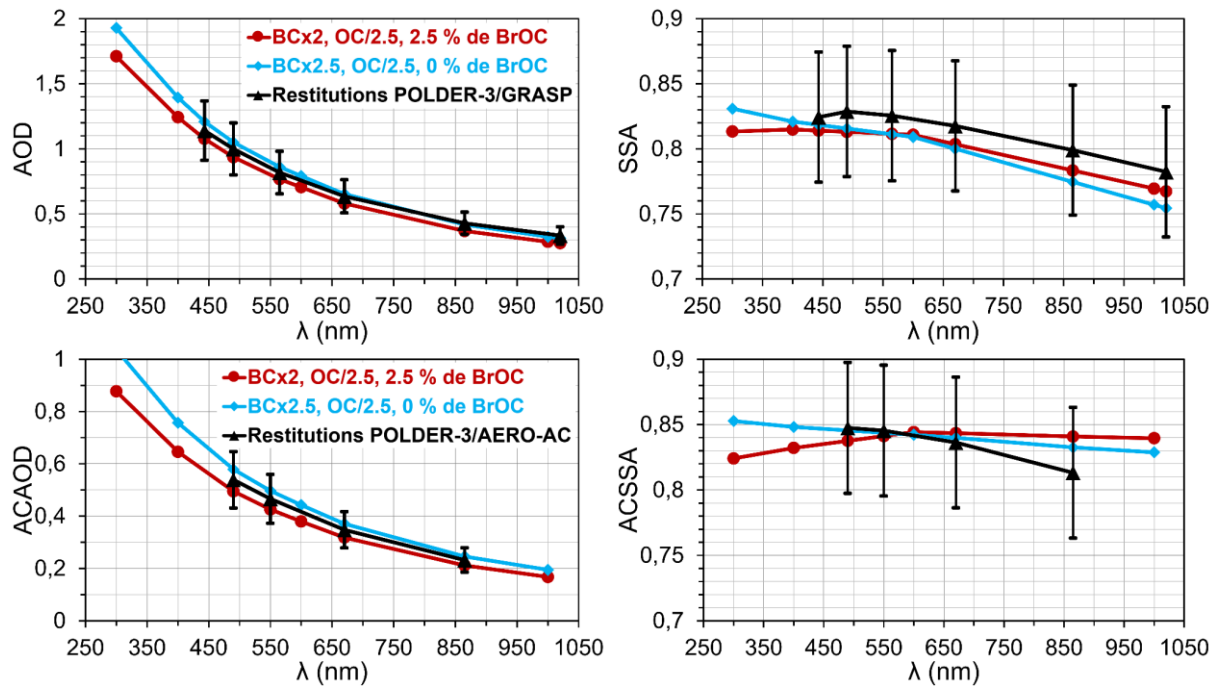


Figure 5.12 : Dépendances spectrales de l'AOD (à gauche) et du SSA (à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (en haut, courbes noires) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (en bas, courbes noires) et simulées par les combinaisons de mélange en aérosols carbonés BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC (courbes rouges) et BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC (courbes bleues) de WRF-Chem. Le premier (en rouge) et le second (en bleu) scénario de WRF-Chem correspondent respectivement à la meilleure combinaison de mélange en aérosols carbonés obtenue en ciel clair et au-dessus des nuages. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'épaisseur optique aérosol et de  $\pm 0.05$  sur l'albédo de simple diffusion des aérosols sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) au niveau du continent sud-africain en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

La figure 5.12 montre un bon accord général entre les deux solutions du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008. Ces deux solutions de WRF-Chem simulent des valeurs spectrales d'(AC)AOD et d'(AC)SSA qui sont comprises dans les gammes d'incertitudes associées à celles restituées par POLDER-3 ( $\Delta(\text{AC})\text{AOD}_{\text{obs}}(\lambda) = \pm 0.20 * (\text{AC})\text{AOD}_{\text{obs}}(\lambda)$  et  $\Delta(\text{AC})\text{SSA}_{\text{obs}}(\lambda) = \pm 0.05$ ) à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages.

Au niveau du continent sud-africain en ciel clair ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ), les valeurs spectrales de l'AOD sont légèrement sous-estimées par le scénario de WRF-Chem, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC (courbe rouge, en haut à gauche), en comparaison avec celles restituées par POLDER-3/GRASP, avec un biais moyen d'environ -0.06 du visible au proche infrarouge. Les valeurs spectrales du SSA sont également faiblement sous-estimées par cette solution de WRF-Chem (courbe rouge, en haut à

droite) avec un biais moyen d'environ -0.02 sur la totalité du spectre traduisant une absorption des aérosols légèrement plus forte que celle restituée par POLDER-3/GRASP. Cet écart se réduit aux plus courtes longueurs d'onde (biais moyen de -0.01 à 443 nm) avec la prise en compte de l'absorption du carbone brun dans ce scénario de WRF-Chem (2.5 % de BrOC). Le scénario de WRF-Chem, BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC (courbe bleue, en haut à gauche), sous-estime légèrement les valeurs spectrales de l'AOD dans le proche infrarouge (biais moyen de -0.02 à 1 020 nm) et les surestime légèrement aux courtes longueurs d'onde (biais moyen de 0.07 à 443 nm). Comme pour la solution BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, les valeurs spectrales du SSA sont également sous-estimées par la solution de WRF-Chem, BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC (courbe bleue, en haut à droite), du visible au proche infrarouge. Cette sous-estimation est plus prononcée dans le proche infrarouge avec un biais moyen d'environ -0.03, en raison d'une quantité de carbone suie plus importante pour ce scénario de WRF-Chem. Aux courtes longueurs d'onde, l'écart entre les valeurs spectrales de SSA simulées par le scénario de WRF-Chem, BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC, et celles restituées par POLDER-3/GRASP est réduit avec un biais moyen de -0.01 à 443 nm. Cependant, l'absence de la contribution de carbone brun dans cette solution (0 % de BrOC) ne permet pas de reproduire le point d'inflexion de la pente du SSA restitué par POLDER-3/GRASP entre 443 et 490 nm. C'est pourquoi, la combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, constitue la meilleure solution obtenue en ciel clair.

Au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental (0°E-15°E, 15°S-5°S), les valeurs spectrales de l'ACAOD sont légèrement sous-estimées par le scénario de WRF-Chem, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC (courbe rouge, en bas à gauche), avec un biais moyen allant de -0.04 à -0.02 de 490 à 865 nm, en comparaison avec celles restituées par POLDER-3/AERO-AC. Elles sont, en revanche, légèrement surestimées par le scénario de WRF-Chem, BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC (courbe bleue, en bas à gauche), avec un biais moyen allant de 0.04 à 0.01 de 490 à 865 nm, en comparaison avec celles restituées par POLDER-3/AERO-AC. Concernant le comportement spectral de l'ACSSA, la solution BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC (courbe bleue, en bas à droite) se démarque de la solution BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC (courbe rouge, en bas à droite) avec une courbe simulée décroissante avec la longueur d'onde croissante, quasiment superposée à celle restituée par POLDER-

3/AERO-AC aux longueurs d'onde les plus courtes (biais moyen proche de zéro de 490 à 670 nm). Pour la solution BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, la courbe spectrale de l'ACSSA croît jusqu'à 600 nm, en raison de la présence de carbone brun dans le panache d'aérosols de feux de biomasse, puis décroît timidement jusqu'au proche infrarouge, avec la longueur d'onde croissante. Il convient de noter que, pour ces deux scénarios de WRF-Chem, un désaccord est visible dans le proche infrarouge où la diminution des valeurs de l'ACSSA est plus marquée dans la restitution de POLDER-3/AERO-AC. Le biais moyen de 0.03 et de 0.02 sur l'ACSSA à 865 nm, respectivement pour les solutions BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC et BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC, pourrait être dû à un effet de grossissement du mode fin avec le vieillissement (voir section 4.3.1). Également, le manque de données supplémentaires dans l'ultraviolet au-dessus des nuages avec POLDER-3/AERO-AC ne permet pas d'évaluer si l'augmentation de l'absorption due au carbone brun simulée avec la solution de WRF-Chem, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, est bien significative. C'est pourquoi, la combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC constitue la meilleure solution obtenue au-dessus des nuages.

En résumé, ces deux solutions issues du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem sont quasiment équivalentes au niveau de la reproduction des propriétés optiques spectrales restituées par POLDER-3. Néanmoins, la combinaison de mélange en aérosols carbonés BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC (courbes rouges sur la figure 5.12) est celle qui a fourni le meilleur score au classement final (voir tableau 7.2 de l'Annexe C). Ceci signifie que ce scénario de WRF-Chem est celui qui simule statistiquement le mieux l'évolution des propriétés optiques du panache d'aérosols de feux de biomasse entre les zones sources continentales sud-africaines et le transport au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental. Dans la suite, nous allons analyser de manière approfondie la combinaison de mélange en aérosols carbonés, BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, qui constitue notre configuration dite optimisée de WRF-Chem.

## 5.3 Analyse de la configuration optimisée de WRF-Chem

### 5.3.1 Sur la période 1-15 juillet 2008

L'ajustement de la chimie de la configuration optimisée de WRF-Chem, BCx2, OC/2.5 avec 2.5% de BrOC, est cohérent avec les incertitudes présentes dans l'inventaire de feux de biomasse APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014), qui sont de l'ordre d'un facteur 2 à 4. Le rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulé par ce scénario optimal de WRF-Chem est estimé à 0.15 au-dessus du continent sud-africain, cette valeur étant caractéristique des feux de type savane majoritairement présents dans la partie sud de l'Afrique (Bond et al. 2004 ; Lioussse et al. 2010 ; Werf et al. 2010 ; Akagi et al. 2011). Au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, le rapport de mélange en aérosols carbonés est égal à 0.11, en accord avec la valeur mesurée de  $0.11 \pm 0.02$  par Formenti et al. (2003) au cours de la campagne aéroportée SAFARI-2000.

L'évolution de la composition chimique des  $PM_{2.5}$ , simulée avec la configuration optimisée de WRF-Chem, entre les zones sources terrestres et le transport des panaches d'aérosols de feux de biomasse au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, est présentée sur la figure 5.13. Les concentrations massiques des aérosols (en  $mg.m^{-2}$ , intégrées verticalement) sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives (cadres rouges sur la figure 5.10) et temporellement sur les quinze premiers jours de juillet 2008.

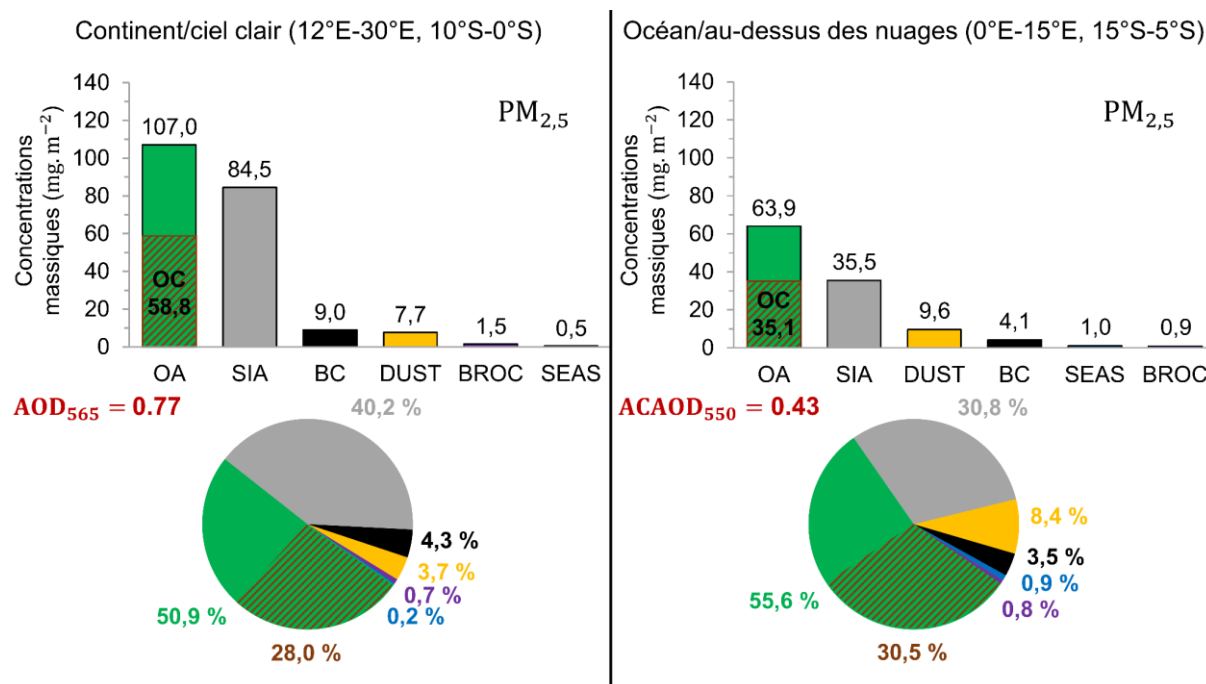


Figure 5.13 : Évolution de la composition chimique des  $PM_{2,5}$  simulée par la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC) depuis les zones sources du continent sud-africain en ciel clair ((12°E-30°E, 10°S-0°S), à gauche) jusqu'au large de l'océan Atlantique sud-oriental au-dessus des nuages ((0°E-15°E, 15°S-5°S), à droite). Les concentrations massiques (en  $mg.m^{-2}$ ) des aérosols organiques (OA, en vert), des aérosols inorganiques secondaires (SIA, en gris), du carbone organique (OC, hachures marron), du carbone suie (BC, en noir), du carbone brun (BROCC, en violet), des poussières désertiques (DUST, en jaune) et des sels marins (SEAS, en bleu) sont intégrées sur la verticale, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008.

La figure 5.13 montre que la composition chimique des  $PM_{2,5}$  simulée par la configuration optimisée de WRF-Chem paraît réaliste avec une domination des aérosols organiques (OA, en vert), à la fois au niveau des zones sources (50.9 % des  $PM_{2,5}$ , à gauche) et en zone de transport (55.6 % des  $PM_{2,5}$ , à droite). Comparativement à la composition chimique des  $PM_{2,5}$  simulée par la configuration de référence de WRF-Chem (voir figure 4.17), la contribution du carbone suie (BC, en noir) dans le panache d'aérosols de feux de biomasse est plus importante dans notre zone d'étude ( $> 3 \%$ ). Celle du carbone organique (OC, hachures marron) est légèrement plus faible : de  $58.8 mg.m^{-2}$  (soit 28.0 % des  $PM_{2,5}$ ) à  $35.1 mg.m^{-2}$  (soit 30.5 % des  $PM_{2,5}$ ) pour la configuration optimisée de WRF-Chem contre  $67.0 mg.m^{-2}$  (soit 31.7 % des  $PM_{2,5}$ ) à  $45.4 mg.m^{-2}$  (soit 32.0 % des  $PM_{2,5}$ ) pour la configuration de référence de WRF-Chem, entre les zones sources et de transport. Comme pour la configuration de référence de WRF-Chem, l'influence des poussières désertiques (DUST, en jaune) augmente au cours de la progression du panache d'aérosols de feux de biomasse au large de l'océan Atlantique sud-oriental avec une masse intégrée verticalement augmentant en moyenne de  $7.7 mg.m^{-2}$  (3.7 % des  $PM_{2,5}$ ) à  $9.6 mg.m^{-2}$

(8.4 % des  $PM_{2,5}$ ). Celle des sels marins (SEAS, en bleu) est négligeable aussi bien au-dessus du continent sud-africain (0.2 % des  $PM_{2,5}$ ), qu'en zone de transport (0.9 % des  $PM_{2,5}$ ). Enfin, la contribution du carbone brun (BROC, en violet) est inférieure à 1 % dans notre zone d'étude.

La figure 5.14 présente l'AOD (en haut) et le SSA (en bas) à 565 nm en ciel clair restitués par POLDER-3/GRASP (à gauche) et simulés avec la configuration optimisée de WRF-Chem (à droite), en moyenne pour les quinze premiers jours de juillet 2008 dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

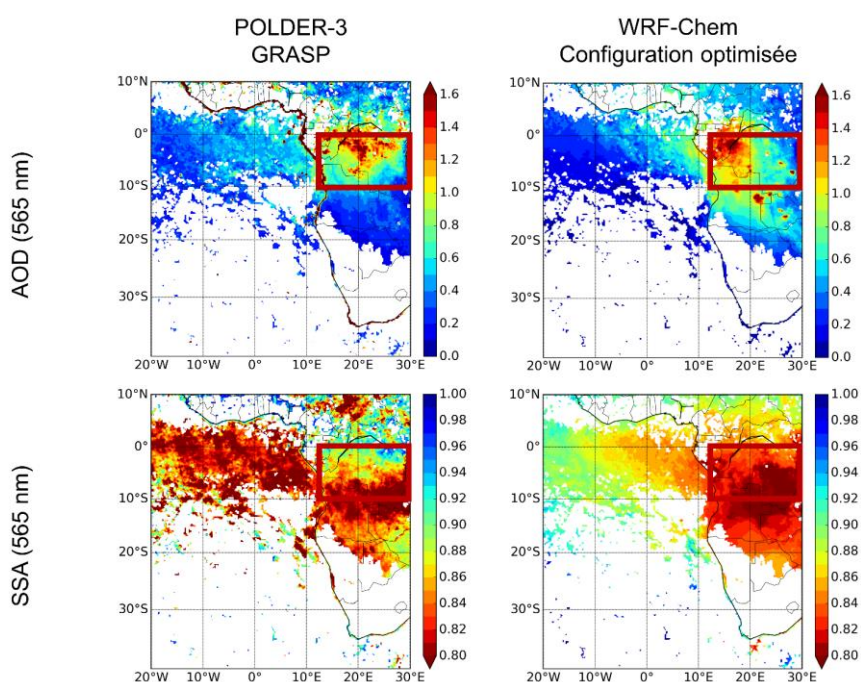


Figure 5.14 : Épaisseur optique aérosol (AOD, en haut) et albédo de simple diffusion des aérosols (SSA, en bas) à 565 nm en ciel clair restitués par POLDER-3/GRASP (à gauche) et simulés avec la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, à droite) dans la région de l'Atlantique Sud-Est, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S) représente la zone d'étude.

Globalement, la figure 5.14 montre que les résultats obtenus avec la configuration optimisée de WRF-Chem en ciel clair sont satisfaisants, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008. Au niveau du continent sud-africain (12°E-30°E, 10°S-0°S), la valeur moyenne de l'AOD simulée à 565 nm est de 0.77 contre  $0.82 \pm 0.16$  pour POLDER-3/GRASP, indiquant une légère sous-estimation de l'intensité des sources d'émissions d'aérosols de feux de biomasse. Leur localisation est également un peu différente avec des sources d'émissions simulées situées plus à l'ouest que celles observées par POLDER-3/GRASP, se traduisant par un coefficient de corrélation spatial de 0.50 et un biais moyen de -0.05 à 565 nm (voir tableau 5.8).



Concernant l'albédo de simple diffusion des aérosols, la valeur moyenne du SSA simulée à 565 nm est de 0.82 contre  $0.83 \pm 0.05$  pour POLDER-3/GRASP montrant un bon accord, bien que l'absorption des aérosols soit très légèrement surestimée par la configuration optimisée de WRF-Chem. La figure 5.14 met également en évidence que l'absorption des aérosols est quasiment uniforme dans la configuration optimisée de WRF-Chem tandis que POLDER-3/GRASP montre des aérosols plus diffusants au nord de la zone de coordonnées ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $5^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ). Une contribution d'autres aérosols, autres que ceux de feux de biomasse, dans cette zone n'est pas à exclure et pourrait expliquer pourquoi POLDER-3 restitue des valeurs de SSA plus hautes que le modèle. Cette différence se traduit par un coefficient de corrélation spatial de 0.59 et un biais moyen de -0.01 à 565 nm (voir tableau 5.8).

Nous pouvons remarquer un grand désaccord entre le SSA simulé par la configuration optimisée de WRF-Chem et celui restitué par POLDER-3/GRASP au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental. En effet, POLDER-3/GRASP restitue en moyenne des valeurs de SSA très basses autour de 0.80 à 565 nm dans cette région, que la configuration optimisée de WRF-Chem n'arrive pas à reproduire. L'effet de revêtement du carbone suie (mélange de type core-shell), non pris en compte dans nos simulations numériques de WRF-Chem mais observé durant les campagnes aéroportées ORACLES (Zuidema et al. 2018) et CLARIFY (Taylor et al. 2020), pourrait expliquer cette grande différence. Il semble être très important sur les panaches d'aérosols de feux de biomasse très vieux transportés au large des côtes sud-africaines (Zuidema et al. 2018 ; Taylor et al. 2020).

| <b>AOD(<math>\lambda</math>)</b>                  |            |            |            |            |            |              |
|---------------------------------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|--------------|
| <b>Longueur d'onde, <math>\lambda</math> (nm)</b> | <b>443</b> | <b>490</b> | <b>565</b> | <b>670</b> | <b>865</b> | <b>1 020</b> |
| Coefficient de corrélation spatial, R             | 0.51       | 0.51       | 0.50       | 0.48       | 0.44       | 0.40         |
| Biais moyen, MB                                   | -0.06      | -0.06      | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.06        |
| Erreur absolue moyenne, MAE                       | 0.43       | 0.39       | 0.34       | 0.29       | 0.24       | 0.22         |
| Erreur quadratique moyenne, RMSE                  | 0.69       | 0.63       | 0.56       | 0.48       | 0.41       | 0.37         |

| <b>SSA(<math>\lambda</math>)</b>                  |            |            |            |            |            |              |
|---------------------------------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|--------------|
| <b>Longueur d'onde, <math>\lambda</math> (nm)</b> | <b>443</b> | <b>490</b> | <b>565</b> | <b>670</b> | <b>865</b> | <b>1 020</b> |
| Coefficient de corrélation spatial, R             | 0.57       | 0.58       | 0.59       | 0.60       | 0.61       | 0.62         |
| Biais moyen, MB                                   | -0.01      | -0.02      | -0.01      | -0.01      | -0.02      | -0.01        |
| Erreur absolue moyenne, MAE                       | 0.04       | 0.04       | 0.04       | 0.05       | 0.06       | 0.07         |
| Erreur quadratique moyenne, RMSE                  | 0.05       | 0.05       | 0.06       | 0.06       | 0.07       | 0.08         |

*Tableau 5.8 : Évaluations statistiques de l'épaisseur optique aérosol, AOD( $\lambda$ ), et de l'albédo de simple diffusion des aérosols, SSA( $\lambda$ ), simulés avec la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC) à partir des restitutions des propriétés optiques spectrales des aérosols par POLDER-3/GRASP en ciel clair, dans la zone d'étude de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S), en moyenne pour les quinze premiers jours de juillet 2008, sur un échantillon de 2 385 pixels coïncidents.*

Le tableau 5.8 présente les principaux estimateurs statistiques utilisés pour l'évaluation des propriétés optiques spectrales des aérosols simulées avec la configuration optimisée de WRF-Chem à partir de celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair, sur l'ensemble des pixels coïncidents de la zone d'étude de coordonnées (12°E-30°E, 10°S-0°S). Ce tableau montre que le comportement spectral de l'AOD est bien reproduit, en moyenne, avec la configuration optimisée de WRF-Chem mais avec une légère sous-estimation de l'ordre de 0.06 du visible au proche infrarouge par rapport aux valeurs spectrales de l'AOD restituées par POLDER-3/GRASP. Cet écart serait principalement dû à une localisation légèrement différente des sources d'émissions d'aérosols de feux de biomasse, en comparaison avec les restitutions de POLDER-3/GRASP (voir figure 5.14). Les erreurs augmentent en allant vers les courtes longueurs d'onde car l'AOD croît avec la longueur d'onde décroissante pour les fines particules de feux de biomasse, accentuant l'écart entre la modélisation et les observations, là où les différences sont les plus prononcées. Le comportement spectral du SSA est, quant à lui, mieux reproduit dans la configuration optimisée de WRF-Chem, notamment en allant vers les plus courtes longueurs d'onde du visible grâce à la prise en compte de la contribution du carbone brun. Le biais moyen, l'erreur absolue moyenne et l'erreur quadratique moyenne sont proches de zéro (-0.01, 0.04 et 0.05, respectivement, à 443 nm) et sont compris dans les gammes d'incertitudes associées aux valeurs de SSA restituées par POLDER/GRASP.

La figure 5.15 présente l'ACAOD (en haut) et l'ACSSA (en bas) au-dessus des nuages à 550 nm restitués par POLDER-3/AERO-AC (à gauche) et simulés avec la configuration optimisée de WRF-Chem (à droite), en moyenne pour les quinze premiers jours de juillet 2008 dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

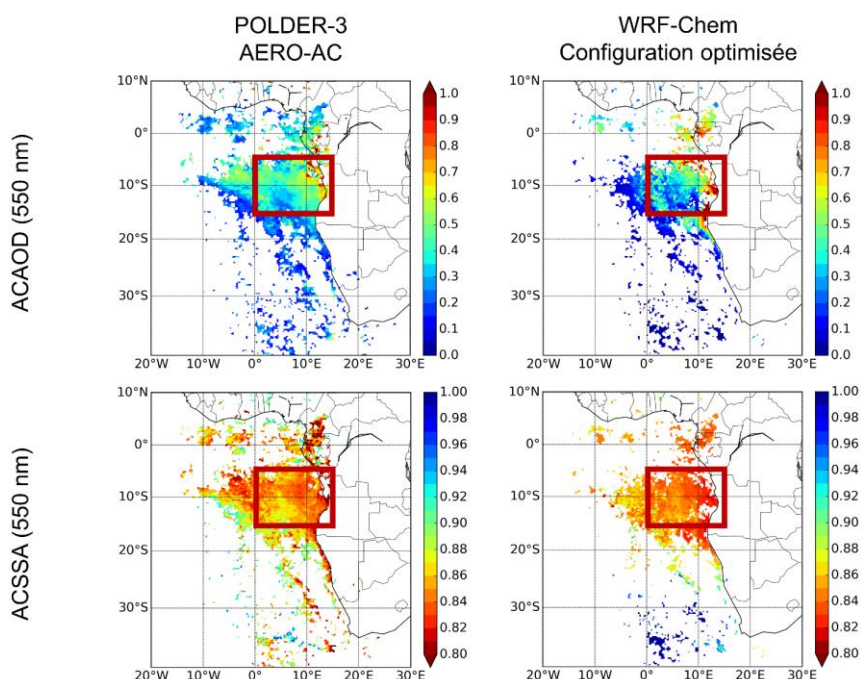


Figure 5.15 : Épaisseur optique aérosol (ACAOD, en haut) et albédo de simple diffusion des aérosols (ACSSA, en bas) au-dessus des nuages à 550 nm restitués par POLDER-3/AERO-AC (à gauche) et simulés avec la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, à droite) dans la région de l'Atlantique Sud-Est, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) représente la zone d'étude.

La figure 5.15 montre un très bon accord entre la configuration optimisée de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3/AERO-AC, tant au niveau de la distribution spatiale moyenne de l'ACAOD que de celle de l'ACSSA à 550 nm. La valeur moyenne de l'ACAOD simulée à 550 nm est de 0.43 contre  $0.47 \pm 0.09$  pour POLDER-3/AERO-AC, indiquant une bonne estimation de la quantité d'aérosols entraînée au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental. Quelques différences mineures peuvent être observées au sein de la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S), se traduisant par un coefficient de corrélation spatial de 0.64 et un biais moyen de -0.04 à 550 nm (voir tableau 5.9).

La valeur moyenne de l'ACSSA simulée à 550 nm est de 0.85 contre  $0.85 \pm 0.05$  pour POLDER-3/AERO-AC, indiquant une bonne prise en compte de l'absorption des aérosols dans la configuration optimisée de WRF-Chem. Quelques minimes disparités sont visibles à l'intérieur de la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S), se

manifestant par un coefficient de corrélation spatial de 0.66, une erreur absolue moyenne de seulement 0.01 et une erreur quadratique moyenne de seulement 0.02 (voir tableau 5.9).

| <b>ACAOD(<math>\lambda</math>)</b>                |            |            |            |            |
|---------------------------------------------------|------------|------------|------------|------------|
| <b>Longueur d'onde (nm), <math>\lambda</math></b> | <b>490</b> | <b>550</b> | <b>670</b> | <b>865</b> |
| Coefficient de corrélation spatial, R             | 0.64       | 0.64       | 0.63       | 0.63       |
| Biais moyen, MB                                   | -0.04      | -0.04      | -0.03      | -0.02      |
| Erreur absolue moyenne, MAE                       | 0.20       | 0.17       | 0.12       | 0.07       |
| Erreur quadratique moyenne, RMSE                  | 0.29       | 0.25       | 0.18       | 0.11       |
| <b>ACSSA(<math>\lambda</math>)</b>                |            |            |            |            |
| <b>Longueur d'onde (nm), <math>\lambda</math></b> | <b>490</b> | <b>550</b> | <b>670</b> | <b>865</b> |
| Coefficient de corrélation spatial, R             | 0.62       | 0.66       | 0.69       | 0.69       |
| Biais moyen, MB                                   | -0.01      | 0.00       | 0.01       | 0.03       |
| Erreur absolue moyenne, MAE                       | 0.02       | 0.01       | 0.02       | 0.03       |
| Erreur quadratique moyenne, RMSE                  | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.04       |

*Tableau 5.9 : Évaluations statistiques de l'épaisseur optique aérosol, ACAOD( $\lambda$ ), et de l'albédo de simple diffusion des aérosols, ACSSA( $\lambda$ ), simulés avec la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC) à partir des restitutions des propriétés optiques spectrales des aérosols par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages, dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S), en moyenne pour les quinze premiers jours de juillet 2008, sur un échantillon de 1 404 pixels coïncidents.*

Le tableau 5.9 présente les principaux estimateurs statistiques utilisés pour l'évaluation des propriétés optiques spectrales des aérosols simulées au-dessus des nuages avec la configuration optimisée de WRF-Chem à partir de celles restituées par POLDER-3/AERO-AC, sur l'ensemble des pixels coïncidents de la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S). Ce tableau statistique montre un bon accord général au niveau de la reproduction des propriétés optiques spectrales des aérosols au-dessus des nuages. Les coefficients de corrélation spatiaux, les biais moyens, les erreurs absolues moyennes et les erreurs quadratiques moyennes sont effectivement proches de zéro du visible au proche infrarouge, aussi bien pour les valeurs spectrales de l'ACAOD que de l'ACSSA.

En résumé, la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC) simule fidèlement les propriétés optiques spectrales des aérosols déduites des mesures de POLDER-3, mais avec quelques petits désaccords au niveau de leur répartition géographique, en moyenne pour la première quinzaine de juillet 2008.

### 5.3.2 Sur la période juillet-septembre 2008

Nous allons maintenant étendre la période d'étude jusqu'au 30 septembre 2008 avec la configuration optimisée de WRF-Chem pour tester son aptitude à représenter le cycle d'absorption observé pendant la saison des feux de l'année 2008. La figure 5.16 présente les évolutions temporelles de l'ACAOD (à gauche) et de l'ACSSA (à droite) restituées par POLDER-3/AERO-AC (courbes en trait plein) et simulées avec la configuration optimisée de WRF-Chem (courbes en pointillés) au-dessus des nuages à 490, 550 et 865 nm (courbes bleues, vertes et rouges, respectivement), au cours du trimestre juillet-août-septembre 2008.

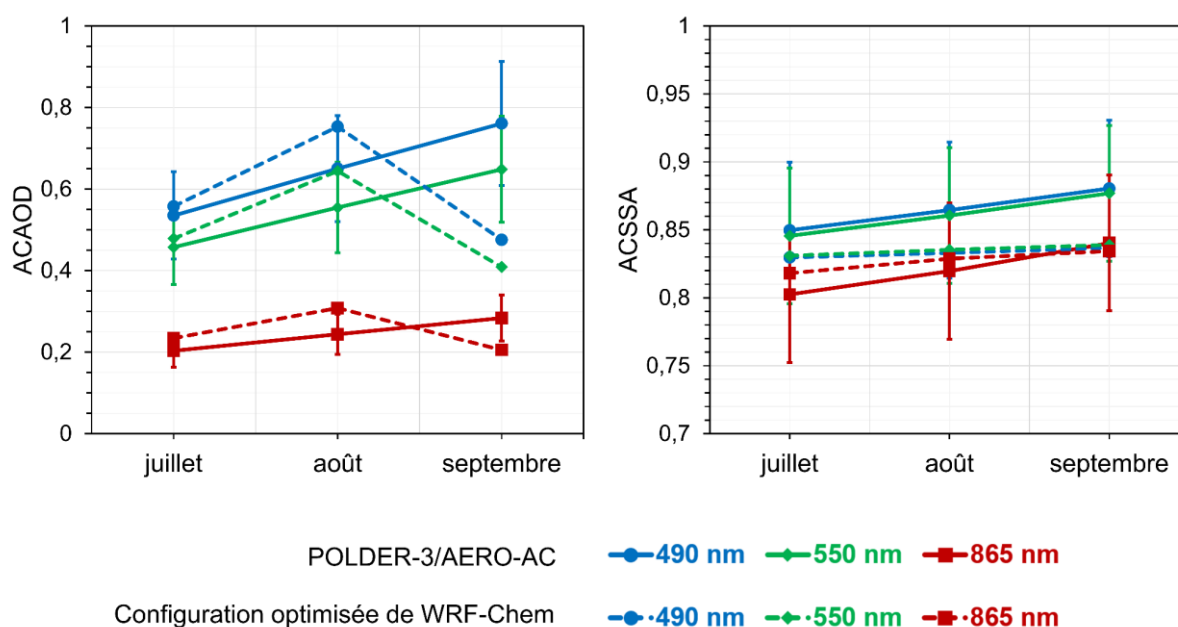


Figure 5.16 : Évolutions temporelles de l'ACAOD (à gauche) et de l'ACSSA (à droite) restituées par POLDER-3/AERO-AC (courbes en trait plein) et simulées avec la configuration optimisée de WRF-Chem (BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC, courbes en pointillés) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental à 490, 550 et 865 nm (courbes bleues, vertes et rouges, respectivement). Les propriétés optiques sont moyennées géographiquement dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) et mensuellement au cours de la période juillet-septembre 2008. Les barres d'erreurs verticales correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 :  $\pm 20\%$  sur l'ACAOD et  $\pm 0.05$  sur l'ACSSA sur l'ensemble du domaine spectral.

La figure 5.16 montre que la configuration optimisée de WRF-Chem reproduit en partie du moins l'augmentation de l'ACAOD restituée par POLDER-3/AERO-AC entre les mois de juillet et d'août, mais ne reconstitue pas celle observée entre les mois d'août et de septembre 2008. Pour ce dernier mois, la configuration optimisée de WRF-Chem ne parvient pas à simuler correctement le pic de concentration des aérosols habituellement observé à cette époque de l'année dans la région de l'Atlantique Sud-Est (voir section 3.2.7). En septembre 2008, la configuration optimisée de WRF-Chem

sous-estime la quantité d'aérosols transportée au-dessus des stratocumulus marins avec un biais moyen de -0.24 pour l'ACAOD à 550 nm en comparaison avec POLDER-3/AERO-AC. Cette sous-estimation pourrait être liée à des incertitudes sur l'évolution, au cours de la saison, des émissions de feux dans l'inventaire utilisé (APIFLAMEv1, Turquety et al. 2014). Récemment, une étude de sensibilité numérique a été menée par Pan et al. (2019) en testant six inventaires globaux d'émissions de feux de biomasse (hors APIFLAMEv1) dans le modèle de chimie-transport GEOS-Chem de la NASA. Cette étude de modélisation s'est notamment concentrée au niveau du continent sud-africain en septembre 2008. Les résultats de l'étude ont montré une sous-estimation de l'AOD simulée au-dessus des terres pour ces six inventaires, avec un biais maximal de 0.23 par rapport aux données MODIS-Aqua à 550 nm et d'au moins 50 % par rapport aux données du site AERONET de Mongu en Zambie. Cet écart entre la modélisation et les observations n'a pas pu être expliqué par des conditions synoptiques différentes car la météorologie et les mécanismes des aérosols (transport et élimination) étaient identiques pour les six expériences numériques. Les auteurs de cette étude suggèrent donc de revoir à la hausse les estimations des quantités émises d'aérosols de feux de biomasse, notamment en mettant à jour les facteurs d'émissions en fonction de la saison et des conditions d'activités des feux.

Au niveau de l'ACSSA, la figure 5.16 montre que la configuration optimisée de WRF-Chem peine à représenter de manière très satisfaisante le cycle saisonnier restitué par POLDER-3/AERO-AC, qui est caractérisé par une diminution de l'absorption des aérosols (augmentation des valeurs de l'ACSSA) au cours de l'avancement de la saison des feux (voir section 3.2.7). Ce résultat suggère que la composition chimique du panache d'aérosols de feux de biomasse, notamment carbonée, évolue au cours de la saison sèche, probablement en lien avec un changement dans le type de combustible brûlé et dans les conditions de combustion (Zuidema et al. 2016b ; Pan et al. 2019). Il est donc nécessaire d'étudier mois par mois les propriétés physico-chimiques et optiques des aérosols afin de mieux comprendre et mieux contraindre dans WRF-Chem le cycle d'absorption des aérosols de feux de biomasse dans la région de l'Atlantique Sud-Est.

## 5.4 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons testé l'influence de certains paramètres clés (rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$ , indice de réfraction du carbone suie, ajout de carbone brun) sur les propriétés optiques des aérosols de feux de biomasse simulées par WRF-Chem.

Le premier jeu de simulations numériques réalisé avec l'indice de réfraction du carbone suie de Bond et Bergström (2006),  $m_{BC}(550\text{ nm}) = 1.95 - 0.79i$ , a permis de déterminer une solution capable de reproduire fidèlement les variations spectrales de l'AOD et du SSA restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages. Cependant, cette solution a été exclue à cause de la quantité de carbone organique primaire émise à la source qui doit être considérablement réduite, d'au moins un facteur 10. Ce coefficient réducteur est considéré en dehors des incertitudes présentes dans l'inventaire d'émissions de feux de biomasse APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014).

Le second jeu de simulations numériques obtenu avec l'indice de réfraction du carbone suie de Williams et al. (2007),  $m_{BC}(550\text{ nm}) = 1.75 - 1.03i$ , plus absorbant que celui de Bond et Bergström (2006), apporte de meilleurs résultats. En outre, cet indice de réfraction semble mieux correspondre aux mesures du  $MAC_{BC,jeune}$  associé au carbone suie fraîchement émis. À partir de ce second jeu de simulations numériques, une configuration optimisée de WRF-Chem a été déterminée pour le mois de juillet 2008. Elle correspond à la combinaison de mélange en aérosols carbonés : BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC.

Ce scénario optimisé de WRF-Chem, dont l'ajustement de la chimie est cohérent et réaliste avec les incertitudes présentes dans l'inventaire d'émissions de feux de biomasse APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014), simule statistiquement le mieux à la fois l'AOD et le SSA restitués par POLDER-3 en ciel clair et au-dessus des nuages. L'analyse du cycle d'absorption des aérosols simulé par la configuration optimisée de WRF-Chem sur le trimestre juillet-septembre 2008 a montré des difficultés de la part du modèle à représenter fidèlement celui restitué par POLDER-3/AERO-AC, en particulier pour le mois de septembre 2008. Il convient de noter toutefois que les valeurs simulées de l'ACSSA restent, en moyenne, comprises dans les incertitudes associées aux valeurs de l'ACSSA restituées par POLDER-3/AERO-AC. L'étude des

propriétés optiques spectrales des aérosols a révélé que la composition chimique carbonée du panache d'aérosols de feux de biomasse semble évoluer au cours de la saison des feux avec notamment une diminution de leur absorption. La combinaison de mélange obtenue pour la configuration optimisée de WRF-Chem est donc attendue à être modifiée progressivement pour tenir compte des changements dans le type de combustible brûlé et dans les conditions de combustion. La présence de carbone brun à la source est un résultat important de notre étude.



## 6 Conclusions et perspectives

### 6.1 Synthèse générale

**A**méliorer la représentation des propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse dans le modèle régional de météorologie couplée à la chimie WRF-Chem, au niveau de la région de l'Atlantique Sud-Est, est possible grâce aux contraintes fournies par les observations satellitaires de l'A-Train et par les mesures des différentes campagnes aéroportées réalisées récemment dans cette région du monde. Le travail mené au cours de cette thèse s'est déroulé en deux grandes étapes.

Les performances globales de la configuration initiale de WRF-Chem avec l'inventaire d'émissions de feux de biomasse APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014) ont d'abord été évaluées. L'analyse de l'épaisseur optique aérosol simulée par cette configuration initiale de WRF-Chem a montré une sous-estimation d'un facteur 2 pouvant être lié à un manque de quantités émises d'espèces gazeuses et particulaires par l'inventaire. Un coefficient multiplicatif de 1.5, cohérent avec les incertitudes sur les facteurs d'émissions présentes dans APIFLAMEv1 (Turquety et al. 2014), a été appliqué à l'ensemble des espèces gazeuses et particulaires émises par les brûlis de végétations. Ce facteur d'ajustement s'est révélé être un bon compromis permettant de reproduire de manière satisfaisante, à la fois l'intensité des sources de feux de biomasse au niveau du continent et le transport des couches d'aérosols au-dessus de l'océan Atlantique sud-oriental. Nous avons fait de cette configuration notre référence pour les simulations réalisées avec WRF-Chem. L'examen de l'épaisseur optique aérosol au-dessus des nuages, de la hauteur d'injection des aérosols de feux de biomasse et de l'altitude du sommet des nuages a permis de valider la capacité du modèle dans cette configuration de référence à simuler le transport des aérosols, depuis les zones sources jusqu'au large des côtes sud-africaines, au-dessus des stratocumulus marins. Nous nous sommes ensuite intéressés à l'évaluation des propriétés d'absorption des aérosols en évaluant la capacité du modèle à reproduire l'albédo de simple diffusion des aérosols. La configuration de référence de WRF-Chem associée à des émissions prescrites d'espèces organiques primaires et de suie, et dans laquelle seul le carbone suie absorbe le rayonnement, sous-estime l'absorption des aérosols en comparaison

avec les données satellitaires de POLDER-3, à la fois en atmosphère claire (GRASP) et nuageuse (AERO-AC). Notre analyse a permis de montrer que les biais significatifs observés ne sont pas dus à une mauvaise représentation de la taille des particules dans la configuration de référence de WRF-Chem. La comparaison effectuée entre le coefficient d'Angström simulé et celui restitué par le polarimètre POLDER-3 a permis de valider ce point. La distribution en taille en volume des aérosols simulée par la configuration de référence de WRF-Chem traduit la présence majoritaire de petites particules de feux de biomasse avec un mode fin très marqué, dominé par le carbone suie et les espèces organiques. Également, l'étude de la sensibilité de la dépendance spectrale de l'albédo de simple diffusion à la présence de poussières désertiques, principalement diffusantes dans le visible-proche infrarouge, a montré un impact très limité de ces particules sur les résultats des simulations numériques, ne pouvant donc pas expliquer l'origine du désaccord entre la configuration de référence de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3. Pour étudier la sensibilité de l'albédo de simple diffusion aux propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse, quatre paramètres « clés » ont été testés : 1) la quantité de carbone suie absorbant à la source, 2) la quantité de carbone organique diffusant à la source, 3) la valeur de l'indice de réfraction du carbone suie et 4) la fraction d'organiques absorbants dans les panaches observés d'aérosols de feux de biomasse ou fraction de carbone brun.

Des tests de sensibilité numériques ont été réalisés en modifiant les valeurs de ces quatre paramètres, tout en conservant un rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$  et un contenu en aérosols réaliste. Un premier jeu de simulations numériques a été effectué avec l'indice de réfraction du carbone suie de Bond et Bergström (2006),  $m_{BC}(550\text{ nm}) = 1.95 - 0.79i$ , un indice de référence utilisé dans la communauté des modélisateurs du climat. La comparaison de ces simulations avec les valeurs spectrales de l'AOD et du SSA restituées par POLDER-3 a montré que la modélisation de l'absorption des aérosols est améliorée avec ce premier jeu de simulations numériques, notamment via la prise en compte du carbone brun. Avec ces calculs, le contenu en aérosols organiques primaires doit toutefois être fortement réduit afin de reproduire la charge en aérosols observée. Cette réduction drastique de la masse en aérosols organiques primaires (division par 10) au niveau des sources de feux de biomasse n'est plus réaliste. Un second jeu de simulations numériques a donc été réalisé avec l'indice de réfraction du carbone suie proposé par Williams et al. (2007) :

$m_{BC}(550\text{ nm}) = 1.75 - 1.03i$ . Cette dernière valeur indique une absorption plus forte pour le carbone suie dans le visible, par rapport à celle recommandée par Bond et Bergström (2006). Cette absorption additionnelle permettrait de reproduire de façon plus réaliste le coefficient d'absorption massique du carbone suie fraîchement émis, d'après des études récentes menées en laboratoire. L'analyse de ce second jeu de simulations numériques a permis de mettre au point une configuration optimisée de WRF-Chem permettant de reproduire aux incertitudes de mesures près les observations satellitaires de POLDER-3 disponibles sur notre zone d'étude. Ce travail a été réalisé pour un mois d'étude correspondant à juillet 2008. Cette solution est associée à la combinaison d'un mélange carboné défini par des quantités de carbone suie et d'organiques primaires (à la source), respectivement augmentées par un coefficient deux et réduites par un coefficient deux et demi. Le rapport de masse  $\frac{BC}{OC}$  simulé par ce scénario optimal a été estimé à 0.15 au-dessus du continent et à 0.11 au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental. Ces valeurs sont également en bon accord avec les mesures in-situ effectuées précédemment dans cette région de l'Atlantique Sud-Est, notamment celles de la campagne SAFARI-2000 (Formenti et al. 2003). De plus, la fraction absorbante des aérosols organiques dans le panache d'aérosols de feux de biomasse, c'est-à-dire le carbone brun, a été estimée à hauteur de 2-3 % pour la période étudiée. Cette valeur pourrait varier géographiquement et temporellement. Cette concentration en carbone brun permet en particulier de bien reproduire l'absorption additionnelle observée par POLDER-3 au-dessus des zones sources aux plus courtes longueurs d'onde du visible (données GRASP), ce qui est caractéristique de la présence de carbone brun dans les panaches d'aérosols de feux de biomasse. Cependant, l'absence de données disponibles pour le SSA dans le bleu et l'ultraviolet au-dessus des nuages n'a pas permis de contraindre avec certitude le contenu de carbone brun dans le cas des panaches d'aérosols de feux de biomasse transportés au-dessus des stratocumulus s'étendant au large des côtes namibienne et angolaise. Cette limitation est principalement liée à l'algorithme d'inversion utilisé et pourra être outrepassée dans de futurs travaux.

Ce travail a montré que le modèle régional de météorologie couplée à la chimie WRF-Chem, combiné à des produits aérosols satellitaires innovants POLDER-3, a permis d'estimer de manière satisfaisante, en ciel clair et au-dessus des nuages, le contenu des aérosols et leurs propriétés d'absorption dans la région de l'Atlantique Sud-Est,

en moyenne pour le mois de juillet 2008, comme indiqué sur la figure 6.1. Cette figure présente l'ACAOD (en haut) et l'ACSSA (en bas) restitués par POLDER-3/AERO-AC (à gauche) et simulés avec la configuration initiale (au milieu) et la configuration optimisée (à droite) de WRF-Chem, à 550 nm au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental.

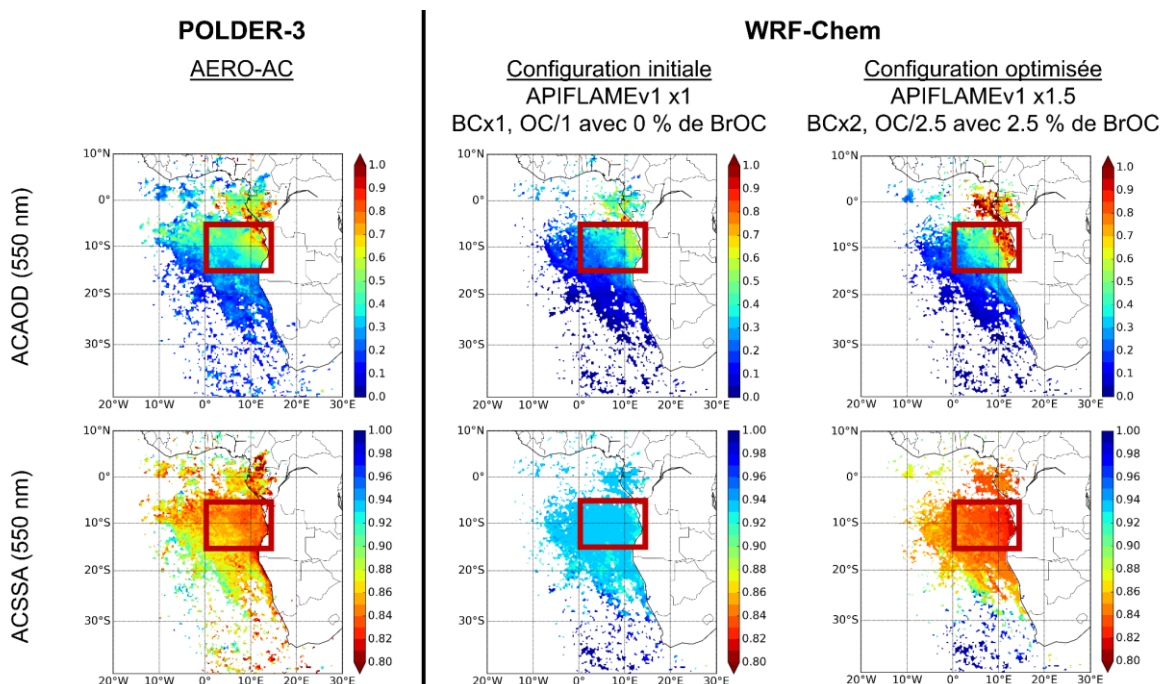


Figure 6.1 : Comparaison de l'ACAOD (en haut) et de l'ACSSA (en bas) à 550 nm entre les restitutions de POLDER-3/AERO-AC (à gauche), la configuration initiale (au milieu) et la configuration optimisée de WRF-Chem (à droite) dans la région de l'Atlantique Sud-Est, en moyenne pour le mois de juillet 2008. Le cadre rouge de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) représente la zone d'étude.

La figure 6.1 montre que le biais moyen sur l'ACSSA à 550 nm entre le modèle WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3/AERO-AC passe de +0.08 pour la configuration initiale à -0.02 pour la configuration optimisée, dans la zone d'étude de coordonnées (0°E-15°E, 15°S-5°S) pour le mois de juillet 2008. Les propriétés d'absorption des aérosols de feux de biomasse sont ainsi nettement améliorées avec la configuration optimisée de WRF-Chem, tout en conservant un contenu réaliste d'aérosols entrainés au-dessus des stratocumulus marins, comme le montrent les cartes d'ACAOD.

En conclusion, la méthodologie développée au cours de cette thèse peut être résumée de la façon suivante : utiliser des simulations régionales optimisées pour contraindre les facteurs d'émissions des grandes familles d'espèces chimiques présentes dans les inventaires de feux de biomasse grâce à l'ajustement de la chimie. Cet ajustement de la chimie est rendu possible grâce à l'utilisation de nouvelles observations satellitaires

fournissant l'albédo de simple diffusion des aérosols et sa dépendance spectrale depuis l'espace, à la fois en ciel clair et en ciel nuageux. Ces nouvelles observations, disponibles depuis peu, utilisées en synergie avec un modèle régional de météorologie couplée à la chimie comme WRF-Chem, permettent d'obtenir des contraintes nouvelles sur la chimie des aérosols dans les exercices de modélisation climatique.

## 6.2 Applications et voies d'améliorations

À court terme, les résultats acquis au cours de cette thèse constituent la première étape d'une étude qui permettra d'estimer de façon plus robuste l'impact climatique des aérosols de feux de biomasse présents dans la région de l'Atlantique Sud-Est, en utilisant la configuration optimisée du modèle WRF-Chem. Notamment, l'influence de l'absorption du carbone brun sur les effets radiatifs direct et semi-directs pourra être étudiée. Également, la réponse du nuage en cas de contact avec le panache d'aérosols de feux de biomasse pourra être évaluée au niveau des effets indirects.

À moyen terme, la méthodologie développée dans cette thèse pourrait être appliquée à l'ensemble de la saison sèche de l'été 2008 pour étudier la variabilité temporelle et le cycle d'absorption des aérosols de feux de biomasse présents dans cette région. Une perspective importante serait ainsi le développement d'une paramétrisation du contenu en carbone brun dans WRF-Chem en fonction de l'évolution de l'activité des feux au cours de la saison sèche. Pour améliorer cet aspect, un travail de synergie entre les observations satellitaires fournies par les capteurs spatiaux POLDER-3 et OMI pourrait permettre d'étendre la restitution de l'albédo de simple diffusion des aérosols à l'ultraviolet, domaine spectral particulièrement sensible à la présence de carbone brun.

D'autres pistes non encore explorées durant cette thèse, comme le type de mélange des aérosols (revêtement de type core-shell) ou la prise en compte d'une morphologie fractale de la suie, permettraient d'apporter des informations supplémentaires sur les propriétés d'absorption du panache d'aérosols de feux de biomasse.

La méthodologie mise en place devrait être étendue à d'autres périodes de temps. Par exemple, cette méthodologie pourrait être appliquée à la campagne aéroportée française AEROCLO-SA qui s'est déroulée dans la région de l'Atlantique Sud-Est en août-septembre 2017, en utilisant alors d'autres jeux de données que celles fournies par POLDER-3. D'autres campagnes internationales de mesures ont également eu lieu dans cette région (campagnes aéroportées ORACLES et CLARIFY) ces dernières années (Zuidema et al. 2016b). Elles permettront de fournir des jeux d'observations détaillées de référence sur les propriétés des aérosols de feux de biomasse, apportant là encore des contraintes supplémentaires sur leurs effets radiatifs et climatiques.

Enfin, une autre perspective intéressante consisterait à appliquer la méthodologie combinant simulations régionales et observations satellitaires d'aérosols à d'autres régions sous l'influence de feux de biomasse, comme celles situées dans l'hémisphère Nord ou en Amérique du Sud, en particulier en Amazonie. Les feux de forêt boréale, entre autres, sont un sujet d'intérêt car ils sont caractérisés par un très faible rapport de mélange en aérosols carbonés et une combustion lente sans flammes. Ce type de feux est donc potentiellement plus riche en aérosols organiques, ce qui en fait un contributeur potentiellement important de carbone brun. Pour ce type de panache, la concentration en carbone brun pourrait donc être beaucoup plus importante que pour les panaches de feux de biomasse observés dans l'Atlantique Sud-Est, impliquant un effet du carbone brun sur le climat potentiellement plus marqué pour ces régions.

## 7 Annexes

### 7.1 Annexe A1 : incertitudes associées à l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) restitué par POLDER-3/GRASP en ciel clair

La figure 7.1 compare l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) restitué par la version « optimisée » du produit aérosols POLDER-3/GRASP, utilisée dans cette thèse, avec celui fourni par AERONET en ciel clair à 443, 670, 865 et 1 020 nm, à l'échelle mondiale et en moyenne sur la période 2005-2013. Les histogrammes de densité de probabilité du biais moyen entre le SSA restitué par POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> et celui fourni par AERONET sont donnés, avec les régressions linéaires associées, ce qui permet d'estimer les incertitudes moyennes associées aux données du SSA restitué par POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> (Chen et al. 2020).

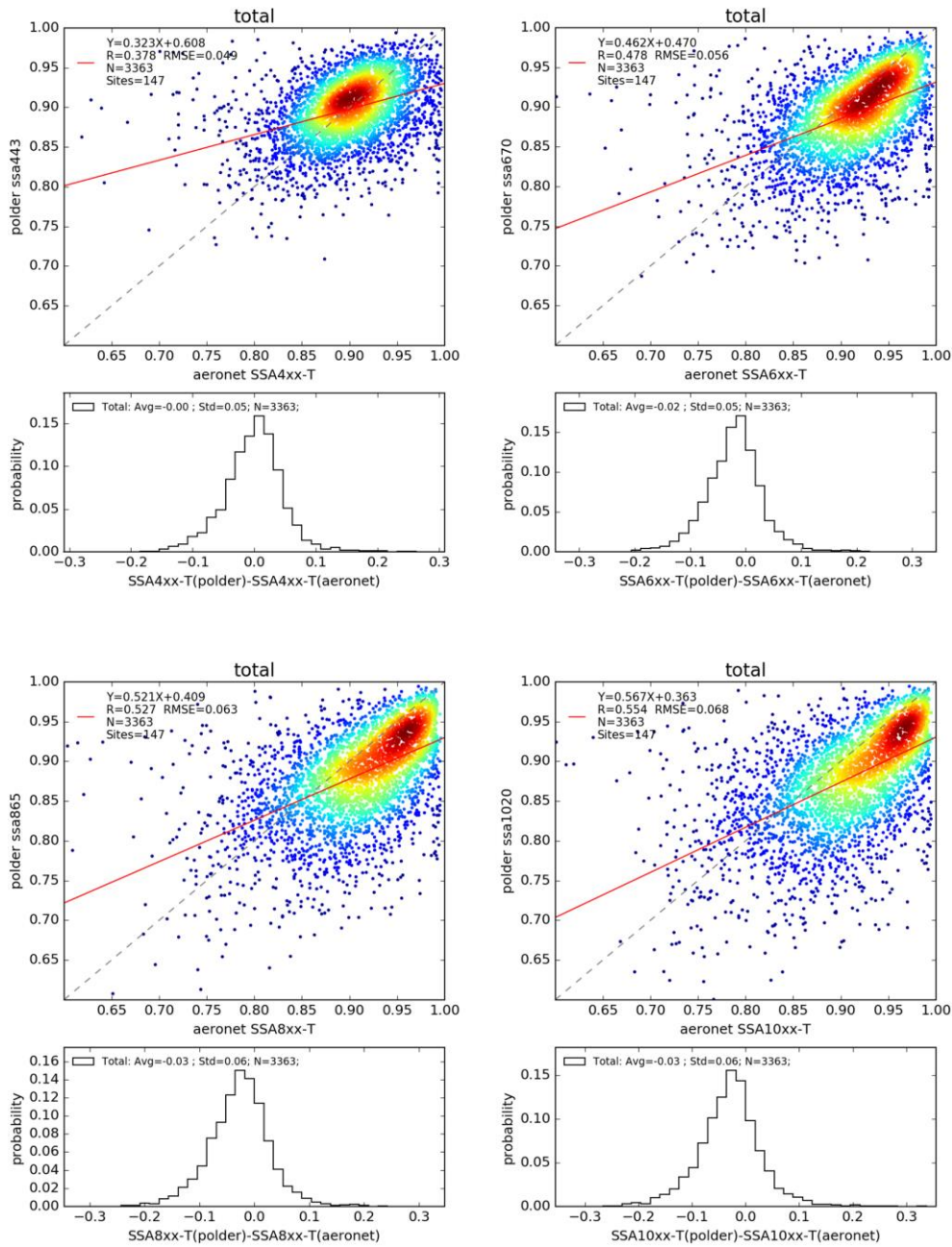


Figure 7.1 : Comparaison de l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) restitué par la version optimisée de POLDER-3/GRASP avec celui fourni par AERONET en ciel clair à 443 (en haut, à gauche), 670 (en haut, à droite), 865 (en bas, à gauche) et 1 020 nm (en bas, à droite), à l'échelle mondiale en moyenne sur la période 2005-2013, uniquement pour des épaisseurs optiques aérosols (AOD) supérieures à 0.4 à 440 nm pour lesquelles la sensibilité des données satellitaires est maximale. Source : Chen et al. (2020).

Selon les régressions linéaires de la figure 7.1, POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> restitue en moyenne des valeurs de SSA légèrement plus faibles que les données AERONET, indiquant une absorption des aérosols légèrement plus forte pour POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub>, notamment avec la longueur d'onde croissante. En effet, d'après les histogrammes de densité de probabilité de la figure 7.1, les biais moyens du SSA entre



POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> et AERONET sont de 0, -0.02, -0.03 et -0.03 à 443, 670, 865 et 1 020 nm avec un écart-type moyen de 0.05, 0.05, 0.06 et 0.06, respectivement. Ainsi, une incertitude maximale de  $\pm 0.05$  (en moyenne) sur le SSA restitué par POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> en ciel clair peut être considérée dans notre étude sur l'ensemble du domaine spectral visible-proche infrarouge.

Il est à noter qu'une nouvelle version de l'algorithme d'inversion POLDER-3/GRASP est disponible depuis peu : c'est la version appelée « haute précision » où les calculs de transfert radiatif sont plus précis (Chen et al. 2020). La figure 7.2, similaire à la figure 7.1 mais pour la version haute précision, montre que les résultats de la validation avec les données AERONET sur la période 2005-2013 à l'échelle globale sont sensiblement meilleurs. Par exemple, le biais moyen du SSA entre POLDER-3/GRASP<sub>haute précision</sub> et AERONET est amélioré pour la bande spectrale à 865 nm, soit de -0.02 contre -0.03 pour POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub>. Cependant, l'absorption des aérosols dans le proche infrarouge reste légèrement surestimée par POLDER-3/GRASP<sub>haute précision</sub> avec des valeurs de SSA plus faibles que celles fournies par AERONET.

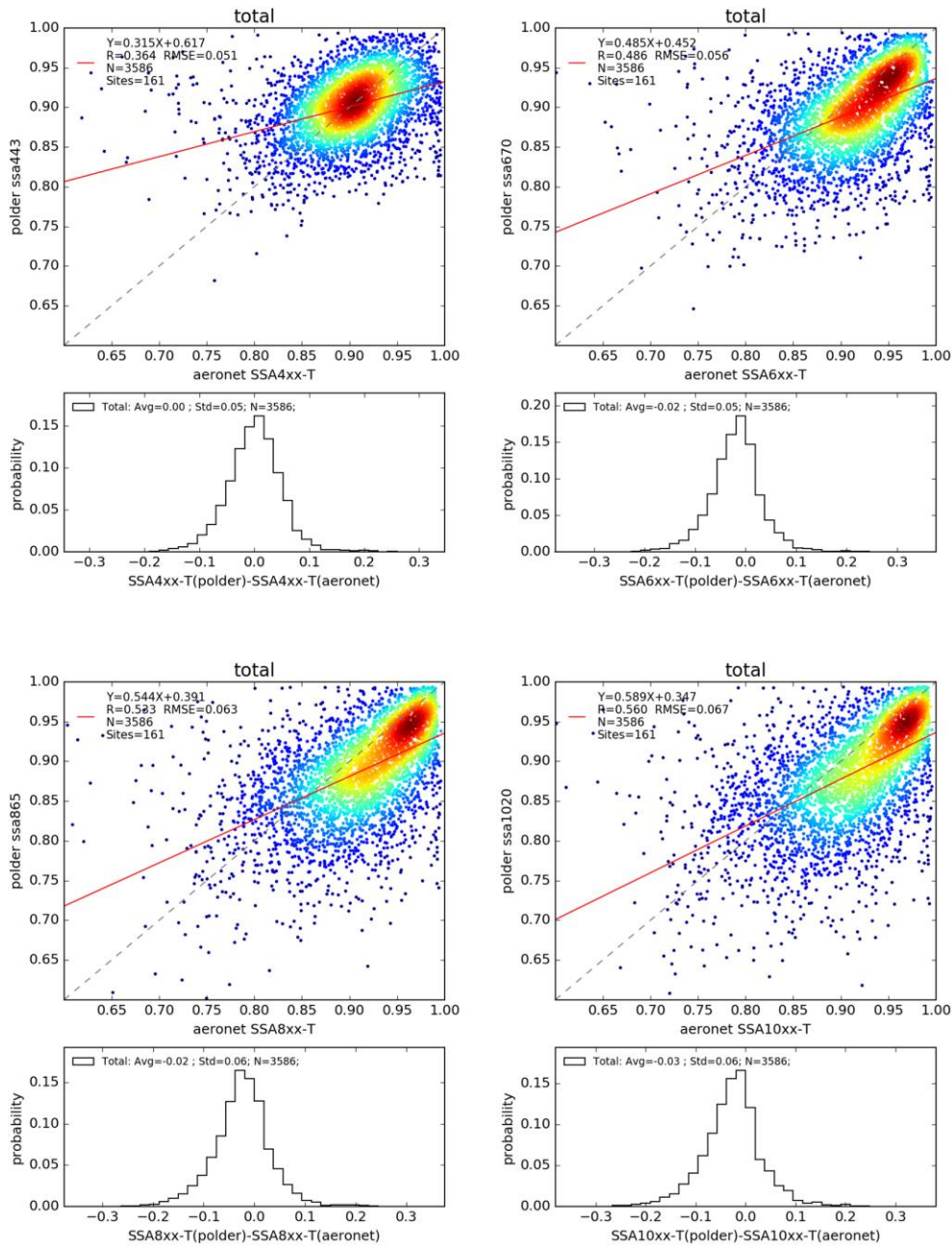


Figure 7.2 : Comparaison de l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA) restitué par la version haute précision de POLDER-3/GRASP avec celui fourni par AERONET en ciel clair à 443 (en haut, à gauche), 670 (en haut, à droite), 865 (en bas, à gauche) et 1 020 nm (en bas, à droite), à l'échelle mondiale en moyenne sur la période 2005-2013, uniquement pour des épaisseurs optiques aérosols (AOD) supérieures à 0.4 à 440 nm pour lesquelles la sensibilité des données satellitaires est maximale. Source : Chen et al. (2020).

Bien que le biais moyen soit nul à 443 nm (figure 7.1), cette bande spectrale doit être utilisée avec précaution lors d'études de comparaisons et validations des propriétés optiques des aérosols, comme discuté dans le paragraphe suivant.

## 7.2 Annexe A2 : étalonnage du polarimètre POLDER-3

La figure 7.3, issue de Fougnie (2015), présente les résultats de la calibration en vol du polarimètre POLDER-3, embarqué à bord du satellite PARASOL, pour l'ensemble de ses canaux spectraux (443-1 020 nm). Ces résultats sont donnés pour différents types de scènes caractéristiques, pour lesquelles POLDER-3 est utilisé pour détecter les couches d'aérosols et caractériser leurs propriétés d'absorption. Différentes méthodes de calibration sont utilisées. Elles s'appuient toutes sur l'utilisation de cibles naturelles, dont la luminance (ou sa dépendance spectrale) peut être prédite ou simulée. Le rapport entre la luminance mesurée par POLDER-3 et celle estimée numériquement au sommet de l'atmosphère, à l'aide de ces différentes méthodes, est représenté sur la figure 7.3. Ce rapport fournit directement l'erreur de calibration  $\Delta A_k$  pour chaque longueur d'onde  $k$  du capteur spatial POLDER-3 (Fougnie et al. 2007 ; Fougnie, 2015).

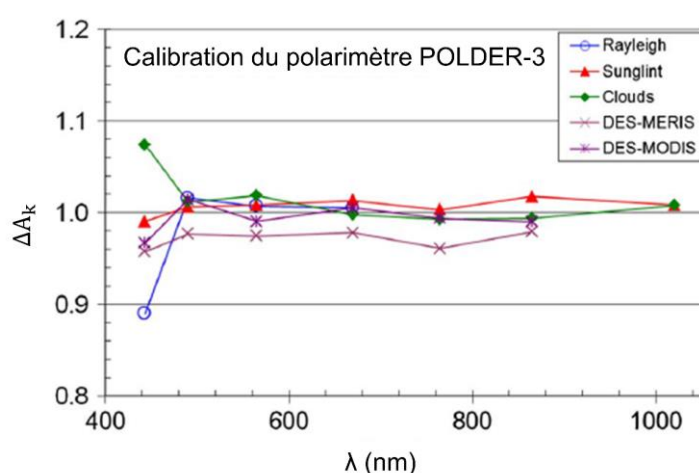


Figure 7.3 : Rapport de luminance mesurée/estimée au sommet de l'atmosphère  $\Delta A_k$ , pour la bande spectrale  $k$ , utilisé pour la calibration en vol du satellite PARASOL embarquant à son bord le polarimètre POLDER-3. Adapté de Fougnie (2015).

La figure 7.3 montre que les différents canaux de l'instrument POLDER-3 sont globalement bien étalonnés (courbes bleue, rouge et verte), à l'exception du canal centré sur 443 nm. Pour ce canal spectral, des erreurs plus ou moins importantes apparaissent selon le type de scène observée. Au-dessus de scènes modérément brillantes, comme les surfaces terrestres, désertiques ou encore les scènes océaniques contaminées par le glitter<sup>13</sup> (courbe rouge), la bande à 443 nm peut être

<sup>13</sup> Le glitter ou « sunlint » en anglais correspond à la réflexion spéculaire du rayonnement solaire sur les facettes des vagues de l'océan.

utilisée car elle présente des incertitudes à peine plus grandes (de l'ordre de 2 à 3 %), que celles annoncées pour les autres bandes spectrales. En revanche, au-dessus des nuages, cibles particulièrement brillantes (courbe verte), la luminance fournie à 443 nm est surestimée, jusqu'à potentiellement 8 %. Au-dessus de scènes sombres, comme la surface océanique, en dehors du glitter (diffusion Rayleigh, courbe bleue), la luminance fournie à 443 nm est au contraire sous-estimée, jusqu'à potentiellement 10 %. Compte tenu des variations observées, l'utilisation du canal à 443 nm pour l'étude des aérosols est à proscrire pour les scènes océaniques sombres et nuageuses, selon Fougnie (2015).

Dans notre étude, pour les aspects quantitatifs, nous nous sommes donc restreints à l'utilisation du produit POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> fourni au-dessus des surfaces terrestres (continent africain), pour lesquelles les incertitudes liées à l'étalonnage à 443 nm sont minimales. La qualité du produit POLDER-3/GRASP<sub>optimisé</sub> fourni à 443 nm, au-dessus des terres, a notamment été confirmée à l'aide des données AERONET (voir Annexe A1). Enfin, il convient de noter que l'algorithme POLDER-3/AERO-AC, n'utilise pas le canal 443 nm de POLDER-3 afin de ne pas dégrader la précision des résultats obtenus pour les aérosols au-dessus des nuages.

## 7.3 Annexe B : résultats et discussion du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem

Le premier jeu de simulation numériques de WRF-Chem est réalisé avec l'indice de réfraction du carbone suie de Bond et Bergström (2006),  $m_{BC,550nm} = 1.95 - 0.79i$ . Il comprend un total de 48 tests de sensibilité établis à partir de :

- l'augmentation progressive de la quantité émise de carbone suie à la source : BCx1, BCx2, BCx3.5 et BCx4 ;
- la diminution graduelle de la quantité émise de carbone organique primaire à la source : OC/1, OC/5, OC/10 et OC/15 ;
- d'une contribution variable de carbone brun sur l'ensemble des organiques primaires et secondaires : 0, 2.5 et 5 % de BrOC.

Par la construction de cette table de type LUT (Look Up Table), l'objectif est de déterminer une ou plusieurs combinaisons de mélange en aérosols carbonés reproduisant le mieux les restitutions spectrales de l'épaisseur optique aérosol (AOD), proportionnelle au contenu des aérosols, et de l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA), donnant l'information sur leurs propriétés d'absorption, déduites des mesures du polarimètre POLDER-3.

La figure 7.4 présente les dépendances spectrales de l'(AC)AOD (à gauche) et de l'(AC)SSA (à droite) simulées par les 12 tests de sensibilité de la sous-table BCx1 de WRF-Chem (courbes colorées) et restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas). Les propriétés optiques des aérosols sont moyennées géographiquement dans la zone d'étude (12°E-30°E, 10°S-0°S) en ciel clair et (0°E-15°E, 15°S-5°S) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

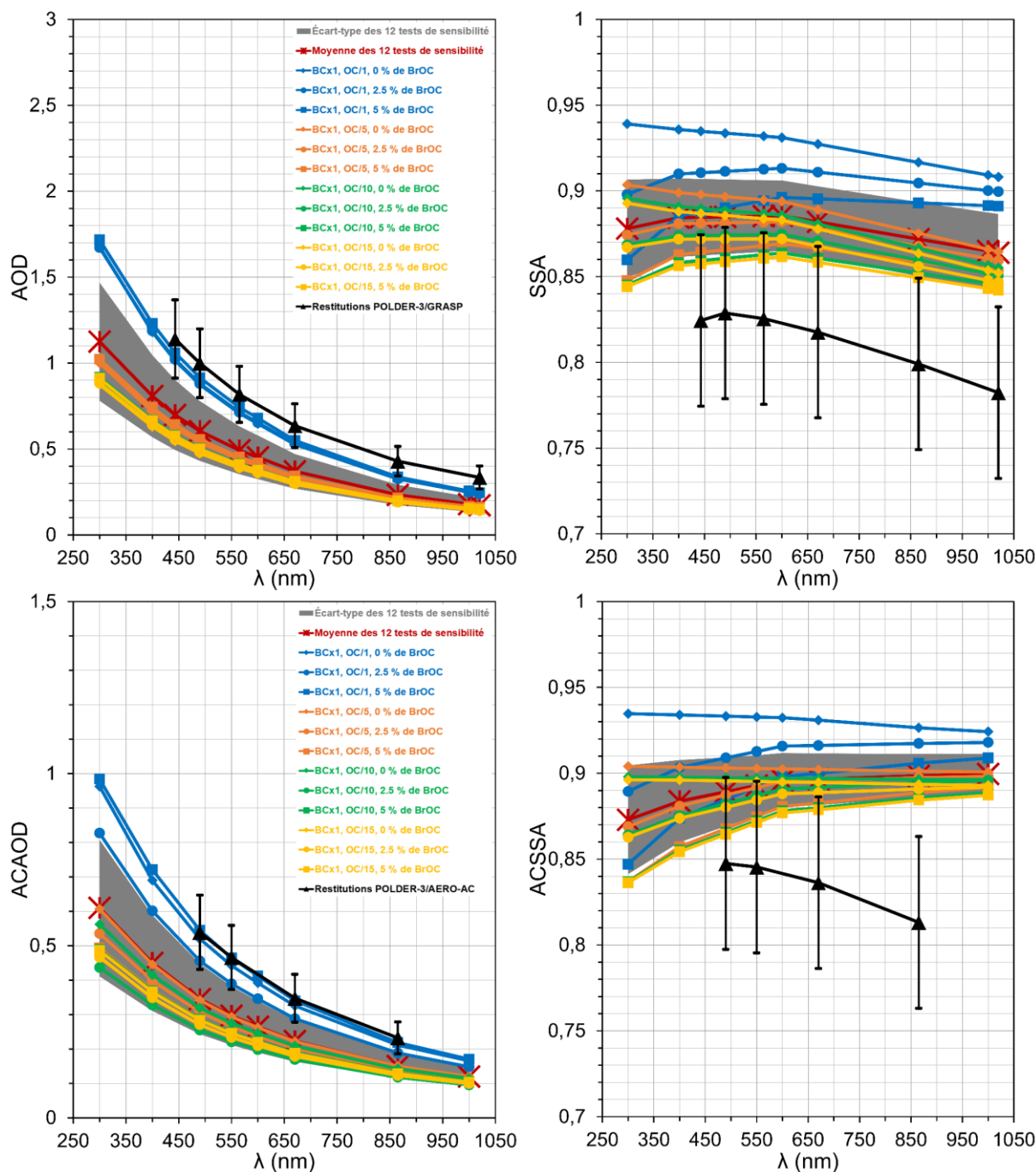


Figure 7.4 : Sous-table BCx1. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 12 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

Tout d'abord, la figure 7.4 montre que l'ensemble des 12 tests de sensibilité de la sous-table BCx1 de WRF-Chem reproduit la décroissance des valeurs d'AOD restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages

avec la longueur d'onde croissante de l'ultraviolet au proche infrarouge. Cette tendance est caractéristique de la présence d'aérosols du mode fin, ici des particules de feux de biomasse.

Également, la figure 7.4 montre que les tests de sensibilité sans la contribution du carbone brun (0 % de BrOC) reproduisent le comportement spectral du SSA restitué par POLDER-3, c'est-à-dire décroissant avec la longueur d'onde croissante de l'ultraviolet au proche infrarouge. Cette tendance est aussi caractéristique de la présence d'aérosols du mode fin contenant du carbone suie. Les simulations numériques avec la prise en compte du carbone brun (2.5 et 5 % de BrOC) reproduisent l'inversion de la pente du SSA restituée par POLDER-3/GRASP dans l'ultraviolet-bleu, d'autant plus marquée que la contribution du carbone brun est importante.

Enfin, la figure 7.4 montre qu'aucun scénario de la sous-table BCx1 ne reproduit fidèlement les variations spectrales de l'AOD et du SSA restituées par POLDER-3, à la fois au niveau du continent en ciel clair et au niveau de l'océan au-dessus des stratocumulus marins. En particulier, le contenu des aérosols de feux de biomasse émis par les sources terrestres puis transportés au large des côtes sud-africaines ainsi que leurs propriétés d'absorption, simulés par la sous-table BCx1 de WRF-Chem, sont très insuffisants (voir tableau 7.3 de l'Annexe D).

Les figures 7.5, 7.6 et 7.7 suivantes sont similaires à la figure 7.4 mais pour les sous-tables respectives BCx2, BCx3.5 et BCx4. L'objectif est d'augmenter graduellement les fractions massiques de carbone suie à la source afin d'obtenir des quantités émises et transportées d'aérosols de feux de biomasse plus grandes et des niveaux d'absorption des aérosols plus importants. Les propriétés optiques des aérosols sont moyennées géographiquement dans la zone d'étude (12°E-30°E, 10°S-0°S) en ciel clair et (0°E-15°E, 15°S-5°S) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur les quinze premiers jours de juillet 2008.



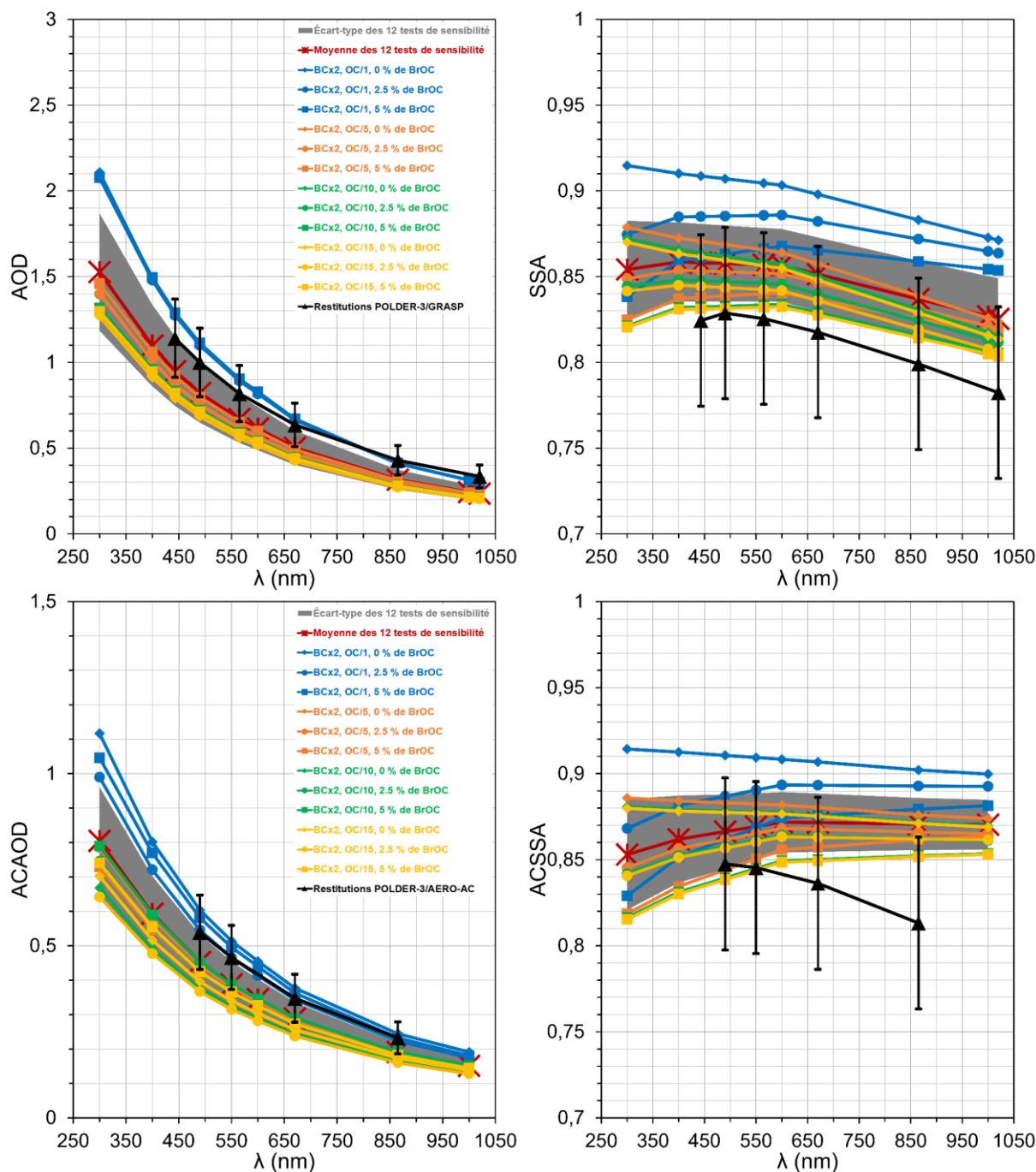


Figure 7.5 : Sous-table BCx2. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 12 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.



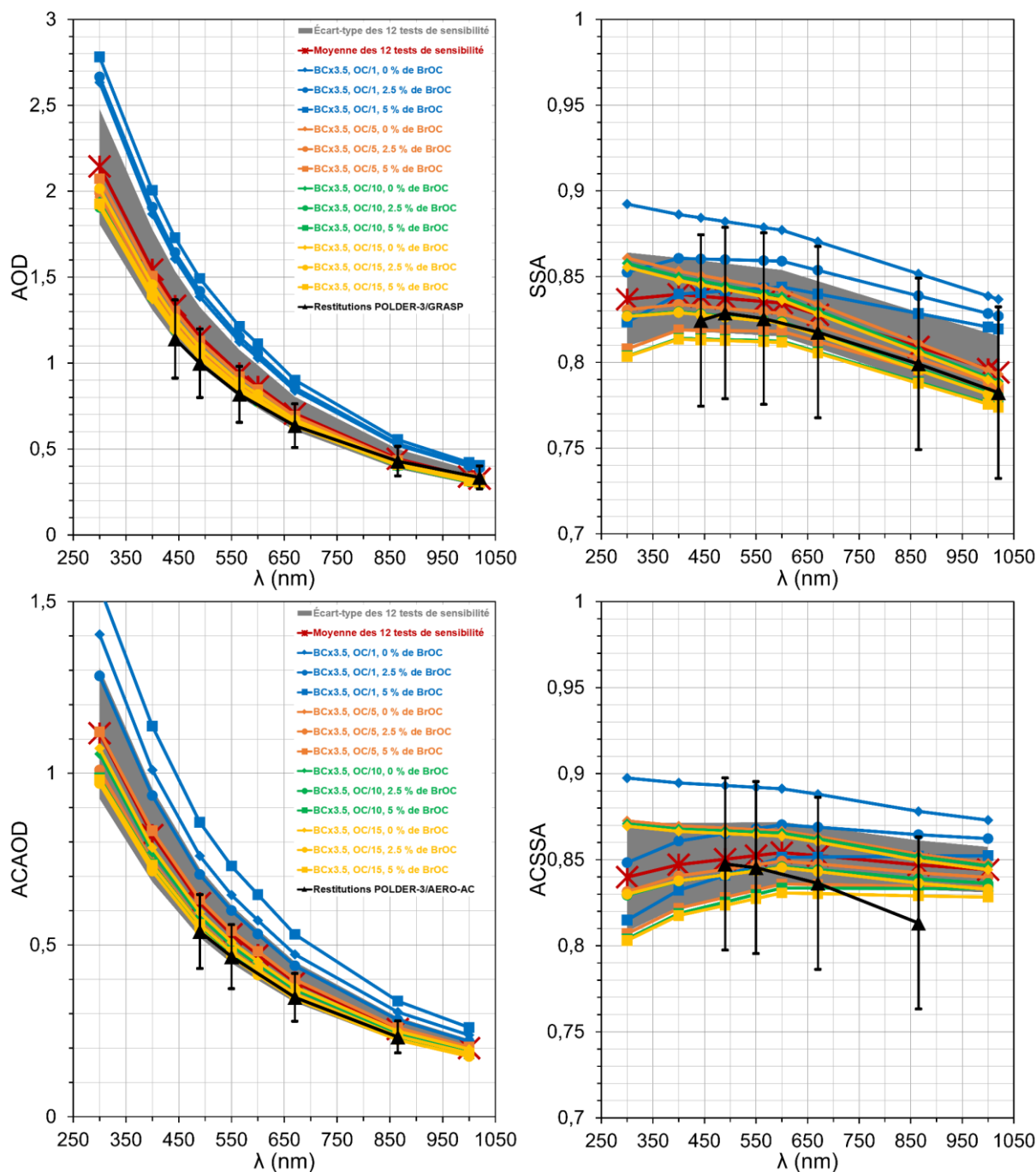


Figure 7.6 : Sous-table BCx3.5. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 12 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

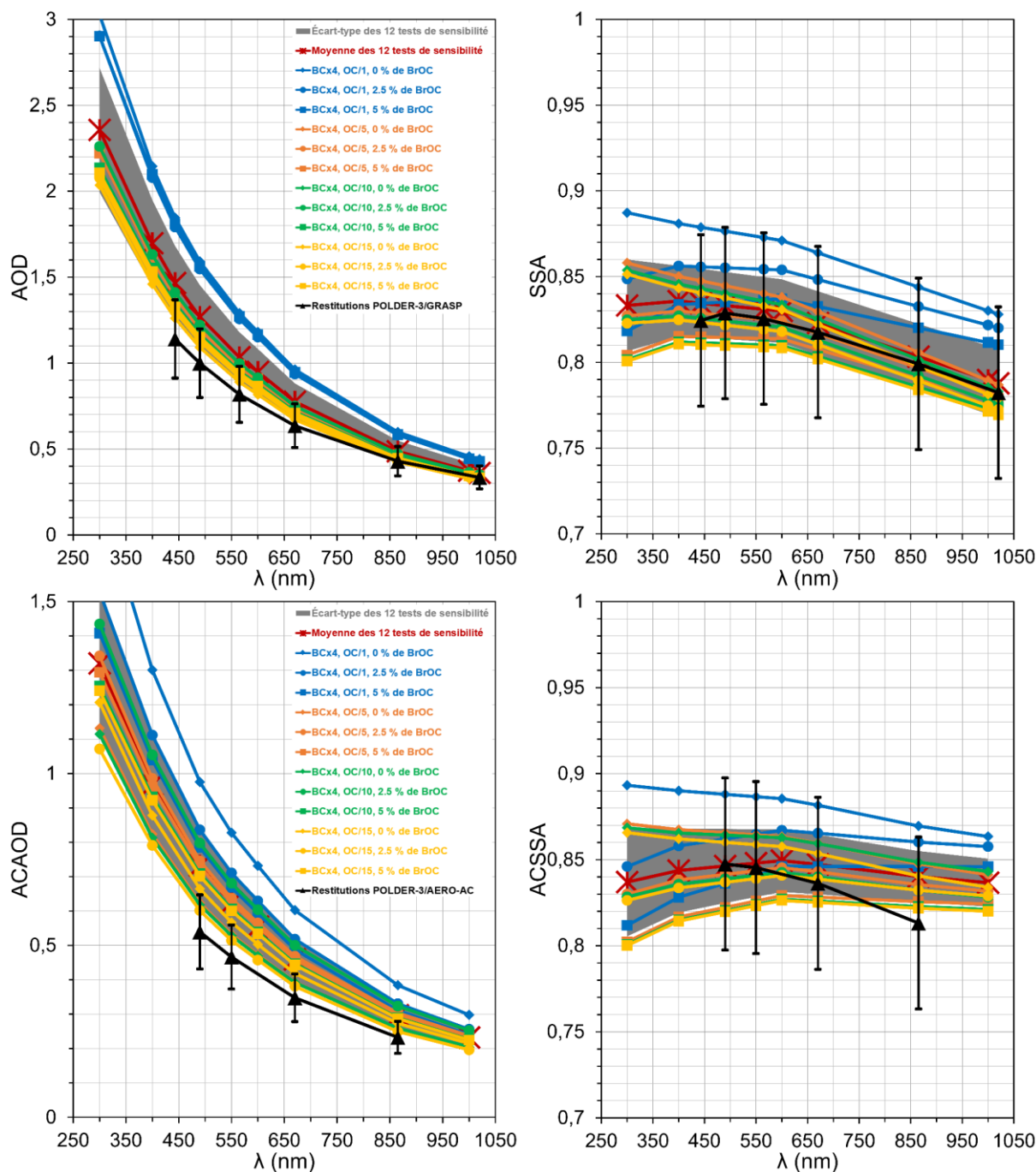


Figure 7.7 : Sous-table BCx4. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 12 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

Les figures 7.5, 7.6 et 7.7 montrent bien qu'en augmentant progressivement la quantité émise de carbone suie à la source (BCx2, BCx3.5 et BCx4), le contenu des aérosols de feux de biomasse émis puis transportés (augmentation des valeurs de l'AOD et de

l'ACAOD à une longueur d'onde donnée) et leur niveau d'absorption augmente petit à petit (diminution des valeurs du SSA et de l'ACSSA à une longueur d'onde donnée). De même, la réduction graduelle de la quantité émise de carbone organique primaire diffusant à la source (OC/1 (courbes bleues), OC/5 (courbes oranges), OC/10 (courbes vertes) et OC/15 (courbes jaunes)) permet de renforcer le niveau d'absorption des aérosols de feux de biomasse. Enfin, l'augmentation de la fraction absorbante des aérosols organiques (de 2.5 (courbes colorées avec des ronds) à 5 % (courbes colorées avec des carrés) de BrOC) accroît également l'absorption des aérosols de feux de biomasse.

Parmi les 48 tests de sensibilité du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem, seule la combinaison de mélange en aérosols carbonés BCx3.5, OC/10 avec 2.5 % de BrOC (courbes vertes avec des ronds sur la figure 7.6) permet d'approcher au mieux les restitutions spectrales des propriétés optiques fournies par POLDER-3/GRASP et POLDER-3/AERO-AC, respectivement en zones d'émissions et de transport du panache d'aérosols de feux de biomasse. Cette unique solution du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem minimise statistiquement à la fois les biais moyens sur les valeurs spectrales de l'AOD et du SSA déduites des mesures de POLDER-3 en ciel clair et au-dessus des nuages (voir tableaux 7.3, 7.4, 7.5 et 7.6 de l'Annexe D).



## 7.4 Annexe C : résultats et discussion du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem

Le second jeu de simulations numériques de WRF-Chem est réalisé avec l'indice de réfraction du carbone suie de Williams et al. (2007),  $m_{BC,550nm} = 1.75 - 1.03i$ , plus absorbant que celui de Bond et Bergström (2006),  $m_{BC,550nm} = 1.95 - 0.79i$ . Il comprend un total de 45 tests de sensibilité établis à partir de :

- l'augmentation progressive de la quantité émise de carbone suie (BC) à la source: BCx2, BCx2.5 et BCx3 ;
- la diminution graduelle de la quantité émise de carbone organique primaire diffusant (OC) : OC/1, OC/2.5, OC/5, OC/10 et OC/15 à la source ;
- d'une contribution variable de carbone brun (BrOC) sur l'ensemble des organiques primaires et secondaires : 0, 2.5 et 5 % de BrOC.

Par la construction de cette seconde table de type LUT (Look Up Table), l'objectif est de déterminer une ou plusieurs combinaisons de mélange en aérosols carbonés réalistes reproduisant le mieux les restitutions spectrales de l'épaisseur optique aérosol (AOD), proportionnelle au contenu des aérosols, et de l'albédo de simple diffusion des aérosols (SSA), donnant l'information sur leurs propriétés d'absorption, déduites des mesures du polarimètre POLDER-3.

Les figures 7.8, 7.9 et 7.10 présentent les dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) simulées par les sous-tables respectives BCx2, BCx2.5 et BCx3 de WRF-Chem (courbes colorées) et restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas). Les propriétés optiques des aérosols sont moyennées géographiquement dans la zone d'étude (12°E-30°E, 10°S-0°S) en ciel clair et (0°E-15°E, 15°S-5°S) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

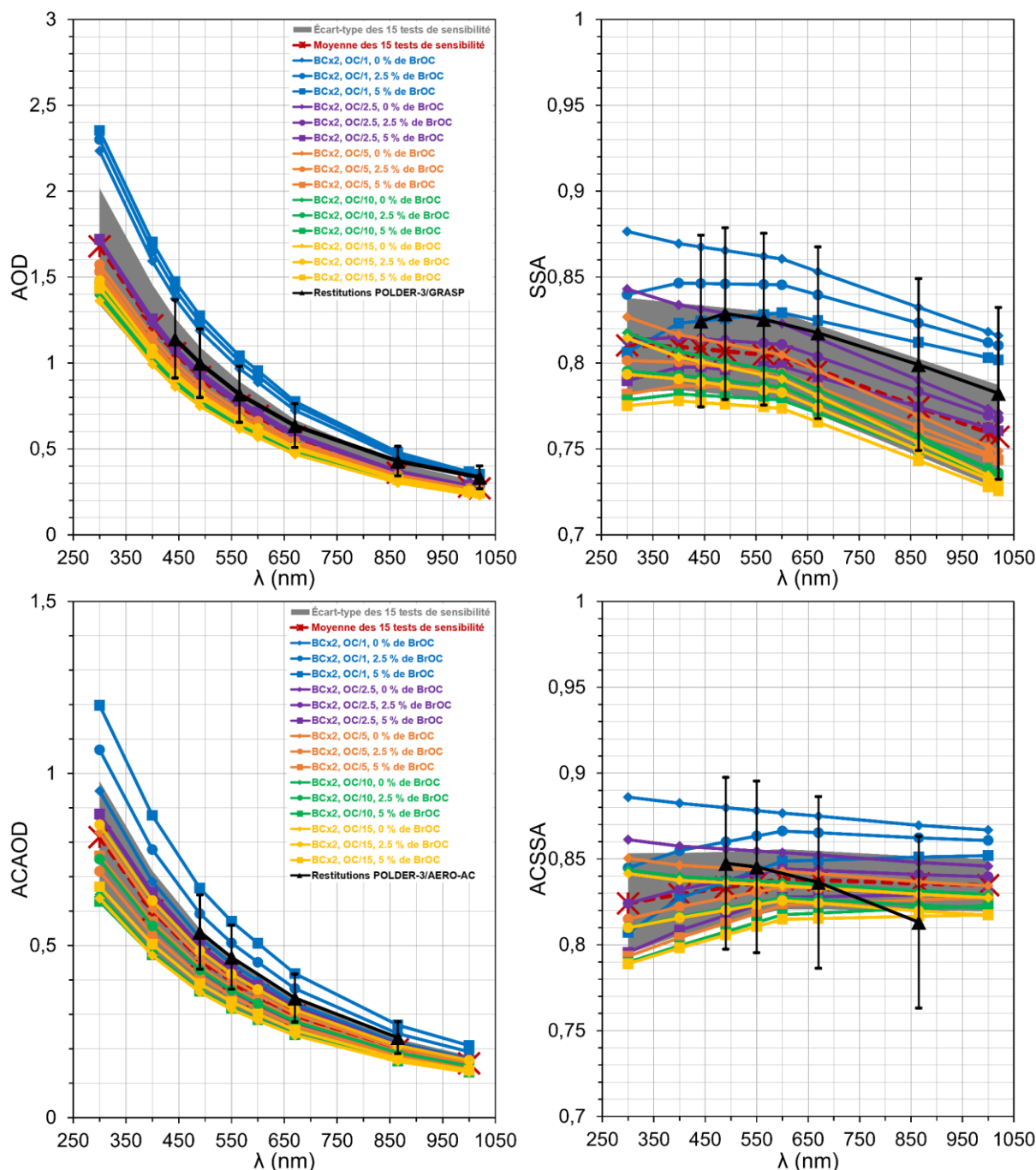


Figure 7.8 : Sous-table BCx2. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 15 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

La figure 7.8 montre que les combinaisons de mélange en aérosols carbonés BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC et BCx2, OC/2.5 avec 5 % de BrOC (courbes violettes avec des ronds et des carrés, respectivement) sont les deux solutions de la sous-table



BCx2 de WRF-Chem qui simulent le mieux à la fois les variations spectrales de l'AOD et celles du SSA restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (voir tableau 7.7 de l'Annexe E).

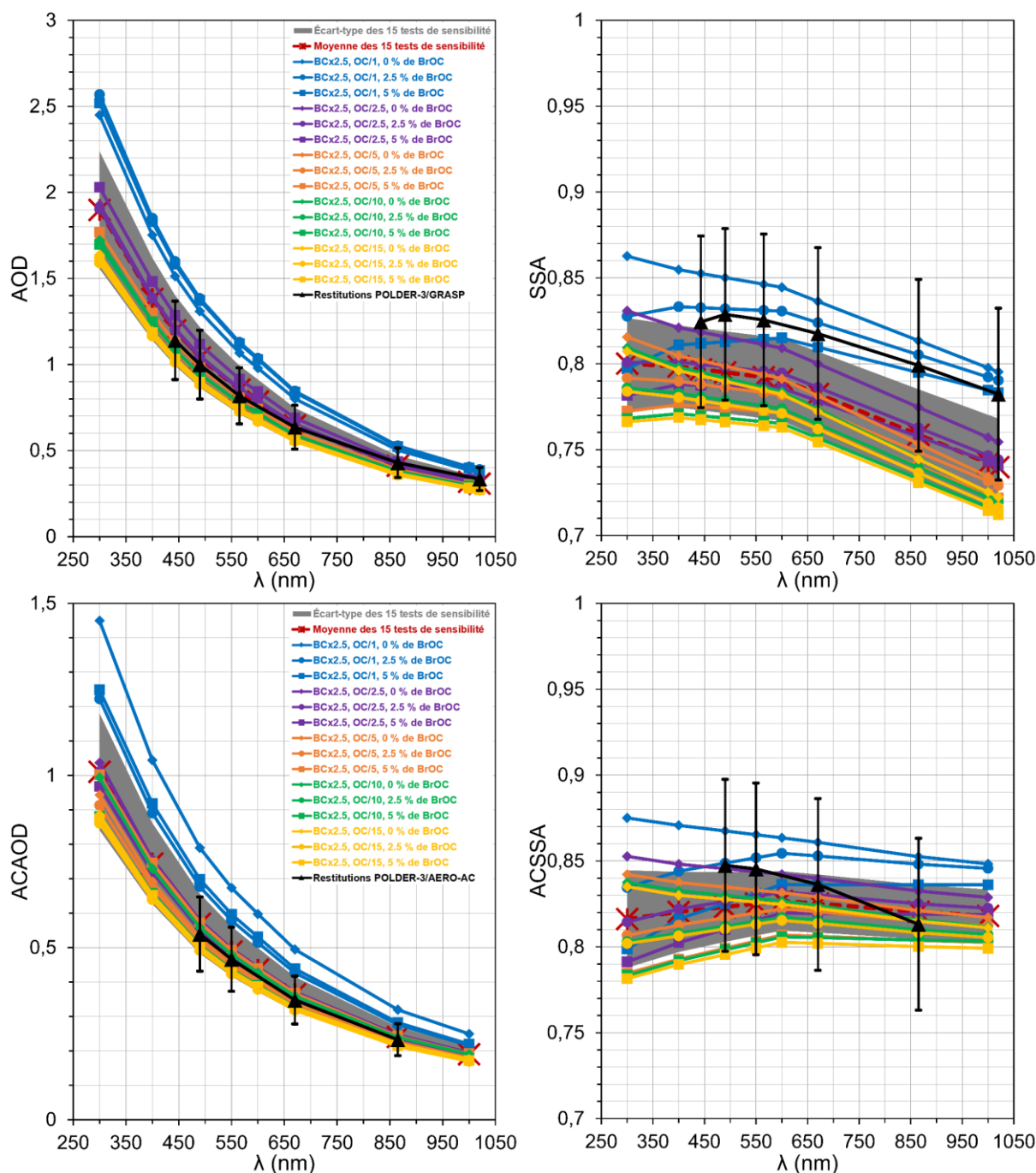


Figure 7.9 : Sous-table BCx2.5. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 15 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

La figure 7.9 montre que trois combinaisons de mélange en aérosols carbonés, BCx2.5, OC/2.5 avec 0, 2.5 et 5 % de BrOC (courbes violettes avec des losanges, ronds et carrés, respectivement), sont des solutions de la sous-table BCx2.5 de WRF-Chem (voir tableau 7.8 de l'Annexe E).



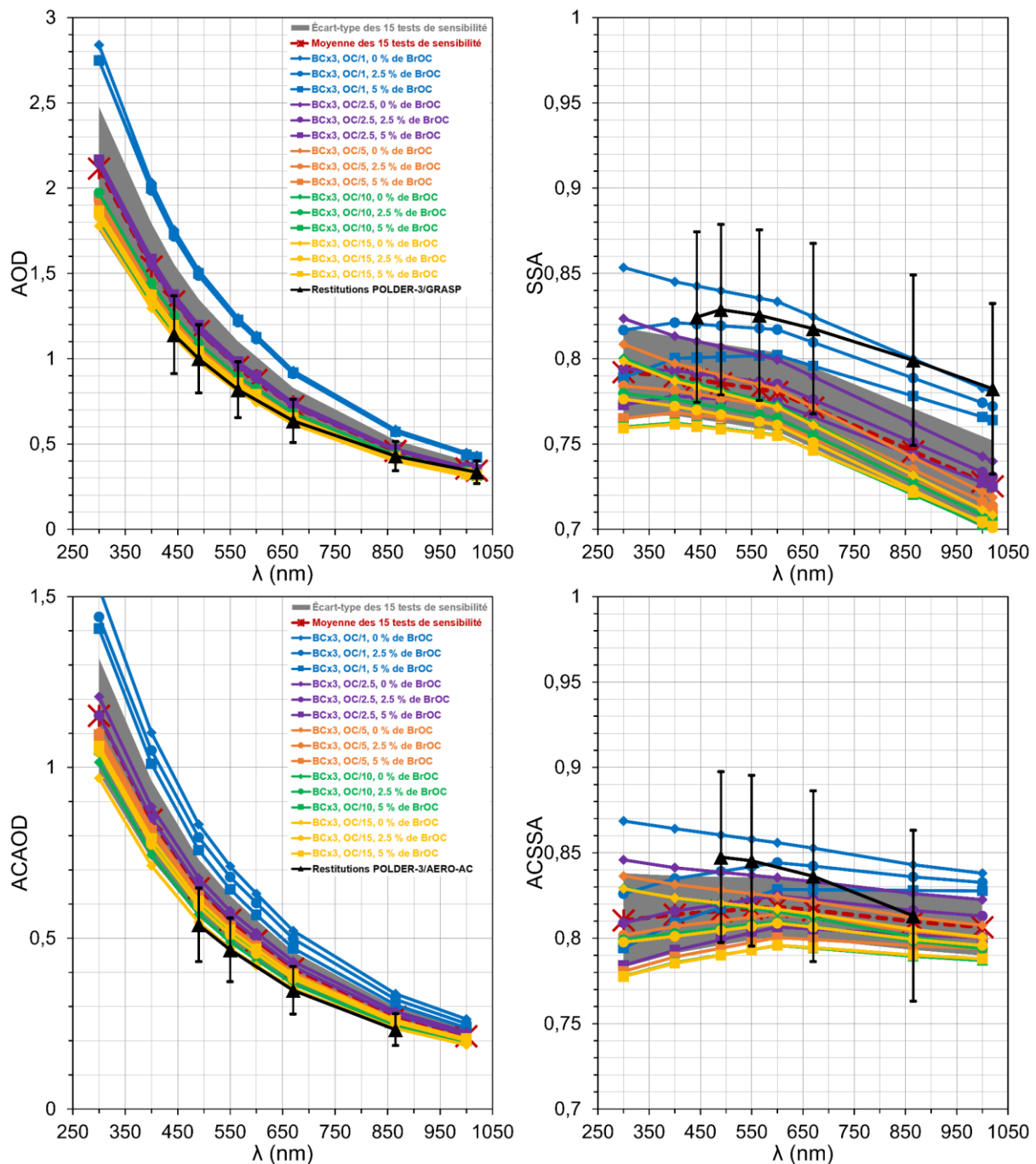


Figure 7.10 : Sous-table BCx3. Dépendances spectrales de l'épaisseur optique aérosol ((AC)AOD, à gauche) et de l'albédo de simple diffusion des aérosols ((AC)SSA, à droite) restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (courbes noires, en haut) et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (courbes noires, en bas) et simulées par 15 tests de sensibilité numériques de WRF-Chem (courbes colorées) de l'ultraviolet au proche infrarouge. Les barres d'erreurs verticales noires correspondent aux incertitudes associées aux données de POLDER-3 avec une précision de  $\pm 20\%$  sur l'((AC)AOD et de  $\pm 0.05$  sur l'((AC)SSA sur l'ensemble du domaine spectral. Les valeurs sont moyennées géographiquement sur leurs zones d'étude respectives, soit ( $12^{\circ}\text{E}$ - $30^{\circ}\text{E}$ ,  $10^{\circ}\text{S}$ - $0^{\circ}\text{S}$ ) en ciel clair et ( $0^{\circ}\text{E}$ - $15^{\circ}\text{E}$ ,  $15^{\circ}\text{S}$ - $5^{\circ}\text{S}$ ) au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, et temporellement sur la première quinzaine de juillet 2008.

La figure 7.10 montre qu'aucune combinaison de mélange en aérosols carbonés de la sous-table BCx3 de WRF-Chem n'est capable de reproduire à la fois les variations

spectrales de l'AOD et celles du SSA restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair et par POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (voir tableau 7.9 de l'Annexe E).

En résumé, cette première approche basée principalement sur une analyse qualitative nous a permis de déterminer des solutions admissibles et surtout réalistes issues du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem par rapport au premier jeu de simulations numériques. En effet, le facteur d'ajustement du carbone suie à la source correspond ici à une augmentation d'un coefficient compris entre 2 et 2.5 contre 3.5 pour la solution du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem (pour rappel, BCx3.5, OC/10 avec 2.5 % de BrOC). Celui du carbone organique primaire à la source équivaut ici à une réduction d'un coefficient 2.5 contre 10 pour la solution du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem.

Nous allons maintenant approfondir l'examen de ces résultats en déterminant statistiquement la meilleure combinaison de mélange en aérosols carbonés, BC, OC et BrOC parmi ces cinq solutions de WRF-Chem. Des filtres sont d'abord appliqués aux données d'observations satellitaires de POLDER-3 puis appliqués aux données coïncidentes simulées par WRF-Chem pour conserver un signal fort pour lequel les incertitudes liées à la restitution des propriétés optiques des aérosols sont les moins élevées. En ciel clair, l'AOD et le SSA sont filtrés selon la condition  $AOD_{obs}(443\text{ nm}) \geq 0.4$  qui permet de limiter l'inversion de l'absorption des aérosols aux situations présentant des charges en aérosols conséquentes (Dubovik et al. 2011, 2014). Au-dessus des nuages, l'ACAOD est filtré selon la condition  $ACAOD_{obs}(865\text{ nm}) \geq 0.05$  et l'ACSSA est filtré selon le critère empirique  $ACAOD_{diff,obs}(865\text{ nm}) * COD_{obs} \geq 0.085$  où  $ACAOD_{diff,obs}$  est l'épaisseur optique de diffusion des aérosols et  $COD_{obs}$  est l'épaisseur optique nuageuse, restituées par POLDER-3 (Peers 2015). Ces deux critères limitent l'inversion de l'absorption des aérosols au-dessus des nuages aux situations présentant des charges en aérosols significatives et des nuages optiquement épais, pour lesquelles la sensibilité de la méthode est maximale. Les données ne respectant pas ces conditions sont rejetées.

Pour la région continentale en atmosphère claire (12°E-30°E, 10°S-0°S), les pixels du modèle WRF-Chem, dont les données moyennées ( $AOD_{mod}(\lambda)$  et  $SSA_{mod}(\lambda)$ ) sur la première quinzaine de juillet 2008 sont comprises dans les incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3 ( $\Delta AOD_{obs}(\lambda) = \pm 0.20 * AOD_{obs}(\lambda)$  et

$\Delta\text{SSA}_{\text{obs}}(\lambda) = \pm 0.05$ ), sont comptabilisés pour chaque longueur d'onde du produit POLDER-3/GRASP (443, 490, 565, 670, 865 et 1 020 nm). Le principe est identique pour la région océanique en atmosphère nuageuse (0°E-15°E, 15°S-5°S) avec le produit POLDER-3/AERO-AC (490, 550, 670 et 865 nm). Ce procédé est appliqué aux cinq solutions du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et permet d'établir un classement de ces scénarios selon le score le plus élevé obtenu pour chacun des deux domaines d'étude.

Le tableau 7.1 regroupe les scores et les classements des cinq scénarios du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem, rangés par augmentation/diminution graduelle de la quantité de carbone suie/carbone organique primaire à la source, pour les contributions de la région continentale en ciel clair et de la région océanique au-dessus des nuages.

| Test de sensibilité de WRF-Chem |             |            | Continent/ciel clair<br>$N_{p,AOD(\lambda)} + N_{p,SSA(\lambda)}$ |            | Océan/au-dessus des nuages<br>$N_{p,ACAOD(\lambda)} + N_{p,ACSSA(\lambda)}$ |            |
|---------------------------------|-------------|------------|-------------------------------------------------------------------|------------|-----------------------------------------------------------------------------|------------|
| BC                              | OC          | % de BrOC  | Score                                                             | Classement | Score                                                                       | Classement |
| <b>x2</b>                       | <b>/2.5</b> | <b>2.5</b> | <b>13 904</b>                                                     | <b>1</b>   | <b>7 495</b>                                                                | <b>2</b>   |
| x2                              | /2.5        | 5          | 10 794                                                            | 3          | 7 360                                                                       | 3          |
| <b>x2.5</b>                     | <b>/2.5</b> | <b>0</b>   | <b>12 161</b>                                                     | <b>2</b>   | <b>8 007</b>                                                                | <b>1</b>   |
| x2.5                            | /2.5        | 2.5        | 10 583                                                            | 4          | 7 298                                                                       | 4          |
| x2.5                            | /2.5        | 5          | 9 437                                                             | 5          | 6 997                                                                       | 5          |

Tableau 7.1 : Scores et classements des cinq solutions du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem obtenus pour les contributions continent/ciel clair et océan/au-dessus des nuages. Les deux tests de sensibilité surlignés en rouge et en bleu ciel sont respectivement les deux meilleures solutions de WRF-Chem au niveau de la région continentale en atmosphère claire (12°E-30°E, 10°S-0°S) et océanique en atmosphère nuageuse (0°E-15°E, 15°S-5°S).

Le tableau 7.1 montre qu'au-dessus du continent sud-africain en atmosphère claire (12°E-30°E, 10°S-0°S), la combinaison de mélange en aérosols carbonés BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC est celle qui reproduit statistiquement le mieux les restitutions de POLDER-3/GRASP. La contribution plus marquée de carbone brun pour cette solution s'expliquerait par la présence du point d'inflexion dans la courbe du SSA restituée par POLDER-3/GRASP. Au-dessus des nuages de l'océan Atlantique sud-oriental, la combinaison de mélange BCx2.5, OC/2.5 avec 0 % de BrOC est celle qui reconstitue statistiquement le mieux les restitutions de POLDER-3/AERO-AC. L'absence de contribution du carbone brun pour cette solution s'expliquerait par l'absence du point d'inflexion dans la courbe de l'ACSSA restituée par POLDER-3/AERO-AC.

Les deux meilleures solutions du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem étant différentes pour chacune des deux régions d'étude, l'idée est maintenant de déterminer la combinaison de mélange en aérosols carbonés qui représente le meilleur compromis au niveau de la reproduction des restitutions spectrales des propriétés optiques des aérosols déduites des mesures de POLDER-3 en atmosphère claire et nuageuse. Rappelons que la prise en compte de tous les pixels coïncidents au sein des deux zones d'étude, continentale (12°E-30°E, 10°S-0°S) et océanique (0°E-15°E, 15°S-5°S), permet d'assimiler l'évolution spatiale des propriétés optiques du panache d'aérosols de feux de biomasse. Pour cela, les scores respectifs sont additionnés et le scénario de WRF-Chem obtenant le score le plus élevé constitue notre solution la plus représentative de l'ensemble des mesures de POLDER-3.

Le tableau 7.2 dresse le classement final des deux solutions du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem selon le score le plus haut.

| Test de sensibilité |      |           | Score                                                                                   | Classement |
|---------------------|------|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------|------------|
| BC                  | OC   | % de BrOC | $N_{p,AOD(\lambda)} + N_{p,SSA(\lambda)} + N_{p,ACAOD(\lambda)} + N_{p,ACSSA(\lambda)}$ | final      |
| x2                  | /2.5 | 2.5       | 21 399                                                                                  | 1          |
| x2                  | /2.5 | 0         | 20 424                                                                                  | 2          |

Tableau 7.2 : Classement final des deux meilleures solutions du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem en considérant le meilleur compromis entre la région continentale en atmosphère claire (12°E-30°E, 10°S-0°S) et océanique en atmosphère nuageuse (0°E-15°E, 15°S-5°S) à partir du tableau 7.1.

D'après le tableau 7.2, le score le plus grand est obtenu pour la combinaison de mélange en aérosols carbonés BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC. Ce scénario de WRF-Chem représente statistiquement le meilleur compromis au niveau de la représentativité des propriétés optiques du panache d'aérosols de feux de biomasse dans la région de l'Atlantique Sud-Est et constitue ainsi notre configuration optimisée de WRF-Chem.

## 7.5 Annexe D (supplément) : résultats du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem

Les tableaux 7.3, 7.4, 7.5 et 7.6 présentent les biais moyens obtenus sur les propriétés optiques spectrales des aérosols entre les 48 tests de sensibilité du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3/GRASP en ciel clair et de POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages. Ces tableaux retranscrivent les figures 7.4, 7.5, 7.6 et 7.7 de l'Annexe B sous forme de statistiques et permettent de déterminer les solutions de WRF-Chem qui restituent le mieux les restitutions spectrales des propriétés optiques des aérosols. Ce sont celles qui obtiennent une coche verte à la fois pour l'AOD, le SSA, l'ACAOD et l'ACSSA, c'est-à-dire celles dont les biais moyens sont compris dans les incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Sous-table BCx1 :

|                                  |                            | AOD        |            |            |            |            |            |   |
|----------------------------------|----------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                            | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP             | 1.14       | 1.00       | 0.82       | 0.64       | 0.43       | 0.33       |   |
|                                  |                            | $\pm 0.23$ | $\pm 0.20$ | $\pm 0.16$ | $\pm 0.13$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx1, OC/1, 0 % de BrOC    | -0.13      | -0.13      | -0.11      | -0.11      | -0.10      | -0.10      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/1, 2.5 % de BrOC  | -0.12      | -0.12      | -0.10      | -0.11      | -0.10      | -0.10      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/1, 5 % de BrOC    | -0.08      | -0.08      | -0.08      | -0.09      | -0.09      | -0.09      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 0 % de BrOC    | -0.52      | -0.46      | -0.38      | -0.30      | -0.22      | -0.18      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 2.5 % de BrOC  | -0.51      | -0.45      | -0.37      | -0.30      | -0.21      | -0.17      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.50      | -0.44      | -0.36      | -0.29      | -0.21      | -0.17      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 0 % de BrOC   | -0.57      | -0.50      | -0.41      | -0.33      | -0.23      | -0.19      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 2.5 % de BrOC | -0.58      | -0.51      | -0.42      | -0.33      | -0.24      | -0.19      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.56      | -0.50      | -0.41      | -0.32      | -0.23      | -0.19      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 0 % de BrOC   | -0.59      | -0.53      | -0.43      | -0.34      | -0.24      | -0.19      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 2.5 % de BrOC | -0.59      | -0.52      | -0.42      | -0.34      | -0.24      | -0.19      | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.56      | -0.50      | -0.41      | -0.32      | -0.23      | -0.19      | ✗ |
|                                  |                            | SSA        |            |            |            |            |            |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                            | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP             | 0.82       | 0.83       | 0.83       | 0.82       | 0.80       | 0.78       |   |
|                                  |                            | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx1, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.11       | 0.10       | 0.11       | 0.11       | 0.12       | 0.13       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.09       | 0.08       | 0.09       | 0.09       | 0.11       | 0.12       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.06       | 0.06       | 0.07       | 0.08       | 0.09       | 0.11       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.07       | 0.07       | 0.07       | 0.07       | 0.08       | 0.08       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.06       | 0.05       | 0.06       | 0.06       | 0.07       | 0.08       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.04       | 0.04       | 0.04       | 0.05       | 0.06       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.07       | 0.06       | 0.06       | 0.06       | 0.07       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.05       | 0.05       | 0.05       | 0.05       | 0.06       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 5 % de BrOC   | 0.03       | 0.03       | 0.04       | 0.04       | 0.05       | 0.06       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.06       | 0.06       | 0.06       | 0.06       | 0.06       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.05       | 0.04       | 0.05       | 0.05       | 0.06       | 0.06       | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 5 % de BrOC   | 0.03       | 0.03       | 0.04       | 0.04       | 0.05       | 0.06       | ✗ |

|                                  |                            | ACAOD              |                    |                    |                    |   |
|----------------------------------|----------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                            | 490                | 550                | 670                | 865                |   |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC           | 0.54<br>$\pm 0.11$ | 0.47<br>$\pm 0.09$ | 0.35<br>$\pm 0.07$ | 0.23<br>$\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx1, OC/1, 0 % de BrOC    | -0.02              | -0.02              | -0.02              | -0.02              | ✓ |
|                                  | BCx1, OC/1, 2.5 % de BrOC  | -0.08              | -0.08              | -0.06              | -0.04              | ✓ |
|                                  | BCx1, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.01               | 0.00               | -0.01              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx1, OC/5, 0 % de BrOC    | -0.20              | -0.17              | -0.13              | -0.08              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 2.5 % de BrOC  | -0.23              | -0.20              | -0.15              | -0.09              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.25              | -0.22              | -0.16              | -0.10              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 0 % de BrOC   | -0.22              | -0.19              | -0.14              | -0.09              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 2.5 % de BrOC | -0.28              | -0.25              | -0.18              | -0.11              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.25              | -0.22              | -0.16              | -0.10              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 0 % de BrOC   | -0.27              | -0.23              | -0.17              | -0.11              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 2.5 % de BrOC | -0.27              | -0.23              | -0.17              | -0.11              | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.26              | -0.22              | -0.16              | -0.10              | ✗ |
|                                  |                            | ACSSA              |                    |                    |                    |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                            | 490                | 550                | 670                | 865                |   |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC           | 0.85<br>$\pm 0.05$ | 0.85<br>$\pm 0.05$ | 0.84<br>$\pm 0.05$ | 0.81<br>$\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx1, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.09               | 0.09               | 0.09               | 0.11               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.06               | 0.07               | 0.08               | 0.10               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.04               | 0.05               | 0.06               | 0.09               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.06               | 0.06               | 0.07               | 0.09               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.04               | 0.05               | 0.06               | 0.08               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.02               | 0.03               | 0.05               | 0.08               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.05               | 0.05               | 0.06               | 0.08               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.03               | 0.04               | 0.06               | 0.08               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/10, 5 % de BrOC   | 0.02               | 0.03               | 0.04               | 0.07               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.05               | 0.05               | 0.06               | 0.08               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.03               | 0.04               | 0.05               | 0.08               | ✗ |
|                                  | BCx1, OC/15, 5 % de BrOC   | 0.02               | 0.03               | 0.04               | 0.07               | ✗ |

Tableau 7.3 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 12 tests de sensibilité de la sous-table BCx1 du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.3 montre qu'aucun test de sensibilité de la sous-table BCx1 de WRF-Chem ne peut reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. La quantité d'aérosols de feux de biomasse émise et transportée ainsi que l'absorption des aérosols sont insuffisantes en comparaison avec les restitutions de POLDER-3.

Sous-table BCx2 :

|                                  |                            | AOD        |            |            |            |            |            |   |
|----------------------------------|----------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                            | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP             | 1.14       | 1.00       | 0.82       | 0.64       | 0.43       | 0.33       |   |
|                                  |                            | $\pm 0.23$ | $\pm 0.20$ | $\pm 0.16$ | $\pm 0.13$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.14       | 0.10       | 0.07       | 0.03       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.13       | 0.10       | 0.07       | 0.03       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.15       | 0.11       | 0.09       | 0.04       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC    | -0.27      | -0.25      | -0.20      | -0.17      | -0.14      | -0.12      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC  | -0.27      | -0.24      | -0.20      | -0.17      | -0.13      | -0.12      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.22      | -0.20      | -0.17      | -0.14      | -0.12      | -0.10      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC   | -0.32      | -0.29      | -0.24      | -0.20      | -0.15      | -0.13      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC | -0.32      | -0.29      | -0.23      | -0.19      | -0.15      | -0.13      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.31      | -0.28      | -0.23      | -0.19      | -0.15      | -0.12      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC   | -0.35      | -0.32      | -0.26      | -0.21      | -0.16      | -0.13      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC | -0.34      | -0.30      | -0.25      | -0.21      | -0.16      | -0.13      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.32      | -0.29      | -0.24      | -0.20      | -0.15      | -0.13      | ✗ |
|                                  |                            | SSA        |            |            |            |            |            |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                            | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP             | 0.82       | 0.83       | 0.83       | 0.82       | 0.80       | 0.78       |   |
|                                  |                            | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.08       | 0.08       | 0.08       | 0.08       | 0.08       | 0.09       | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.06       | 0.06       | 0.06       | 0.06       | 0.07       | 0.08       | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.04       | 0.03       | 0.04       | 0.05       | 0.06       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.05       | 0.04       | 0.04       | 0.04       | 0.04       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.03       | 0.02       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.01       | 0.01       | 0.01       | 0.02       | 0.03       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.04       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.03       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC   | 0.01       | 0.00       | 0.01       | 0.01       | 0.02       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.04       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.02       | 0.01       | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC   | 0.01       | 0.00       | 0.01       | 0.01       | 0.02       | 0.02       | ✓ |



|                                  |                            | ACAOD                          |            |            |            |     |
|----------------------------------|----------------------------|--------------------------------|------------|------------|------------|-----|
|                                  |                            | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865 |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC           | 0.54                           | 0.47       | 0.35       | 0.23       |     |
|                                  |                            | $\pm 0.11$                     | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ | $\pm 0.05$ |     |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.06                           | 0.05       | 0.03       | 0.01       | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.01                           | 0.00       | 0.00       | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.04                           | 0.03       | 0.02       | 0.00       | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC    | -0.14                          | -0.13      | -0.09      | -0.06      | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC  | -0.10                          | -0.09      | -0.06      | -0.04      | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.12                          | -0.10      | -0.07      | -0.05      | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC   | -0.16                          | -0.14      | -0.10      | -0.07      | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC | -0.12                          | -0.10      | -0.08      | -0.05      | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.09                          | -0.08      | -0.06      | -0.04      | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC   | -0.14                          | -0.13      | -0.09      | -0.06      | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC | -0.17                          | -0.15      | -0.11      | -0.07      | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.11                          | -0.10      | -0.07      | -0.05      | ✗   |
|                                  |                            | ACSSA                          |            |            |            |     |
|                                  |                            | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865 |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC           | 0.85                           | 0.85       | 0.84       | 0.81       |     |
|                                  |                            | $\pm 0.05$                     | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |     |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.06                           | 0.06       | 0.07       | 0.09       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.04                           | 0.05       | 0.06       | 0.08       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.01                           | 0.02       | 0.04       | 0.07       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.04                           | 0.04       | 0.04       | 0.06       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.01                           | 0.02       | 0.03       | 0.05       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.00                           | 0.01       | 0.02       | 0.05       | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.03                           | 0.03       | 0.04       | 0.06       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.01                           | 0.02       | 0.03       | 0.05       | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.01                          | 0.00       | 0.01       | 0.04       | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.03                           | 0.03       | 0.04       | 0.06       | ✗   |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.01                           | 0.01       | 0.03       | 0.05       | ✓   |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.01                          | 0.00       | 0.01       | 0.04       | ✓   |

Tableau 7.4 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 12 tests de sensibilité de la sous-table BCx2 du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.4 montre qu'aucun test de sensibilité de la sous-table BCx2 de WRF-Chem ne peut reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. La quantité d'aérosols de feux de biomasse émise et transportée ainsi que l'absorption des aérosols sont généralement insuffisantes en comparaison avec les restitutions de POLDER-3.

Sous-table BCx3.5 :

|                                  |                              | AOD        |            |            |            |            |            |   |
|----------------------------------|------------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                              | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP               | 1.14       | 1.00       | 0.82       | 0.64       | 0.43       | 0.33       |   |
|                                  |                              | $\pm 0.23$ | $\pm 0.20$ | $\pm 0.16$ | $\pm 0.13$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3.5, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.47       | 0.39       | 0.31       | 0.20       | 0.09       | 0.05       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.50       | 0.42       | 0.33       | 0.22       | 0.10       | 0.06       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.59       | 0.49       | 0.40       | 0.27       | 0.13       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.08       | 0.05       | 0.04       | 0.01       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.10       | 0.08       | 0.06       | 0.02       | -0.01      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.16       | 0.13       | 0.10       | 0.06       | 0.00       | -0.01      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.06       | 0.04       | 0.03       | 0.00       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.05       | 0.03       | 0.03       | 0.00       | -0.03      | -0.04      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 5 % de BrOC   | 0.07       | 0.05       | 0.04       | 0.01       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.05       | 0.03       | 0.02       | 0.00       | -0.03      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.12       | 0.09       | 0.07       | 0.03       | -0.01      | -0.02      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 5 % de BrOC   | 0.07       | 0.05       | 0.04       | 0.01       | -0.02      | -0.03      | ✓ |
|                                  |                              | SSA        |            |            |            |            |            |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                              | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP               | 0.82       | 0.83       | 0.83       | 0.82       | 0.80       | 0.78       |   |
|                                  |                              | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3.5, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.06       | 0.05       | 0.05       | 0.05       | 0.05       | 0.05       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.04       | 0.03       | 0.03       | 0.04       | 0.04       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.02       | 0.01       | 0.02       | 0.02       | 0.03       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.03       | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.01       | 0.01       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.01       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.01      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | 0.00       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.02       | 0.02       | 0.01       | 0.01       | 0.01       | 0.01       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.01      | -0.02      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.02       | 0.01       | 0.01       | 0.01       | 0.01       | 0.01       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.01      | -0.02      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | ✓ |

|                                  |                              | ACAOD      |            |            |            |   |
|----------------------------------|------------------------------|------------|------------|------------|------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                              | 490        | 550        | 670        | 865        |   |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC             | 0.54       | 0.47       | 0.35       | 0.23       |   |
|                                  |                              | $\pm 0.11$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ | $\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3.5, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.22       | 0.18       | 0.13       | 0.07       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.17       | 0.13       | 0.09       | 0.05       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.32       | 0.26       | 0.18       | 0.10       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.01       | 0.01       | 0.00       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.03       | 0.02       | 0.01       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.09       | 0.08       | 0.05       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.04       | 0.03       | 0.02       | 0.01       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.01       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 5 % de BrOC   | 0.02       | 0.01       | 0.01       | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.06       | 0.04       | 0.03       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.00       | 0.00       | 0.00       | -0.01      | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 5 % de BrOC   | 0.02       | 0.01       | 0.01       | 0.00       | ✓ |
|                                  |                              | ACSSA      |            |            |            |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                              | 490        | 550        | 670        | 865        |   |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC             | 0.85       | 0.85       | 0.84       | 0.81       |   |
|                                  |                              | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3.5, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.05       | 0.05       | 0.05       | 0.06       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.02       | 0.02       | 0.03       | 0.05       | ✗ |
|                                  | BCx3.5, OC/1, 5 % de BrOC    | -0.01      | 0.00       | 0.02       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.02       | 0.02       | 0.03       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.00       | 0.00       | 0.01       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.02      | -0.01      | 0.00       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.02       | 0.02       | 0.03       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 2.5 % de BrOC | -0.01      | 0.00       | 0.01       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.02      | -0.02      | 0.00       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.04       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 2.5 % de BrOC | -0.01      | 0.00       | 0.01       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx3.5, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.02      | -0.02      | -0.01      | 0.02       | ✓ |

Tableau 7.5 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 12 tests de sensibilité de la sous-table BCx3.5 du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.5 montre que 9 tests de sensibilité de la sous-table BCx3.5 de WRF-Chem peuvent reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages :

- BCx3.5, OC/5 avec 0, 2.5 et 5 % de BrOC (courbes oranges avec des losanges, ronds et carrés, respectivement, sur la figure 7.6 de l'Annexe B) ;

- BCx3.5, OC/10 avec 0, 2.5 et 5 % de BrOC (courbes vertes avec des losanges, ronds et carrés, respectivement, sur la figure 7.6 de l'Annexe B) ;
- BCx3.5, OC/15 avec 0, 2.5 et 5 % de BrOC (courbes jaunes avec des losanges, ronds et carrés, respectivement, sur la figure 7.6 de l'Annexe B).

Sous-table BCx4 :

|                                  |                                | AOD                |                    |                    |                    |                    |                    |
|----------------------------------|--------------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
|                                  | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 443                | 490                | 565                | 670                | 865                | 1 020              |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP                 | 1.14<br>$\pm 0.23$ | 1.00<br>$\pm 0.20$ | 0.82<br>$\pm 0.16$ | 0.64<br>$\pm 0.13$ | 0.43<br>$\pm 0.09$ | 0.33<br>$\pm 0.07$ |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx4, OC/1, 0 % de BrOC        | 0.71               | 0.59               | 0.47               | 0.33               | 0.17               | 0.11 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/1, 2.5 % de BrOC      | 0.65               | 0.55               | 0.44               | 0.30               | 0.15               | 0.09 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/1, 5 % de BrOC        | 0.67               | 0.56               | 0.45               | 0.31               | 0.15               | 0.09 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/5, 0 % de BrOC        | 0.24               | 0.20               | 0.16               | 0.10               | 0.03               | 0.01 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/5, 2.5 % de BrOC      | 0.26               | 0.22               | 0.17               | 0.11               | 0.04               | 0.01 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/5, 5 % de BrOC        | 0.26               | 0.21               | 0.17               | 0.11               | 0.04               | 0.01 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/10, 0 % de BrOC       | 0.18               | 0.14               | 0.11               | 0.07               | 0.02               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/10, 2.5 % de BrOC     | 0.27               | 0.22               | 0.18               | 0.11               | 0.04               | 0.02 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/10, 5 % de BrOC       | 0.20               | 0.17               | 0.14               | 0.08               | 0.02               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/15, 0 % de BrOC       | 0.12               | 0.09               | 0.07               | 0.04               | 0.00               | -0.02 ✓            |
|                                  | BCx4, OC/15, 2.5 % de BrOC     | 0.16               | 0.13               | 0.10               | 0.06               | 0.01               | -0.01 ✓            |
|                                  | BCx4, OC/15, 5 % de BrOC       | 0.19               | 0.15               | 0.12               | 0.07               | 0.02               | 0.00 ✓             |
|                                  |                                | SSA                |                    |                    |                    |                    |                    |
|                                  | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 443                | 490                | 565                | 670                | 865                | 1 020              |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP                 | 0.82<br>$\pm 0.05$ | 0.83<br>$\pm 0.05$ | 0.83<br>$\pm 0.05$ | 0.82<br>$\pm 0.05$ | 0.80<br>$\pm 0.05$ | 0.78<br>$\pm 0.05$ |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx4, OC/1, 0 % de BrOC        | 0.05               | 0.05               | 0.05               | 0.05               | 0.04               | 0.05 ✗             |
|                                  | BCx4, OC/1, 2.5 % de BrOC      | 0.03               | 0.03               | 0.03               | 0.03               | 0.03               | 0.04 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/1, 5 % de BrOC        | 0.01               | 0.01               | 0.01               | 0.01               | 0.02               | 0.03 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/5, 0 % de BrOC        | 0.02               | 0.02               | 0.01               | 0.01               | 0.01               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/5, 2.5 % de BrOC      | 0.00               | 0.00               | 0.00               | 0.00               | 0.00               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/5, 5 % de BrOC        | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.01 ✓            |
|                                  | BCx4, OC/10, 0 % de BrOC       | 0.02               | 0.01               | 0.01               | 0.01               | 0.00               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/10, 2.5 % de BrOC     | 0.00               | 0.00               | 0.00               | 0.00               | -0.01              | -0.01 ✓            |
|                                  | BCx4, OC/10, 5 % de BrOC       | -0.01              | -0.02              | -0.02              | -0.01              | -0.01              | -0.01 ✓            |
|                                  | BCx4, OC/15, 0 % de BrOC       | 0.02               | 0.01               | 0.01               | 0.00               | 0.00               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx4, OC/15, 2.5 % de BrOC     | 0.00               | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.01 ✓            |
|                                  | BCx4, OC/15, 5 % de BrOC       | -0.01              | -0.02              | -0.02              | -0.02              | -0.02              | -0.01 ✓            |

|                                  |                            | ACAOD                          |            |            |            |     |
|----------------------------------|----------------------------|--------------------------------|------------|------------|------------|-----|
|                                  |                            | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865 |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC           | 0.54                           | 0.47       | 0.35       | 0.23       |     |
|                                  |                            | $\pm 0.11$                     | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ | $\pm 0.05$ |     |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx4, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.44                           | 0.36       | 0.25       | 0.15       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.30                           | 0.24       | 0.17       | 0.10       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/1, 5 % de BrOC    | 0.25                           | 0.20       | 0.14       | 0.08       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.08                           | 0.07       | 0.05       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/5, 2.5 % de BrOC  | 0.21                           | 0.17       | 0.12       | 0.07       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/5, 5 % de BrOC    | 0.19                           | 0.16       | 0.11       | 0.06       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.08                           | 0.06       | 0.04       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/10, 2.5 % de BrOC | 0.26                           | 0.21       | 0.15       | 0.09       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/10, 5 % de BrOC   | 0.17                           | 0.14       | 0.10       | 0.06       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.13                           | 0.10       | 0.07       | 0.04       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/15, 2.5 % de BrOC | 0.06                           | 0.05       | 0.03       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/15, 5 % de BrOC   | 0.16                           | 0.13       | 0.10       | 0.05       | ✗   |
|                                  |                            | ACSSA                          |            |            |            |     |
|                                  |                            | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865 |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC           | 0.85                           | 0.85       | 0.84       | 0.81       |     |
|                                  |                            | $\pm 0.05$                     | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |     |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx4, OC/1, 0 % de BrOC    | 0.04                           | 0.04       | 0.05       | 0.06       | ✗   |
|                                  | BCx4, OC/1, 2.5 % de BrOC  | 0.01                           | 0.02       | 0.03       | 0.05       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/1, 5 % de BrOC    | -0.01                          | 0.00       | 0.01       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/5, 0 % de BrOC    | 0.02                           | 0.02       | 0.02       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/5, 2.5 % de BrOC  | -0.01                          | 0.00       | 0.01       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/5, 5 % de BrOC    | -0.03                          | -0.02      | -0.01      | 0.01       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/10, 0 % de BrOC   | 0.02                           | 0.02       | 0.02       | 0.04       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/10, 2.5 % de BrOC | -0.01                          | 0.00       | 0.00       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/10, 5 % de BrOC   | -0.03                          | -0.02      | -0.01      | 0.01       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/15, 0 % de BrOC   | 0.01                           | 0.01       | 0.02       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/15, 2.5 % de BrOC | -0.01                          | -0.01      | 0.00       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx4, OC/15, 5 % de BrOC   | -0.03                          | -0.02      | -0.01      | 0.01       | ✓   |

Tableau 7.6 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 12 tests de sensibilité de la sous-table BCx4 du premier jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.6 montre que deux tests de sensibilité de la sous-table BCx4 de WRF-Chem peuvent reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. Ce sont les combinaisons de mélange en aérosols carbonés BCx4, OC/10 avec 0 % de BrOC et BCx4, OC/15 avec 2.5 % de BrOC (courbe verte

avec des losanges et courbe jaune avec des ronds, respectivement, sur la figure 7.7 de l'Annexe B).

## 7.6 Annexe E (supplément) : résultats du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem

Les tableaux 7.7, 7.8 et 7.9 présentent les biais moyens obtenus sur les propriétés optiques spectrales des aérosols entre les 45 tests de sensibilité du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et les restitutions de POLDER-3/GRASP en ciel clair et de POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages. Ces tableaux retranscrivent les figures 7.8, 7.9 et 7.10 de l'Annexe C sous forme de statistiques et permettent de déterminer les solutions de WRF-Chem qui restituent le mieux les restitutions spectrales des propriétés optiques des aérosols. Ce sont celles qui obtiennent une coche verte à la fois pour l'AOD, le SSA, l'ACAOD et l'ACSSA, c'est-à-dire celles dont les biais moyens sont compris dans les incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Sous-table BCx2 :

|                                  |                             | AOD        |            |            |            |            |            |   |
|----------------------------------|-----------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                             | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP              | 1.14       | 1.00       | 0.82       | 0.64       | 0.43       | 0.33       |   |
|                                  |                             | $\pm 0.23$ | $\pm 0.20$ | $\pm 0.16$ | $\pm 0.13$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.24       | 0.19       | 0.15       | 0.09       | 0.02       | 0.00       | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.29       | 0.24       | 0.19       | 0.12       | 0.04       | 0.01       | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC     | 0.33       | 0.28       | 0.22       | 0.14       | 0.05       | 0.02       | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 0 % de BrOC   | -0.07      | -0.08      | -0.06      | -0.06      | -0.07      | -0.06      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | -0.06      | -0.06      | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.06      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 5 % de BrOC   | -0.05      | -0.05      | -0.04      | -0.05      | -0.06      | -0.06      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC     | -0.19      | -0.17      | -0.14      | -0.12      | -0.10      | -0.09      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC   | -0.17      | -0.16      | -0.13      | -0.11      | -0.09      | -0.08      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC     | -0.14      | -0.13      | -0.10      | -0.09      | -0.08      | -0.07      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC    | -0.26      | -0.23      | -0.19      | -0.16      | -0.12      | -0.10      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC  | -0.24      | -0.22      | -0.17      | -0.15      | -0.11      | -0.10      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC    | -0.21      | -0.19      | -0.15      | -0.13      | -0.10      | -0.09      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.28      | -0.25      | -0.20      | -0.17      | -0.13      | -0.11      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC  | -0.20      | -0.18      | -0.15      | -0.12      | -0.10      | -0.09      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC    | -0.22      | -0.20      | -0.16      | -0.14      | -0.11      | -0.09      | ✗ |
|                                  |                             | SSA        |            |            |            |            |            |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                             | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020      |   |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP              | 0.82       | 0.83       | 0.83       | 0.82       | 0.80       | 0.78       |   |
|                                  |                             | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.04       | 0.04       | 0.04       | 0.04       | 0.03       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.02       | 0.03       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC     | 0.00       | 0.00       | 0.00       | 0.01       | 0.01       | 0.02       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 0 % de BrOC   | 0.01       | 0.00       | 0.00       | 0.00       | -0.01      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | -0.01      | -0.02      | -0.01      | -0.01      | -0.02      | -0.01      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 5 % de BrOC   | -0.03      | -0.03      | -0.03      | -0.03      | -0.02      | -0.02      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC     | -0.01      | -0.02      | -0.02      | -0.02      | -0.03      | -0.03      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC   | -0.03      | -0.03      | -0.03      | -0.03      | -0.04      | -0.04      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC     | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.04      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC    | -0.02      | -0.03      | -0.03      | -0.03      | -0.04      | -0.01      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC  | -0.03      | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.05      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC    | -0.04      | -0.05      | -0.05      | -0.05      | -0.05      | -0.05      | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.02      | -0.03      | -0.03      | -0.04      | -0.05      | 0.00       | ✓ |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC  | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.05      | -0.05      | ✗ |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC    | -0.05      | -0.05      | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.06      | ✗ |



|                                  |                             | ACAOD                          |            |            |            |            |
|----------------------------------|-----------------------------|--------------------------------|------------|------------|------------|------------|
|                                  |                             | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865        |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC            |                                | 0.54       | 0.47       | 0.35       | 0.23       |
|                                  |                             |                                | $\pm 0.11$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ | $\pm 0.05$ |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC     |                                | -0.02      | -0.02      | -0.02      | -0.01 ✓    |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC   |                                | 0.05       | 0.04       | 0.03       | 0.01 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC     |                                | 0.13       | 0.10       | 0.07       | 0.04 ✗     |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 0 % de BrOC   |                                | -0.11      | -0.10      | -0.07      | -0.05 ✗    |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 2.5 % de BrOC |                                | -0.04      | -0.04      | -0.03      | -0.02 ✓    |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 5 % de BrOC   |                                | -0.04      | -0.03      | -0.03      | -0.02 ✓    |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC     |                                | -0.07      | -0.07      | -0.05      | -0.03 ✓    |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC   |                                | -0.13      | -0.11      | -0.08      | -0.05 ✗    |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC     |                                | -0.10      | -0.09      | -0.06      | -0.04 ✓    |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC    |                                | -0.17      | -0.15      | -0.11      | -0.07 ✗    |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC  |                                | -0.11      | -0.10      | -0.07      | -0.04 ✗    |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC    |                                | -0.17      | -0.15      | -0.11      | -0.07 ✗    |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC    |                                | -0.17      | -0.15      | -0.11      | -0.07 ✗    |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC  |                                | -0.05      | -0.05      | -0.03      | -0.02 ✓    |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC    |                                | -0.15      | -0.13      | -0.09      | -0.06 ✗    |
|                                  |                             | ACSSA                          |            |            |            |            |
|                                  |                             | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865        |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC            |                                | 0.85       | 0.85       | 0.84       | 0.81       |
|                                  |                             |                                | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2, OC/1, 0 % de BrOC     |                                | 0.03       | 0.03       | 0.04       | 0.06 ✗     |
|                                  | BCx2, OC/1, 2.5 % de BrOC   |                                | 0.01       | 0.02       | 0.03       | 0.05 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/1, 5 % de BrOC     |                                | -0.01      | 0.00       | 0.01       | 0.04 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 0 % de BrOC   |                                | 0.01       | 0.01       | 0.02       | 0.03 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 2.5 % de BrOC |                                | -0.01      | 0.00       | 0.01       | 0.03 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/2.5, 5 % de BrOC   |                                | -0.03      | -0.02      | -0.01      | 0.02 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/5, 0 % de BrOC     |                                | 0.00       | 0.00       | 0.01       | 0.02 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/5, 2.5 % de BrOC   |                                | -0.02      | -0.01      | 0.00       | 0.02 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/5, 5 % de BrOC     |                                | -0.03      | -0.03      | -0.01      | 0.01 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/10, 0 % de BrOC    |                                | -0.01      | -0.01      | 0.00       | 0.02 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/10, 2.5 % de BrOC  |                                | -0.03      | -0.02      | -0.01      | 0.01 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/10, 5 % de BrOC    |                                | -0.04      | -0.03      | -0.02      | 0.01 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/15, 0 % de BrOC    |                                | -0.01      | -0.01      | 0.00       | 0.02 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/15, 2.5 % de BrOC  |                                | -0.03      | -0.02      | -0.01      | 0.01 ✓     |
|                                  | BCx2, OC/15, 5 % de BrOC    |                                | -0.04      | -0.03      | -0.02      | 0.00 ✓     |

Tableau 7.7 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 15 tests de sensibilité de la sous-table BCx2 du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.7 montre que deux tests de sensibilité de la sous-table BCx2 de WRF-Chem peuvent reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. Ce sont les combinaisons de mélange en aérosols carbonés BCx2, OC/2.5 avec 2.5 % de BrOC et BCx2, OC/2.5 avec 5 % de BrOC (courbes violettes avec des ronds et des carrés, respectivement, sur la figure 7.8 de l'Annexe C).

Sous-table BCx2.5 :

|                                  |                                | AOD                |                    |                    |                    |                    |                    |
|----------------------------------|--------------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|
|                                  | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 443                | 490                | 565                | 670                | 865                | 1 020              |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP                 | 1.14<br>$\pm 0.23$ | 1.00<br>$\pm 0.20$ | 0.82<br>$\pm 0.16$ | 0.64<br>$\pm 0.13$ | 0.43<br>$\pm 0.09$ | 0.33<br>$\pm 0.07$ |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2.5, OC/1, 0 % de BrOC      | 0.37               | 0.31               | 0.25               | 0.17               | 0.07               | 0.04 ✗             |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 2.5 % de BrOC    | 0.46               | 0.39               | 0.31               | 0.21               | 0.10               | 0.06 ✗             |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 5 % de BrOC      | 0.44               | 0.37               | 0.30               | 0.20               | 0.09               | 0.05 ✗             |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 0 % de BrOC    | 0.07               | 0.05               | 0.04               | 0.02               | -0.01              | -0.02 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 2.5 % de BrOC  | 0.06               | 0.04               | 0.04               | 0.01               | -0.02              | -0.03 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 5 % de BrOC    | 0.15               | 0.12               | 0.10               | 0.05               | 0.01               | -0.01 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 0 % de BrOC      | -0.06              | -0.06              | -0.05              | -0.05              | -0.05              | -0.05 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 2.5 % de BrOC    | -0.05              | -0.05              | -0.04              | -0.04              | -0.05              | -0.05 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 5 % de BrOC      | -0.01              | -0.02              | -0.01              | -0.02              | -0.04              | -0.04 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 0 % de BrOC     | -0.05              | -0.05              | -0.04              | -0.05              | -0.05              | -0.05 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 2.5 % de BrOC   | -0.11              | -0.10              | -0.08              | -0.07              | -0.07              | -0.06 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 5 % de BrOC     | -0.06              | -0.05              | -0.04              | -0.04              | -0.05              | -0.05 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 0 % de BrOC     | -0.10              | -0.10              | -0.08              | -0.07              | -0.06              | -0.06 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 2.5 % de BrOC   | -0.13              | -0.12              | -0.09              | -0.08              | -0.07              | -0.06 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 5 % de BrOC     | -0.11              | -0.10              | -0.08              | -0.07              | -0.07              | -0.06 ✓            |
|                                  |                                | SSA                |                    |                    |                    |                    |                    |
|                                  | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 443                | 490                | 565                | 670                | 865                | 1 020              |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP                 | 0.82<br>$\pm 0.05$ | 0.83<br>$\pm 0.05$ | 0.83<br>$\pm 0.05$ | 0.82<br>$\pm 0.05$ | 0.80<br>$\pm 0.05$ | 0.78<br>$\pm 0.05$ |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2.5, OC/1, 0 % de BrOC      | 0.03               | 0.02               | 0.02               | 0.02               | 0.01               | 0.01 ✓             |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 2.5 % de BrOC    | 0.01               | 0.00               | 0.01               | 0.01               | 0.01               | 0.01 ✓             |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 5 % de BrOC      | -0.01              | -0.02              | -0.01              | -0.01              | 0.00               | 0.00 ✓             |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 0 % de BrOC    | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.02              | -0.02              | -0.03 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 2.5 % de BrOC  | -0.02              | -0.03              | -0.03              | -0.03              | -0.04              | -0.04 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 5 % de BrOC    | -0.04              | -0.04              | -0.04              | -0.04              | -0.04              | -0.04 ✓            |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 0 % de BrOC      | -0.02              | -0.03              | -0.03              | -0.04              | -0.05              | -0.05 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 2.5 % de BrOC    | -0.04              | -0.04              | -0.04              | -0.04              | -0.05              | -0.05 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 5 % de BrOC      | -0.05              | -0.05              | -0.05              | -0.05              | -0.06              | -0.06 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 0 % de BrOC     | -0.03              | -0.04              | -0.04              | -0.04              | -0.05              | -0.06 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 2.5 % de BrOC   | -0.04              | -0.05              | -0.05              | -0.05              | -0.06              | -0.06 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 5 % de BrOC     | -0.05              | -0.06              | -0.06              | -0.06              | -0.07              | -0.07 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 0 % de BrOC     | -0.03              | -0.04              | -0.04              | -0.05              | -0.05              | -0.06 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 2.5 % de BrOC   | -0.05              | -0.05              | -0.05              | -0.06              | -0.06              | -0.07 ✗            |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 5 % de BrOC     | -0.06              | -0.06              | -0.06              | -0.06              | -0.07              | -0.07 ✗            |

|                                  |                               | ACAOD              |                    |                    |                    |   |
|----------------------------------|-------------------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------------------|---|
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                               | 490                | 550                | 670                | 865                |   |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC              | 0.54<br>$\pm 0.11$ | 0.47<br>$\pm 0.09$ | 0.35<br>$\pm 0.07$ | 0.23<br>$\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2.5, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.25               | 0.21               | 0.15               | 0.09               | ✗ |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.14               | 0.11               | 0.08               | 0.04               | ✗ |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 5 % de BrOC     | 0.16               | 0.13               | 0.09               | 0.05               | ✗ |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 0 % de BrOC   | 0.04               | 0.03               | 0.02               | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | 0.03               | 0.02               | 0.01               | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 5 % de BrOC   | 0.01               | 0.01               | 0.00               | 0.00               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 0 % de BrOC     | -0.01              | -0.01              | -0.01              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 2.5 % de BrOC   | -0.02              | -0.02              | -0.01              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 5 % de BrOC     | 0.03               | 0.03               | 0.02               | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 0 % de BrOC    | 0.02               | 0.01               | 0.01               | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 2.5 % de BrOC  | -0.04              | -0.04              | -0.03              | -0.02              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 5 % de BrOC    | -0.03              | -0.03              | -0.02              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.04              | -0.03              | -0.02              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 2.5 % de BrOC  | -0.05              | -0.04              | -0.03              | -0.02              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 5 % de BrOC    | -0.04              | -0.03              | -0.02              | -0.02              | ✓ |
|                                  |                               | ACSSA              |                    |                    |                    |   |
| Longueur d'onde $\lambda$ (nm)   |                               | 490                | 550                | 670                | 865                |   |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC              | 0.85<br>$\pm 0.05$ | 0.85<br>$\pm 0.05$ | 0.84<br>$\pm 0.05$ | 0.81<br>$\pm 0.05$ |   |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx2.5, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.02               | 0.02               | 0.02               | 0.04               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.00               | 0.01               | 0.02               | 0.03               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/1, 5 % de BrOC     | -0.02              | -0.01              | 0.00               | 0.02               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 0 % de BrOC   | 0.00               | 0.00               | 0.00               | 0.02               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | -0.02              | -0.02              | -0.01              | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/2.5, 5 % de BrOC   | -0.04              | -0.03              | -0.02              | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 0 % de BrOC     | -0.01              | -0.01              | -0.01              | 0.01               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 2.5 % de BrOC   | -0.03              | -0.03              | -0.02              | 0.00               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/5, 5 % de BrOC     | -0.05              | -0.04              | -0.03              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 0 % de BrOC    | -0.02              | -0.02              | -0.01              | 0.00               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 2.5 % de BrOC  | -0.04              | -0.03              | -0.02              | 0.00               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/10, 5 % de BrOC    | -0.05              | -0.04              | -0.03              | -0.01              | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.02              | -0.02              | -0.01              | 0.00               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 2.5 % de BrOC  | -0.04              | -0.03              | -0.02              | 0.00               | ✓ |
|                                  | BCx2.5, OC/15, 5 % de BrOC    | -0.05              | -0.05              | -0.03              | -0.01              | ✗ |

Tableau 7.8 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 15 tests de sensibilité de la sous-table BCx2.5 du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.8 montre que trois tests de sensibilité de la sous-table BCx2.5 de WRF-Chem peuvent reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. Ce sont les combinaisons de mélange en aérosols carbonés BCx2.5, OC/2.5 avec 0, 2.5 et 5 % de BrOC (courbes violettes avec des losanges, ronds et carrés, respectivement, sur la figure 7.9 de l'Annexe C).

Sous-table BCx3 :

|                                  |                             | AOD                            |            |            |            |            |            |       |
|----------------------------------|-----------------------------|--------------------------------|------------|------------|------------|------------|------------|-------|
|                                  |                             | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020 |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP              | 1.14                           | 1.00       | 0.82       | 0.64       | 0.43       | 0.33       |       |
|                                  |                             | $\pm 0.23$                     | $\pm 0.20$ | $\pm 0.16$ | $\pm 0.13$ | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ |       |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.62                           | 0.52       | 0.42       | 0.29       | 0.15       | 0.10       | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.58                           | 0.49       | 0.40       | 0.28       | 0.14       | 0.09       | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/1, 5 % de BrOC     | 0.59                           | 0.50       | 0.41       | 0.28       | 0.14       | 0.09       | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 0 % de BrOC   | 0.20                           | 0.16       | 0.13       | 0.09       | 0.03       | 0.01       | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | 0.22                           | 0.18       | 0.15       | 0.10       | 0.04       | 0.01       | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 5 % de BrOC   | 0.24                           | 0.20       | 0.16       | 0.11       | 0.04       | 0.02       | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/5, 0 % de BrOC     | 0.06                           | 0.05       | 0.04       | 0.02       | -0.01      | -0.02      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/5, 2.5 % de BrOC   | 0.08                           | 0.07       | 0.06       | 0.03       | 0.00       | -0.01      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/5, 5 % de BrOC     | 0.10                           | 0.08       | 0.07       | 0.04       | 0.00       | -0.01      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/10, 0 % de BrOC    | 0.01                           | 0.01       | 0.01       | -0.01      | -0.02      | -0.03      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/10, 2.5 % de BrOC  | 0.11                           | 0.09       | 0.08       | 0.05       | 0.01       | -0.01      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/10, 5 % de BrOC    | 0.06                           | 0.04       | 0.04       | 0.02       | -0.01      | -0.02      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.01                          | -0.02      | -0.01      | -0.02      | -0.03      | -0.03      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/15, 2.5 % de BrOC  | 0.03                           | 0.02       | 0.02       | 0.00       | -0.02      | -0.03      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/15, 5 % de BrOC    | 0.06                           | 0.04       | 0.04       | 0.02       | -0.01      | -0.02      | ✓     |
|                                  |                             | SSA                            |            |            |            |            |            |       |
|                                  |                             | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 443        | 490        | 565        | 670        | 865        | 1 020 |
| Obs.                             | POLDER-3/GRASP              | 0.82                           | 0.83       | 0.83       | 0.82       | 0.80       | 0.78       |       |
|                                  |                             | $\pm 0.05$                     | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |       |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.02                           | 0.01       | 0.01       | 0.01       | 0.00       | 0.00       | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.00                           | -0.01      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | -0.01      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/1, 5 % de BrOC     | -0.02                          | -0.03      | -0.02      | -0.02      | -0.02      | -0.02      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 0 % de BrOC   | -0.01                          | -0.02      | -0.02      | -0.03      | -0.04      | -0.04      | ✓     |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | -0.03                          | -0.04      | -0.04      | -0.04      | -0.05      | -0.05      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 5 % de BrOC   | -0.05                          | -0.05      | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.06      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/5, 0 % de BrOC     | -0.03                          | -0.04      | -0.04      | -0.05      | -0.06      | -0.06      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/5, 2.5 % de BrOC   | -0.05                          | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.06      | -0.07      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/5, 5 % de BrOC     | -0.06                          | -0.06      | -0.06      | -0.06      | -0.07      | -0.07      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/10, 0 % de BrOC    | -0.04                          | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.07      | -0.07      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/10, 2.5 % de BrOC  | -0.05                          | -0.06      | -0.06      | -0.06      | -0.07      | -0.08      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/10, 5 % de BrOC    | -0.06                          | -0.07      | -0.07      | -0.07      | -0.08      | -0.08      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.04                          | -0.05      | -0.05      | -0.06      | -0.07      | -0.07      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/15, 2.5 % de BrOC  | -0.05                          | -0.06      | -0.06      | -0.07      | -0.08      | -0.08      | ✗     |
|                                  | BCx3, OC/15, 5 % de BrOC    | -0.06                          | -0.07      | -0.07      | -0.07      | -0.08      | -0.08      | ✗     |

|                                  |                             | ACAOD                          |            |            |            |     |
|----------------------------------|-----------------------------|--------------------------------|------------|------------|------------|-----|
|                                  |                             | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865 |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC            | 0.54                           | 0.47       | 0.35       | 0.23       |     |
|                                  |                             | $\pm 0.11$                     | $\pm 0.09$ | $\pm 0.07$ | $\pm 0.05$ |     |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.29                           | 0.24       | 0.17       | 0.10       | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/1, 2.5 % de BrOC   | 0.26                           | 0.21       | 0.15       | 0.09       | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/1, 5 % de BrOC     | 0.22                           | 0.18       | 0.12       | 0.07       | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 0 % de BrOC   | 0.14                           | 0.11       | 0.08       | 0.05       | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | 0.11                           | 0.09       | 0.07       | 0.04       | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 5 % de BrOC   | 0.07                           | 0.06       | 0.04       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/5, 0 % de BrOC     | 0.09                           | 0.07       | 0.05       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/5, 2.5 % de BrOC   | 0.07                           | 0.06       | 0.04       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/5, 5 % de BrOC     | 0.08                           | 0.07       | 0.05       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/10, 0 % de BrOC    | 0.03                           | 0.02       | 0.02       | 0.01       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/10, 2.5 % de BrOC  | 0.05                           | 0.04       | 0.03       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/10, 5 % de BrOC    | 0.06                           | 0.05       | 0.04       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/15, 0 % de BrOC    | 0.01                           | 0.00       | 0.01       | 0.00       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/15, 2.5 % de BrOC  | 0.05                           | 0.04       | 0.03       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/15, 5 % de BrOC    | 0.07                           | 0.06       | 0.04       | 0.03       | ✓   |
|                                  |                             | ACSSA                          |            |            |            |     |
|                                  |                             | Longueur d'onde $\lambda$ (nm) | 490        | 550        | 670        | 865 |
| Obs.                             | POLDER-3/AERO-AC            | 0.85                           | 0.85       | 0.84       | 0.81       |     |
|                                  |                             | $\pm 0.05$                     | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ | $\pm 0.05$ |     |
| Tests de sensibilité de WRF-Chem | BCx3, OC/1, 0 % de BrOC     | 0.01                           | 0.01       | 0.02       | 0.03       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/1, 2.5 % de BrOC   | -0.01                          | 0.00       | 0.01       | 0.02       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/1, 5 % de BrOC     | -0.03                          | -0.02      | -0.01      | 0.01       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 0 % de BrOC   | -0.01                          | -0.01      | 0.00       | 0.01       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 2.5 % de BrOC | -0.03                          | -0.02      | -0.01      | 0.00       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/2.5, 5 % de BrOC   | -0.05                          | -0.04      | -0.03      | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/5, 0 % de BrOC     | -0.02                          | -0.02      | -0.01      | 0.00       | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/5, 2.5 % de BrOC   | -0.04                          | -0.03      | -0.02      | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/5, 5 % de BrOC     | -0.05                          | -0.05      | -0.04      | -0.02      | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/10, 0 % de BrOC    | -0.03                          | -0.03      | -0.02      | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/10, 2.5 % de BrOC  | -0.04                          | -0.04      | -0.03      | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/10, 5 % de BrOC    | -0.06                          | -0.05      | -0.04      | -0.02      | ✗   |
|                                  | BCx3, OC/15, 0 % de BrOC    | -0.03                          | -0.03      | -0.02      | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/15, 2.5 % de BrOC  | -0.04                          | -0.04      | -0.03      | -0.01      | ✓   |
|                                  | BCx3, OC/15, 5 % de BrOC    | -0.06                          | -0.05      | -0.04      | -0.02      | ✗   |

Tableau 7.9 : Biais moyens calculés entre les propriétés optiques spectrales simulées par les 15 tests de sensibilité de la sous-table BCx3 du second jeu de simulations numériques de WRF-Chem et celles restituées par POLDER-3/GRASP en ciel clair (AOD et SSA) et POLDER-3/AERO-AC au-dessus des nuages (ACAOD et ACSSA). Le code couleur vert, rouge et jaune signifie que les données issues des simulations numériques de WRF-Chem sont respectivement comprises, en dehors de la limite supérieure et en dehors de la limite inférieure des incertitudes associées aux données restituées par POLDER-3.

Le tableau 7.9 montre qu'aucun test de sensibilité de la sous-table BCx3 de WRF-Chem ne peut reproduire les restitutions de POLDER-3 à la fois en ciel clair et au-dessus des nuages. La quantité d'aérosols de feux de biomasse émise et transportée ainsi que l'absorption des aérosols sont généralement plus fortes que celles restituées par POLDER-3.



## 8 Bibliographie

- Ackerman, Andy S, OB Toon, DE Stevens, AJ Heymsfield, V Ramanathan, et EJ Welton. 2000. « Reduction of tropical cloudiness by soot ». *Science* 288 (5468): 1042-47.
- Ackerman, Thomas P., et Owen B. Toon. 1981. « Absorption of Visible Radiation in Atmosphere Containing Mixtures of Absorbing and Nonabsorbing Particles ». *Applied Optics* 20 (20): 3661-68. <https://doi.org/10.1364/AO.20.003661>.
- Adachi, Kouji, et Peter R. Buseck. 2011. « Atmospheric Tar Balls from Biomass Burning in Mexico ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 116 (D5). <https://doi.org/10.1029/2010JD015102>.
- Adebisi, Adeyemi A., et Paquita Zuidema. 2016. « The Role of the Southern African Easterly Jet in Modifying the Southeast Atlantic Aerosol and Cloud Environments ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 142 (697): 1574-89. <https://doi.org/10.1002/qj.2765>.
- Ahn, Changwoo, Omar Torres, et Pawan K. Bhartia. 2008. « Comparison of Ozone Monitoring Instrument UV Aerosol Products with Aqua/Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer and Multiangle Imaging Spectroradiometer Observations in 2006 ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D16). <https://doi.org/10.1029/2007JD008832>.
- Aitchison, John, et James AC Brown. 1957. « The lognormal distribution with special reference to its uses in economics ».
- Akagi, S. K., R. J. Yokelson, C. Wiedinmyer, M. J. Alvarado, J. S. Reid, T. Karl, J. D. Crounse, et P. O. Wennberg. 2011. « Emission Factors for Open and Domestic Biomass Burning for Use in Atmospheric Models ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (9): 4039-72. <https://doi.org/10.5194/acp-11-4039-2011>.
- Albrecht, Bruce A. 1989. « Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness ». *Science* 245 (4923): 1227-30. <https://doi.org/10.1126/science.245.4923.1227>.
- Alexander, Duncan T. L., Peter A. Crozier, et James R. Anderson. 2008. « Brown Carbon Spheres in East Asian Outflow and Their Optical Properties ». *Science* 321 (5890): 833-36. <https://doi.org/10.1126/science.1155296>.
- Allen, Dale J., Prasad Kasibhatla, Anne M. Thompson, Richard B. Rood, Bruce G. Doddridge, Kenneth E. Pickering, Robert D. Hudson, et Shian-Jiann Lin. 1996. « Transport-Induced Interannual Variability of Carbon Monoxide Determined Using a Chemistry and Transport Model ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 101 (D22): 28655-69. <https://doi.org/10.1029/96JD02984>.
- Andersen, Hendrik, et Jan Cermak. 2018. « First Fully Diurnal Fog and Low Cloud Satellite Detection Reveals Life Cycle in the Namib ». *Atmospheric Measurement Techniques* 11 (10): 5461-70. <https://doi.org/10.5194/amt-11-5461-2018>.
- Anderson, James Richard. 1976. *A Land Use and Land Cover Classification System for Use with Remote Sensor Data*. U.S. Government Printing Office.
- Anderson, Theodore L., Robert J. Charlson, Nicolas Bellouin, Olivier Boucher, Mian Chin, Sundar A. Christopher, Jim Haywood, et al. 2005. « An “A-Train” Strategy for Quantifying Direct Climate Forcing by Anthropogenic Aerosols ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 86 (12): 1795-1810. <https://doi.org/10.1175/BAMS-86-12-1795>.
- Andreae, Meinrat O. 1991. « Biomass Burning - Its History, Use, and Distribution and Its Impact on Environmental Quality and Global Climate ». *Global Biomass Burning -*

- Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*.  
[http://inis.iaea.org/Search/search.aspx?orig\\_q=RN:24010477](http://inis.iaea.org/Search/search.aspx?orig_q=RN:24010477).
- . 2019. « Emission of Trace Gases and Aerosols from Biomass Burning – an Updated Assessment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (13): 8523-46.  
<https://doi.org/10.5194/acp-19-8523-2019>.
- Andreae, Meinrat O., et P. Merlet. 2001. « Emission of Trace Gases and Aerosols from Biomass Burning ». *Global Biogeochemical Cycles* 15 (4): 955-66.  
<https://doi.org/10.1029/2000GB001382>.
- Ångström, Anders. 1929. « On the Atmospheric Transmission of Sun Radiation and on Dust in the Air ». *Geografiska Annaler* 11 (2): 156-66.  
<https://doi.org/10.1080/20014422.1929.11880498>.
- Apte, Joshua S., Michael Brauer, Aaron J. Cohen, Majid Ezzati, et C. Arden Pope. 2018. « Ambient PM<sub>2.5</sub> Reduces Global and Regional Life Expectancy ». *Environmental Science & Technology Letters* 5 (9): 546-51.  
<https://doi.org/10.1021/acs.estlett.8b00360>.
- Arimoto, R., Y. J. Kim, Y. P. Kim, P. K. Quinn, T. S. Bates, T. L. Anderson, S. Gong, et al. 2006. « Characterization of Asian Dust during ACE-Asia ». *Global and Planetary Change, Monitoring and Modelling of Asian Dust Storms*, 52 (1): 23-56.  
<https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2006.02.013>.
- Arola, A. Schuster. 2011. « Inferring Absorbing Organic Carbon Content from AERONET Data ». <https://ntrs.nasa.gov/search.jsp?R=20110007909>.
- Atwater, Marshall A. 1970. « Planetary albedo changes due to aerosols ». *Science* 170 (3953): 64-66.
- Bagnold, Ralph A. 1941. « The Physics Of Blown Sand And Desert Dunes », 1.
- Bahadur, Ranjit, Puppala S. Praveen, Yangyang Xu, et V. Ramanathan. 2012. « Solar Absorption by Elemental and Brown Carbon Determined from Spectral Observations ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109 (43): 17366-71.  
<https://doi.org/10.1073/pnas.1205910109>.
- Baklanov, A., K. Schlünzen, P. Suppan, J. Baldasano, D. Brunner, S. Aksoyoglu, G. Carmichael, et al. 2014. « Online Coupled Regional Meteorology Chemistry Models in Europe: Current Status and Prospects ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (1): 317-98. <https://doi.org/10.5194/acp-14-317-2014>.
- Balkanski, Yves J., Daniel J. Jacob, Geraldine M. Gardner, William C. Graustein, et Karl K. Turekian. 1993. « Transport and Residence Times of Tropospheric Aerosols Inferred from a Global Three-Dimensional Simulation of 210Pb ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 98 (D11): 20573-86. <https://doi.org/10.1029/93JD02456>.
- Barnard, J. C., J. D. Fast, G. Paredes-Miranda, W. P. Arnott, et A. Laskin. 2010. « Technical Note: Evaluation of the WRF-Chem “Aerosol Chemical to Aerosol Optical Properties” Module Using Data from the MILAGRO Campaign ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (15): 7325-40. <https://doi.org/10.5194/acp-10-7325-2010>.
- Barnard, J. C., R. Volkamer, et E. I. Kassianov. 2008. « Estimation of the Mass Absorption Cross Section of the Organic Carbon Component of Aerosols in the Mexico City Metropolitan Area ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 8 (22): 6665-79.  
<https://doi.org/10.5194/acp-8-6665-2008>.
- Belly, Pierre-Yves. 1964. « Sand movement by wind. United States Army Corps of Engineers ». *Coastal Engineering Research Center, Report*, n° 1: 80.
- Bergstrom, R. W. 2004. « Spectral Absorption of Solar Radiation by Aerosols during ACE-Asia ». *Journal of Geophysical Research* 109 (D19): D19S15.  
<https://doi.org/10.1029/2003JD004467>.

- Bergstrom, R. W., P. Pilewskie, P. B. Russell, J. Redemann, T. C. Bond, P. K. Quinn, et B. Sierau. 2007. « Spectral Absorption Properties of Atmospheric Aerosols ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 7 (23): 5937-43. <https://doi.org/10.5194/acp-7-5937-2007>.
- Bergstrom, Robert W, Peter Pilewskie, Beat Schmid, et Philip B Russell. 2002. « Comparison of measured and predicted aerosol radiative effects during SAFARI 2000 ». *RECON*, n° 20020064493.
- Bian, Huisheng, Mian Chin, Didier A. Hauglustaine, Michael Schulz, Gunnar Myhre, Susanne E. Bauer, Marianne T. Lund, et al. 2017. « Investigation of Global Particulate Nitrate from the AeroCom Phase III Experiment ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 17 (21): 12911-40. <https://doi.org/10.5194/acp-17-12911-2017>.
- Bohren, Craig F, et Donald R Huffman. 1983. « Absorption and scattering by a sphere ». *Absorption and scattering of light by small particles*, 82-129.
- Bond, T. C., S. J. Doherty, D. W. Fahey, P. M. Forster, T. Berntsen, B. J. DeAngelo, M. G. Flanner, et al. 2013. « Bounding the Role of Black Carbon in the Climate System: A Scientific Assessment: BLACK CARBON IN THE CLIMATE SYSTEM ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118 (11): 5380-5552. <https://doi.org/10.1002/jgrd.50171>.
- Bond, Tami C., et Robert W. Bergstrom. 2006. « Light Absorption by Carbonaceous Particles: An Investigative Review ». *Aerosol Science and Technology* 40 (1): 27-67. <https://doi.org/10.1080/02786820500421521>.
- Bond, Tami C. 2001. « Spectral Dependence of Visible Light Absorption by Carbonaceous Particles Emitted from Coal Combustion ». *Geophysical Research Letters* 28 (21): 4075-78. <https://doi.org/10.1029/2001GL013652>.
- Bond, Tami C., Gazala Habib, et Robert W. Bergstrom. 2006. « Limitations in the Enhancement of Visible Light Absorption Due to Mixing State ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (D20). <https://doi.org/10.1029/2006JD007315>.
- Bond, Tami C., David G. Streets, Kristen F. Yarber, Sibyl M. Nelson, Jung-Hun Woo, et Zbigniew Klimont. 2004. « A Technology-Based Global Inventory of Black and Organic Carbon Emissions from Combustion ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 109 (D14). <https://doi.org/10.1029/2003JD003697>.
- Boucher, O, et J Haywood. 2001. « On summing the components of radiative forcing of climate change ». *Climate Dynamics* 18 (3-4): 297-302.
- Boucher, O., D. Randall, P. Artaxo, C. Bretherton, G. Feingold, P. Forster, V.-M. Kerminen, Y. Kondo, H. Liao, U. Lohmann, P. Rasch, S.K. Satheesh, S. Sherwood, B. Stevens and X.Y. Zhang, 2013: Clouds and Aerosols. In: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Boucher, Olivier. 2012. « Les aérosols atmosphériques ». In *Aérosols atmosphériques: Propriétés et impacts climatiques*, édité par Olivier Boucher, 7-16. Ingénierie et développement durable. Paris: Springer Paris. [https://doi.org/10.1007/978-2-8178-0055-4\\_2](https://doi.org/10.1007/978-2-8178-0055-4_2).
- . 2015. « Atmospheric Aerosols ». In *Atmospheric Aerosols: Properties and Climate Impacts*, édité par Olivier Boucher, 9-24. Dordrecht: Springer Netherlands. [https://doi.org/10.1007/978-94-017-9649-1\\_2](https://doi.org/10.1007/978-94-017-9649-1_2).
- Boucher, Olivier, et D. Tanré. 2000. « Estimation of the aerosol perturbation to the Earth's Radiative Budget over oceans using POLDER satellite aerosol retrievals ». *Geophysical Research Letters* 27 (avril): 1103-6. <https://doi.org/10.1029/1999GL010963>.

- Bréon, François-Marie, et Philippe Goloub. 1998. « Cloud Droplet Effective Radius from Spaceborne Polarization Measurements ». *Geophysical Research Letters* 25 (11): 1879-82. <https://doi.org/10.1029/98GL01221>.
- Brioude, J, OR Cooper, G Feingold, M Trainer, SR Freitas, D Kowal, JK Ayers, E Prins, P Minnis, et SA McKeen. 2009. « Effect of biomass burning on marine stratocumulus clouds off the California coast ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (22): 8841-56.
- Brown, Hunter, Xiaohong Liu, Yan Feng, Yiquan Jiang, Mingxuan Wu, Zheng Lu, Chenglai Wu, Shane Murphy, et Rudra Pokhrel. 2018. « Radiative Effect and Climate Impacts of Brown Carbon with the Community Atmosphere Model (CAM5) ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (24): 17745-68. <https://doi.org/10.5194/acp-18-17745-2018>.
- Buriez, J. C., C. Vanbauce, F. Parol, P. Goloub, M. Herman, B. Bonnel, Y. Fouquart, P. Couvert, et G. Seze. 1997. « Cloud detection and derivation of cloud properties from POLDER ». *International Journal of Remote Sensing* 18 (13): 2785-2813. <https://doi.org/10.1080/014311697217332>.
- Burrows, SM, T Butler, P Jöckel, H Tost, A Kerkweg, U Pöschl, et MG Lawrence. 2009. « Bacteria in the global atmosphere—Part 2: Modeling of emissions and transport between different ecosystems ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (23): 9281-97.
- Cahoon, Donald R., Brian J. Stocks, Joel S. Levine, Wesley R. Cofer, et Katherine P. O'Neill. 1992. « Seasonal Distribution of African Savanna Fires ». *Nature* 359 (6398): 812-15. <https://doi.org/10.1038/359812a0>.
- Capes, G., B. Johnson, G. McFiggans, P. I. Williams, J. Haywood, et H. Coe. 2008. « Aging of Biomass Burning Aerosols over West Africa: Aircraft Measurements of Chemical Composition, Microphysical Properties, and Emission Ratios ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D23). <https://doi.org/10.1029/2008JD009845>.
- Carrer, D., X. Ceamanos, B. Six, et J.-L. Roujean. 2014. « AERUS-GEO: A Newly Available Satellite-Derived Aerosol Optical Depth Product over Europe and Africa ». *Geophysical Research Letters* 41 (21): 7731-38. <https://doi.org/10.1002/2014GL061707>.
- Carrer, Dominique, Jean-Louis Roujean, Olivier Hautecoeur, et Thierry Elias. 2010. « Daily Estimates of Aerosol Optical Thickness over Land Surface Based on a Directional and Temporal Analysis of SEVIRI MSG Visible Observations ». *Journal of Geophysical Research* 115 (D10): D10208. <https://doi.org/10.1029/2009JD012272>.
- Chand, D., T. L. Anderson, R. Wood, R. J. Charlson, Y. Hu, Z. Liu, et M. Vaughan. 2008. « Quantifying Above-Cloud Aerosol Using Spaceborne Lidar for Improved Understanding of Cloudy-Sky Direct Climate Forcing ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D13). <https://doi.org/10.1029/2007JD009433>.
- Chandrasekhar, S. 1950a. « 1960. Radiative Transfer ». *Dever, New York*.
- . 1950b. « Radiative Transfer. Clarendon ».
- Charlson, RJ, et MJ Pilat. 1969. « Climate: The influence of aerosols ». *Journal of Applied Meteorology* 8 (6): 1001-2.
- Chen, Cheng, Oleg Dubovik, David Fuertes, Pavel Litvinov, Tatyana Lapyonok, Anton Lopatin, Fabrice Ducos, et al. 2020. « Validation of GRASP Algorithm Product from POLDER/PARASOL Data and Assessment of Multi-Angular Polarimetry Potential for Aerosol Monitoring ». *Earth System Science Data Discussions*, août, 1-108. <https://doi.org/10.5194/essd-2020-224>.
- Chen, Cheng, Oleg Dubovik, Daven K. Henze, Mian Chin, Tatyana Lapyonok, Gregory L. Schuster, Fabrice Ducos, et al. 2019. « Constraining Global Aerosol Emissions Using POLDER/PARASOL Satellite Remote Sensing Observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (23): 14585-606. <https://doi.org/10.5194/acp-19-14585-2019>.

- Chen, Cheng, Oleg Dubovik, Daven K. Henze, Tatyana Lapyonak, Mian Chin, Fabrice Ducos, Pavel Litvinov, Xin Huang, et Lei Li. 2018. « Retrieval of Desert Dust and Carbonaceous Aerosol Emissions over Africa from POLDER/PARASOL Products Generated by the GRASP Algorithm ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (16): 12551-80. <https://doi.org/10.5194/acp-18-12551-2018>.
- Chen, Y, et T C Bond. 2010. « Light Absorption by Organic Carbon from Wood Combustion ». *Atmos. Chem. Phys.*, 15.
- Cheng, Yuan, Guenter Engling, Hans Moosmüller, W. Patrick Arnott, L.-W. Antony Chen, Cyle E. Wold, Wei Min Hao, et Ke-bin He. 2016. « Light Absorption by Biomass Burning Source Emissions ». *Atmospheric Environment* 127 (février): 347-54. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.12.045>.
- Chepfer, Hélène, Gérard Brogniez, Philippe Goloub, François M. Bréon, et Pierre H. Flamant. 1999. « Observations of horizontally oriented ice crystals in cirrus clouds with POLDER-1/ADEOS-1 ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 63 (2): 521-43. [https://doi.org/10.1016/S0022-4073\(99\)00036-9](https://doi.org/10.1016/S0022-4073(99)00036-9).
- Chin, Mian, Paul Ginoux, Stefan Kinne, Omar Torres, Brent N. Holben, Bryan N. Duncan, Randall V. Martin, Jennifer A. Logan, Akiko Higurashi, et Teruyuki Nakajima. 2002. « Tropospheric Aerosol Optical Thickness from the GOCART Model and Comparisons with Satellite and Sun Photometer Measurements ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 59 (3): 461-83. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(2002\)059<0461:TAOTFT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<0461:TAOTFT>2.0.CO;2).
- Chin, Mian, Richard B. Rood, Shian-Jiann Lin, Jean-Francois Müller, et Anne M. Thompson. 2000a. « Atmospheric Sulfur Cycle Simulated in the Global Model GOCART: Model Description and Global Properties ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105 (D20): 24671-87. <https://doi.org/10.1029/2000JD900384>.
- Chin, Mian, Dennis L. Savoie, Barry J. Huebert, Alan R. Bandy, Donald C. Thornton, Timothy S. Bates, Patricia K. Quinn, Eric S. Saltzman, et Warren J. De Bruyn. 2000b. « Atmospheric Sulfur Cycle Simulated in the Global Model GOCART: Comparison with Field Observations and Regional Budgets ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105 (D20): 24689-712. <https://doi.org/10.1029/2000JD900385>.
- Chou, Ming-Dah, et Max J Suarez. 1994. « AN EFFICIENT THERMAL INFRARED RADIATION PARAMETERIZATION FOR USE IN GENERAL CIRCULATION MODELS », 92.
- Chuvieco, Emilio, Chao Yue, Angelika Heil, Florent Mouillot, Itziar Alonso-Canas, Marc Padilla, Jose Miguel Pereira, Duarte Oom, et Kevin Tansey. 2016. « A New Global Burned Area Product for Climate Assessment of Fire Impacts ». *Global Ecology and Biogeography* 25 (5): 619-29. <https://doi.org/10.1111/geb.12440>.
- Ciais, Philippe, Christopher Sabine, Govindasamy Bala, Laurent Bopp, Victor Brovkin, Josep Canadell, Abha Chhabra, Ruth DeFries, James Galloway, et Martin Heimann. 2014. « Carbon and other biogeochemical cycles ». In *Climate change 2013: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 465-570. Cambridge University Press.
- Cooke, W. F., C. Liousse, H. Cachier, et J. Feichter. 1999. « Construction of a 1° × 1° Fossil Fuel Emission Data Set for Carbonaceous Aerosol and Implementation and Radiative Impact in the ECHAM4 Model ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 104 (D18): 22137-62. <https://doi.org/10.1029/1999JD900187>.
- Costantino, L., et F.-M. Bréon. 2013. « Aerosol Indirect Effect on Warm Clouds over South-East Atlantic, from Co-Located MODIS and CALIPSO Observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (1): 69-88. <https://doi.org/10.5194/acp-13-69-2013>.

- Cross, Eben S., Timothy B. Onasch, Adam Ahern, William Wrobel, Jay G. Slowik, Jason Olfert, Daniel A. Lack, et al. 2010. « Soot Particle Studies—Instrument Inter-Comparison—Project Overview ». *Aerosol Science and Technology* 44 (8): 592-611. <https://doi.org/10.1080/02786826.2010.482113>.
- D’Almeida, Guillaume A., Peter Koepke, et Eric P Shettle. 1991. *Atmospheric aerosols: global climatology and radiative characteristics*. A Deepak Pub.
- Dave, J. V., et Carlton L. Mateer. 1967. « A Preliminary Study on the Possibility of Estimating Total Atmospheric Ozone from Satellite Measurements ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 24 (4): 414-27. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1967\)024<0414:APSOTP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1967)024<0414:APSOTP>2.0.CO;2).
- Deaconu, L. T., F. Waquet, D. Josset, N. Ferlay, F. Peers, F. Thieuleux, F. Ducos, et al. 2017. « Consistency of Aerosols above Clouds Characterization from A-Train Active and Passive Measurements ». *Atmospheric Measurement Techniques* 10 (9). <https://ora.ox.ac.uk/objects/uuid:4c22f480-c92d-408f-a63e-4199e029b523>.
- Deaconu, Lucia T., Nicolas Ferlay, Fabien Waquet, Fanny Peers, François Thieuleux, et Philippe Goloub. 2019. « Satellite Inference of Water Vapour and Above-Cloud Aerosol Combined Effect on Radiative Budget and Cloud-Top Processes in the Southeastern Atlantic Ocean ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (17): 11613-34. <https://doi.org/10.5194/acp-19-11613-2019>.
- Dennekamp Martine, Straney Lahn D., Erbas Bircan, Abramson Michael J., Keywood Melita, Smith Karen, Sim Malcolm R., et al. 2015. « Forest Fire Smoke Exposures and Out-of-Hospital Cardiac Arrests in Melbourne, Australia: A Case-Crossover Study ». *Environmental Health Perspectives* 123 (10): 959-64. <https://doi.org/10.1289/ehp.1408436>.
- Dentener, Frank, Jerome Drevet, Jean-François Lamarque, Isabelle Bey, Bas Eickhout, Arlene M Fiore, Didier Hauglustaine, Larry W Horowitz, M Krol, et UC Kulshrestha. 2006. « Nitrogen and sulfur deposition on regional and global scales: A multimodel evaluation ». *Global biogeochemical cycles* 20 (4).
- Deschamps, P.-, F.- Breon, M. Leroy, A. Podaire, A. Bricaud, J.- Buriez, et G. Seze. 1994. « The POLDER mission: instrument characteristics and scientific objectives ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 32 (3): 598-615. <https://doi.org/10.1109/36.297978>.
- Deschamps, P. Y., M. Hennan, A. Podaire, M. Leroy, M. Laporte, et P. Vermande. 1990. « A Spatial Instrument For The Observation Of Polarization And Directionality Of Earth Reflectances: Polder ». In *10th Annual International Symposium on Geoscience and Remote Sensing*, 1769-74. <https://doi.org/10.1109/IGARSS.1990.688858>.
- Deuzé, J. L., F. M Bréon, P. Y Deschamps, C Devaux, M Herman, A Podaire, et J. L Roujean. 1993. « Analysis of the POLDER (POLarization and directionality of earth’s reflectances) airborne instrument observations over land surfaces ». *Remote Sensing of Environment* 45 (2): 137-54. [https://doi.org/10.1016/0034-4257\(93\)90038-Y](https://doi.org/10.1016/0034-4257(93)90038-Y).
- Deuzé, J. L., F. M. Bréon, C. Devaux, P. Goloub, M. Herman, B. Lafrance, F. Maignan, et al. 2001. « Remote Sensing of Aerosols over Land Surfaces from POLDER-ADEOS-1 Polarized Measurements ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D5): 4913-26. <https://doi.org/10.1029/2000JD900364>.
- Deuzé, J. L., M. Herman, P. Goloub, D. Tanré, et A. Marchand. 1999. « Characterization of Aerosols over Ocean from POLDER/ADEOS-1 ». *Geophysical Research Letters* 26 (10): 1421-24. <https://doi.org/10.1029/1999GL900168>.
- Deuzé, J. L., M. Herman, et R. Santer. 1989. « Fourier series expansion of the transfer equation in the atmosphere-ocean system ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 41 (6): 483-94. [https://doi.org/10.1016/0022-4073\(89\)90118-0](https://doi.org/10.1016/0022-4073(89)90118-0).

- Dubovik, O., M. Herman, A. Holdak, T. Lapyonok, D. Tanré, J. L. Deuzé, F. Ducos, A. Sinyuk, et A. Lopatin. 2011. « Statistically Optimized Inversion Algorithm for Enhanced Retrieval of Aerosol Properties from Spectral Multi-Angle Polarimetric Satellite Observations ». *Atmospheric Measurement Techniques* 4 (5): 975-1018. <https://doi.org/10.5194/amt-4-975-2011>.
- Dubovik, O., A. Smirnov, B. N. Holben, M. D. King, Y. J. Kaufman, T. F. Eck, et I. Slutsker. 2000. « Accuracy Assessments of Aerosol Optical Properties Retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and Sky Radiance Measurements ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105 (D8): 9791-9806. <https://doi.org/10.1029/2000JD900040>.
- Dubovik, Oleg. 2004. « Optimization of Numerical Inversion in Photopolarimetric Remote Sensing ». In *Photopolarimetry in Remote Sensing*, édité par Gordon Videen, Yaroslav Yatskiv, et Michael Mishchenko, 65-106. NATO Science Series II: Mathematics, Physics and Chemistry. Dordrecht: Springer Netherlands. [https://doi.org/10.1007/1-4020-2368-5\\_3](https://doi.org/10.1007/1-4020-2368-5_3).
- Dubovik, Oleg, Brent Holben, Thomas F. Eck, Alexander Smirnov, Yoram J. Kaufman, Michael D. King, Didier Tanré, et Ilya Slutsker. 2002. « Variability of Absorption and Optical Properties of Key Aerosol Types Observed in Worldwide Locations ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 59 (3): 590-608. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(2002\)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2).
- Dubovik, Oleg, et Michael D. King. 2000. « A Flexible Inversion Algorithm for Retrieval of Aerosol Optical Properties from Sun and Sky Radiance Measurements ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105 (D16): 20673-96. <https://doi.org/10.1029/2000JD900282>.
- Dubovik, Oleg, Tatyana Lapyonok, Pavel Litvinov, Maurice Herman, David Fuertes, Fabrice Ducos, Benjamin Torres, et al. 2014. « GRASP: A Versatile Algorithm for Characterizing the Atmosphere ». *SPIE Newsroom*, septembre. <https://doi.org/10.1117/2.1201408.005558>.
- Dubovik, Oleg, Alexander Sinyuk, Tatyana Lapyonok, Brent N. Holben, Michael Mishchenko, Ping Yang, Tom F. Eck, et al. 2006. « Application of Spheroid Models to Account for Aerosol Particle Nonsphericity in Remote Sensing of Desert Dust ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (D11). <https://doi.org/10.1029/2005JD006619>.
- Eck, T. F., B. N. Holben, J. S. Reid, O. Dubovik, A. Smirnov, N. T. O'Neill, I. Slutsker, et S. Kinne. 1999. « Wavelength Dependence of the Optical Depth of Biomass Burning, Urban, and Desert Dust Aerosols ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 104 (D24): 31333-49. <https://doi.org/10.1029/1999JD900923>.
- Eck, T. F., B. N. Holben, J. S. Reid, M. M. Mukelabai, S. J. Piketh, O. Torres, H. T. Jethva, et al. 2013. « A Seasonal Trend of Single Scattering Albedo in Southern African Biomass-Burning Particles: Implications for Satellite Products and Estimates of Emissions for the World's Largest Biomass-Burning Source ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118 (12): 6414-32. <https://doi.org/10.1002/jgrd.50500>.
- Emmons, L. K., S. R. Arnold, S. A. Monks, V. Huijnen, S. Tilmes, K. S. Law, J. L. Thomas, et al. 2015. « The POLARCAT Model Intercomparison Project (POLMIP): Overview and Evaluation with Observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (12): 6721-44. <https://doi.org/10.5194/acp-15-6721-2015>.
- Emmons, L. K., S. Walters, P. G. Hess, J.-F. Lamarque, G. G. Pfister, D. Fillmore, C. Granier, et al. 2010. « Description and Evaluation of the Model for Ozone and Related Chemical Tracers, Version 4 (MOZART-4) ». *GEOSCIENTIFIC MODEL DEVELOPMENT* 3 (1): 43-67. <https://doi.org/10.5194/gmd-3-43-2010>.

- Ervens, B., B. J. Turpin, et R. J. Weber. 2011. « Secondary Organic Aerosol Formation in Cloud Droplets and Aqueous Particles (AqSOA): A Review of Laboratory, Field and Model Studies ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (21): 11069-102. <https://doi.org/10.5194/acp-11-11069-2011>.
- Evans, Mathew, Peter Knippertz, Akpo Aristide, Richard Allan, Leonard Amekudzi, Barbara Brooks, Jui-Yuan Chiu, et al. 2018. « Policy-relevant findings of the DACCIWA project ». <https://doi.org/10.5281/zenodo.1476843>.
- Fast, Jerome D., William I. Gustafson, Richard C. Easter, Rahul A. Zaveri, James C. Barnard, Elaine G. Chapman, Georg A. Grell, et Steven E. Peckham. 2006. « Evolution of Ozone, Particulates, and Aerosol Direct Radiative Forcing in the Vicinity of Houston Using a Fully Coupled Meteorology-Chemistry-Aerosol Model ». *Journal of Geophysical Research* 111 (D21): D21305. <https://doi.org/10.1029/2005JD006721>.
- Feingold, Graham, Hongli Jiang, et Jerry Y Harrington. 2005. « On smoke suppression of clouds in Amazonia ». *Geophysical Research Letters* 32 (2).
- Feng, Y., V. Ramanathan, et V. R. Kotamarthi. 2013. « Brown Carbon: A Significant Atmospheric Absorber of Solar Radiation? » *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (17): 8607-21. <https://doi.org/10.5194/acp-13-8607-2013>.
- Ferlay, Nicolas, François Thieuleux, Céline Cornet, Anthony B. Davis, Philippe Dubuisson, Fabrice Ducos, Frédéric Parol, Jérôme Riédi, et Claudine Vanbauce. 2010. « Toward New Inferences about Cloud Structures from Multidirectional Measurements in the Oxygen A Band: Middle-of-Cloud Pressure and Cloud Geometrical Thickness from POLDER-3/PARASOL ». *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 49 (12): 2492-2507. <https://doi.org/10.1175/2010JAMC2550.1>.
- Flamant, C., P. Knippertz, A. H. Fink, A. Akpo, B. Brooks, C. J. Chiu, H. Coe, et al. 2017. « The Dynamics–Aerosol–Chemistry–Cloud Interactions in West Africa Field Campaign: Overview and Research Highlights ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 99 (1): 83-104. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-16-0256.1>.
- Flaounas, Emmanouil, Vassiliki Kotroni, Konstantinos Lagouvardos, Martina Klose, Cyrille Flamant, et Theodore M. Giannaros. 2016. « Assessing Atmospheric Dust Modelling Performance of WRF-Chem over the Semi-Arid and Arid Regions around the Mediterranean ». *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, mai, 1-28. <https://doi.org/10.5194/acp-2016-307>.
- Formenti, P., W. Elbert, W. Maenhaut, J. Haywood, S. Osborne, et M. O. Andreae. 2003. « Inorganic and Carbonaceous Aerosols during the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000) Experiment: Chemical Characteristics, Physical Properties, and Emission Data for Smoke from African Biomass Burning ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D13). <https://doi.org/10.1029/2002JD002408>.
- Formenti, Paola, Barbara D'Anna, Cyrille Flamant, Marc Mallet, Stuart John Piketh, Kerstin Schepanski, Fabien Waquet, et al. 2019. « The Aerosols, Radiation and Clouds in Southern Africa Field Campaign in Namibia: Overview, Illustrative Observations, and Way Forward ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 100 (7): 1277-98. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-17-0278.1>.
- Forrister, Haviland, Jiumeng Liu, Eric Scheuer, Jack Dibb, Luke Ziemba, Kenneth L. Thornhill, Bruce Anderson, et al. 2015. « Evolution of Brown Carbon in Wildfire Plumes ». *Geophysical Research Letters* 42 (11): 4623-30. <https://doi.org/10.1002/2015GL063897>.
- Forster, Piers, Venkatachalam Ramaswamy, Paulo Artaxo, Terje Berntsen, Richard Betts, David W Fahey, James Haywood, Judith Lean, David C Lowe, et Gunnar Myhre. 2007. « Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. Chapter 2 ». In *Climate Change 2007. The Physical Science Basis*.



- Fougnie, Bertrand. 2015. « Improvement of the PARASOL Radiometric In-Flight Calibration Based on Synergy Between Various Methods Using Natural Targets ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 54 (4): 2140-52. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2015.2496322>.
- Fougnie, Bertrand, Guillaume Bracco, Bruno Lafrance, Caroline Ruffel, Olivier Hagolle, et Claire Tinel. 2007. « PARASOL in-flight calibration and performance ». *Applied optics* 46 (septembre): 5435-51. <https://doi.org/10.1364/AO.46.005435>.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, M. F. Alonso, M. Pirre, V. Marecal, G. Grell, R. Stockler, R. F. Mello, et M. Sánchez Gácita. 2011. « PREP-CHEM-SRC – 1.0: A Preprocessor of Trace Gas and Aerosol Emission Fields for Regional and Global Atmospheric Chemistry Models ». *Geoscientific Model Development* 4 (2): 419-33. <https://doi.org/10.5194/gmd-4-419-2011>.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, et M. O. Andreae. 2006. « Impact of Including the Plume Rise of Vegetation Fires in Numerical Simulations of Associated Atmospheric Pollutants ». *Geophysical Research Letters* 33 (17): L17808. <https://doi.org/10.1029/2006GL026608>.
- Freitas, S. R., K. M. Longo, R. Chatfield, D. Latham, M. a. F. Silva Dias, M. O. Andreae, E. Prins, J. C. Santos, R. Gielow, et J. A. Carvalho Jr. 2007. « Including the Sub-Grid Scale Plume Rise of Vegetation Fires in Low Resolution Atmospheric Transport Models ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 7 (13): 3385-98. <https://doi.org/10.5194/acp-7-3385-2007>.
- Fromm, Michael, Jerome Alfred, Karl Hoppel, John Hornstein, Richard Bevilacqua, Eric Shettle, René Servranckx, Zhanqing Li, et Brian Stocks. 2000. « Observations of Boreal Forest Fire Smoke in the Stratosphere by POAM III, SAGE II, and Lidar in 1998 ». *Geophysical Research Letters* 27 (9): 1407-10. <https://doi.org/10.1029/1999GL011200>.
- Fuchs, NA, RE Daisley, Marina Fuchs, CN Davies, et ME Straumanis. 1965. « The mechanics of aerosols ». *Physics Today* 18: 73.
- Fuller, Kirk A., William C. Malm, et Sonia M. Kreidenweis. 1999. « Effects of Mixing on Extinction by Carbonaceous Particles ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 104 (D13): 15941-54. <https://doi.org/10.1029/1998JD100069>.
- Garstang, M, P D. Tyson, Robert Swap, M Edwards, Per Kallberg, et JA Lindesay. 1996. « Horizontal and vertical transport of air over southern Africa ». *Journal of Geophysical Research* 1012 (octobre): 23721-36. <https://doi.org/10.1029/95JD00844>.
- Geogdzhayev, Igor V., Michael I. Mishchenko, William B. Rossow, Brian Cairns, et Andrew A. Lacis. 2002. « Global Two-Channel AVHRR Retrievals of Aerosol Properties over the Ocean for the Period of NOAA-9 Observations and Preliminary Retrievals Using NOAA-7 and NOAA-11 Data ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 59 (3): 262-78. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(2002\)059<0262:GTCARO>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<0262:GTCARO>2.0.CO;2).
- Ghan, Steven J., et Stephen E. Schwartz. 2007. « Aerosol Properties and Processes: A Path from Field and Laboratory Measurements to Global Climate Models ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 88 (7): 1059-84. <https://doi.org/10.1175/BAMS-88-7-1059>.
- Ghan, Steven, Nels Laulainen, Richard Easter, Richard Wagener, Seth Nemesure, Elaine Chapman, Yang Zhang, et Ruby Leung. 2001. « Evaluation of Aerosol Direct Radiative Forcing in MIRAGE ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D6): 5295-5316. <https://doi.org/10.1029/2000JD900502>.
- Giglio, L. 2006. « Global Estimation of Burned Area Using MODIS Active Fire Observations ». *Atmos. Chem. Phys.*, 19.

- Giglio, L., J. D. Kendall, et R. Mack. 2003. « A multi-year active fire dataset for the tropics derived from the TRMM VIRS ». *International Journal of Remote Sensing* 24 (22): 4505-25. <https://doi.org/10.1080/0143116031000070283>.
- Giglio, L, et J T Randerson. 2010. « Assessing Variability and Long-Term Trends in Burned Area by Merging Multiple Satellite Fire Products », 16.
- Gillette, Dale A., et Ranjit Passi. 1988. « Modeling Dust Emission Caused by Wind Erosion ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 93 (D11): 14233-42. <https://doi.org/10.1029/JD093iD11p14233>.
- Ginoux, Paul, Mian Chin, Ina Tegen, Joseph M. Prospero, Brent Holben, Oleg Dubovik, et Shian-Jiann Lin. 2001. « Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D17): 20255-73. <https://doi.org/10.1029/2000JD000053>.
- Giorgi, Filippo, et William L. Chameides. 1986. « Rainout Lifetimes of Highly Soluble Aerosols and Gases as Inferred from Simulations with a General Circulation Model ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 91 (D13): 14367-76. <https://doi.org/10.1029/JD091iD13p14367>.
- Goloub, P., J. L. Deuze, M. Herman, et Y. Fouquart. 1994. « Analysis of the POLDER polarization measurements performed over cloud covers ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 32 (1): 78-88. <https://doi.org/10.1109/36.285191>.
- Goloub, P., M. Herman, H. Chepfer, J. Riedi, G. Brogniez, P. Couvert, et G. Séze. 2000. « Cloud Thermodynamical Phase Classification from the POLDER Spaceborne Instrument ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105 (D11): 14747-59. <https://doi.org/10.1029/1999JD901183>.
- Gong, S. L. 2003. « A Parameterization of Sea-Salt Aerosol Source Function for Sub- and Super-Micron Particles ». *Global Biogeochemical Cycles* 17 (4). <https://doi.org/10.1029/2003GB002079>.
- Gordon, Hamish, Paul R. Field, Steven J. Abel, Mohit Dalvi, Daniel P. Grosvenor, Adrian A. Hill, Ben T. Johnson, Annette K. Miltenberger, Masaru Yoshioka, et Ken S. Carslaw. 2018. « Large Simulated Radiative Effects of Smoke in the South-East Atlantic ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (20): 15261-89. <https://doi.org/10.5194/acp-18-15261-2018>.
- Graaf, M. de, N. Bellouin, L. G. Tilstra, J. Haywood, et P. Stammes. 2014. « Aerosol Direct Radiative Effect of Smoke over Clouds over the Southeast Atlantic Ocean from 2006 to 2009: DE GRAAF ET AL. ». *Geophysical Research Letters* 41 (21): 7723-30. <https://doi.org/10.1002/2014GL061103>.
- Graaf, M. de, P. Stammes, O. Torres, et R. B. A. Koelemeijer. 2005. « Absorbing Aerosol Index: Sensitivity Analysis, Application to GOME and Comparison with TOMS ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 110 (D1). <https://doi.org/10.1029/2004JD005178>.
- Graaf, M. de, L. G. Tilstra, P. Wang, et P. Stammes. 2012. « Retrieval of the Aerosol Direct Radiative Effect over Clouds from Spaceborne Spectrometry ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117 (D7). <https://doi.org/10.1029/2011JD017160>.
- Grell, G., S. R. Freitas, M. Stuefer, et J. Fast. 2011. « Inclusion of Biomass Burning in WRF-Chem: Impact of Wildfires on Weather Forecasts ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (11): 5289-5303. <https://doi.org/10.5194/acp-11-5289-2011>.
- Grell, Georg A. 1993. « Prognostic Evaluation of Assumptions Used by Cumulus Parameterizations ». *Monthly Weather Review* 121 (3): 764-87. [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(1993\)121<0764:PEOAUB>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1993)121<0764:PEOAUB>2.0.CO;2).

- Grell, Georg A., et Dezső Dévényi. 2002. « A Generalized Approach to Parameterizing Convection Combining Ensemble and Data Assimilation Techniques ». *Geophysical Research Letters* 29 (14): 38-1-38-4. <https://doi.org/10.1029/2002GL015311>.
- Grell, Georg A., Richard Knoche, Steven E. Peckham, et Stuart A. McKeen. 2004. « Online versus Offline Air Quality Modeling on Cloud-Resolving Scales ». *Geophysical Research Letters* 31 (16). <https://doi.org/10.1029/2004GL020175>.
- Grell, Georg A., Steven E. Peckham, Rainer Schmitz, Stuart A. McKeen, Gregory Frost, William C. Skamarock, et Brian Eder. 2005. « Fully Coupled “Online” Chemistry within the WRF Model ». *Atmospheric Environment* 39 (37): 6957-75. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.04.027>.
- Grell, Georg, et Alexander Baklanov. 2011. « Integrated Modeling for Forecasting Weather and Air Quality: A Call for Fully Coupled Approaches ». *Atmospheric Environment, Modeling of Air Quality Impacts, Forecasting and Interactions with Climate.*, 45 (38): 6845-51. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.01.017>.
- Guenther, A. B., X. Jiang, C. L. Heald, T. Sakulyanontvittaya, T. Duhl, L. K. Emmons, et X. Wang. 2012. « The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature Version 2.1 (MEGAN2.1): An Extended and Updated Framework for Modeling Biogenic Emissions ». *Geoscientific Model Development* 5 (6): 1471-92. <https://doi.org/10.5194/gmd-5-1471-2012>.
- Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P. I. Palmer, et C. Geron. 2006. « Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (11): 3181-3210.
- Guenther, Alex, C Nicholas Hewitt, David Erickson, Ray Fall, Chris Geron, Tom Graedel, Peter Harley, Lee Klinger, Manuel Lerdau, et WA McKay. 1995. « A global model of natural volatile organic compound emissions ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 100 (D5): 8873-92.
- Gunn, Ross, et B. B. Phillips. 1957. « An experimental investigation of the effect of air pollution on the initiation of rain ». *Journal of Meteorology* 14 (3): 272-80. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1957\)014<0272:AEIOTE>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1957)014<0272:AEIOTE>2.0.CO;2).
- Hagolle, Olivier, P Goloub, P.-Y Deschamps, Hélène Cosnefroy, Xavier Briottet, Thierry Bailleul, J.-M Nicolas, Frederic Parol, Bruno Lafrance, et Maurice Herman. 1999. « Results of POLDER in-flight calibration ». *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on* 37 (juin): 1550-66. <https://doi.org/10.1109/36.763266>.
- Hakkarainen, J., I. Ialongo, et J. Tamminen. 2016. « Direct Space-Based Observations of Anthropogenic CO<sub>2</sub> Emission Areas from OCO-2 ». *Geophysical Research Letters* 43 (21): 11,400-11,406. <https://doi.org/10.1002/2016GL070885>.
- Hale, George M., et Marvin R. Querry. 1973. « Optical Constants of Water in the 200-Nm to 200-Mm Wavelength Region ». *Applied Optics* 12 (3): 555-63. <https://doi.org/10.1364/AO.12.000555>.
- Hansen, J., M. Sato, et R. Ruedy. 1997. « Radiative Forcing and Climate Response ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102 (D6): 6831-64. <https://doi.org/10.1029/96JD03436>.
- Hansen, James E., et Larry D. Travis. 1974. « Light Scattering in Planetary Atmospheres ». *Space Science Reviews* 16 (4): 527-610. <https://doi.org/10.1007/BF00168069>.
- Haslett, Sophie L., Jonathan W. Taylor, Konrad Deetz, Bernhard Vogel, Karmen Babić, Norbert Kalthoff, Andreas Wieser, et al. 2019. « The Radiative Impact of Out-of-Cloud Aerosol Hygroscopic Growth during the Summer Monsoon in Southern West Africa ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (3): 1505-20. <https://doi.org/10.5194/acp-19-1505-2019>.

- Haywood, Jim M., Simon R. Osborne, Pete N. Francis, Andreas Keil, Paola Formenti, Meinrat O. Andreae, et Paul H. Kaye. 2003. « The mean physical and optical properties of regional haze dominated by biomass burning aerosol measured from the C-130 aircraft during SAFARI 2000 ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D13). <https://doi.org/10.1029/2002JD002226>.
- Heald, Colette L, et Dominick V Spracklen. 2009. « Atmospheric budget of primary biological aerosol particles from fungal spores ». *Geophysical Research Letters* 36 (9).
- Helfand, H. M., et J. C. Labraga. 1988. « Design of a Nonsingular Level 2.5 Second-Order Closure Model for the Prediction of Atmospheric Turbulence ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 45 (2): 113-32. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1988\)045<0113:DOANLS>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1988)045<0113:DOANLS>2.0.CO;2).
- Herman, J. R., P. K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, et E. Celarier. 1997. « Global Distribution of UV-Absorbing Aerosols from Nimbus 7/TOMS Data ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102 (D14): 16911-22. <https://doi.org/10.1029/96JD03680>.
- Herman, M., J.-L. Deuzé, A. Marchand, B. Roger, et P. Lallart. 2005. « Aerosol Remote Sensing from POLDER/ADEOS over the Ocean: Improved Retrieval Using a Nonspherical Particle Model ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 110 (D10). <https://doi.org/10.1029/2004JD004798>.
- Hess, M., P. Koepke, et I. Schult. 1998. « Optical Properties of Aerosols and Clouds: The Software Package OPAC ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 79 (5): 831-44. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1998\)079<0831:OPOAAC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1998)079<0831:OPOAAC>2.0.CO;2).
- Hill, AA, et S Dobbie. 2008. « The impact of aerosols on non-precipitating marine stratocumulus. II: The semi-direct effect ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society: A journal of the atmospheric sciences, applied meteorology and physical oceanography* 134 (634): 1155-65.
- Hoffer, A., A. Gelencsér, P. Guyon, G. Kiss, O. Schmid, G. P. Frank, P. Artaxo, et M. O. Andreae. 2006. « Optical Properties of Humic-like Substances (HULIS) in Biomass-Burning Aerosols ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (11): 3563-70. <https://doi.org/10.5194/acp-6-3563-2006>.
- Hoffer, A., A. Tóth, I. Nyirő-Kósa, M. Pósfai, et A. Gelencsér. 2016. « Light Absorption Properties of Laboratory-Generated Tar Ball Particles ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (1): 239-46. <https://doi.org/10.5194/acp-16-239-2016>.
- Hoffer, A., A. Tóth, M. Pósfai, C. E. Chung, et A. Gelencsér. 2016. « Brown Carbon Absorption in the Red and near Infrared Spectral Region ». *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, juin, 1-16. <https://doi.org/10.5194/acp-2016-452>.
- Hoffer, András, Ádám Tóth, Mihály Pósfai, Chul Eddy Chung, et András Gelencsér. 2017. « Brown Carbon Absorption in the Red and Near-Infrared Spectral Region ». *Atmospheric Measurement Techniques* 10 (6): 2353-59. <https://doi.org/10.5194/amt-10-2353-2017>.
- Holben, B. N., T. F. Eck, et R. S. Fraser. 1991. « Temporal and spatial variability of aerosol optical depth in the Sahel region in relation to vegetation remote sensing ». *International Journal of Remote Sensing* 12 (6): 1147-63. <https://doi.org/10.1080/01431169108929719>.
- Holben, B. N., T. F. Eck, I. Slutsker, D. Tanré, J. P. Buis, A. Setzer, E. Vermote, et al. 1998. « AERONET—A Federated Instrument Network and Data Archive for Aerosol Characterization ». *Remote Sensing of Environment* 66 (1): 1-16. [https://doi.org/10.1016/S0034-4257\(98\)00031-5](https://doi.org/10.1016/S0034-4257(98)00031-5).
- Holben, B. N., D. Tanré, A. Smirnov, T. F. Eck, I. Slutsker, N. Abuhassan, W. W. Newcomb, et al. 2001. « An Emerging Ground-Based Aerosol Climatology: Aerosol Optical Depth

- from AERONET ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D11): 12067-97. <https://doi.org/10.1029/2001JD900014>.
- Holben, Brent N. 1986. « Characteristics of maximum-value composite images from temporal AVHRR data ». *International Journal of Remote Sensing* 7 (11): 1417-34. <https://doi.org/10.1080/01431168608948945>.
- Hong, Song-You, Yign Noh, et Jimmy Dudhia. 2006. « A New Vertical Diffusion Package with an Explicit Treatment of Entrainment Processes ». *Monthly Weather Review* 134 (9): 2318-41. <https://doi.org/10.1175/MWR3199.1>.
- Hu, Xiao-Ming, John W. Nielsen-Gammon, et Fuqing Zhang. 2010. « Evaluation of Three Planetary Boundary Layer Schemes in the WRF Model ». *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 49 (9): 1831-44. <https://doi.org/10.1175/2010JAMC2432.1>.
- Hu, Yongxiang, David Winker, Mark Vaughan, Bing Lin, Ali Omar, Charles Trepte, David Flittner, et al. 2009. « CALIPSO/CALIOP Cloud Phase Discrimination Algorithm ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26 (11): 2293-2309. <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1280.1>.
- Huneus, N., M. Schulz, Y. Balkanski, J. Griesfeller, J. Prospero, S. Kinne, S. Bauer, et al. 2011. « Global Dust Model Intercomparison in AeroCom Phase I ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (15): 7781-7816. <https://doi.org/10.5194/acp-11-7781-2011>.
- Husar, Rudolf B., Joseph M. Prospero, et Larry L. Stowe. 1997. « Characterization of Tropospheric Aerosols over the Oceans with the NOAA Advanced Very High Resolution Radiometer Optical Thickness Operational Product ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102 (D14): 16889-909. <https://doi.org/10.1029/96JD04009>.
- Hyer, E. J., J. S. Reid, et J. Zhang. 2011. « An Over-Land Aerosol Optical Depth Data Set for Data Assimilation by Filtering, Correction, and Aggregation of MODIS Collection 5 Optical Depth Retrievals ». *Atmospheric Measurement Techniques* 4 (3): 379-408. <https://doi.org/10.5194/amt-4-379-2011>.
- Ichoku, C., et L. Ellison. 2014. « Global Top-down Smoke-Aerosol Emissions Estimation Using Satellite Fire Radiative Power Measurements ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (13): 6643-67. <https://doi.org/10.5194/acp-14-6643-2014>.
- Im, E., Chialin Wu, et S.L. Durden. 2005. « Cloud profiling radar for the CloudSat mission ». In *IEEE International Radar Conference, 2005.*, 483-86. <https://doi.org/10.1109/RADAR.2005.1435874>.
- Imaoka, Keiji, Misako Kachi, Hideyuki Fujii, Hiroshi Murakami, Masahiro Hori, Akiko Ono, Tamotsu Igarashi, et al. 2010. « Global Change Observation Mission (GCOM) for Monitoring Carbon, Water Cycles, and Climate Change ». *Proceedings of the IEEE* 98 (5): 717-34. <https://doi.org/10.1109/JPROC.2009.2036869>.
- Jacobson, Mark Z. 1999. « Isolating Nitrated and Aromatic Aerosols and Nitrated Aromatic Gases as Sources of Ultraviolet Light Absorption ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 104 (D3): 3527-42. <https://doi.org/10.1029/1998JD100054>.
- . 2001. « Strong Radiative Heating Due to the Mixing State of Black Carbon in Atmospheric Aerosols ». *Nature* 409 (6821): 695-97. <https://doi.org/10.1038/35055518>.
- . 2012. « Investigating cloud absorption effects: Global absorption properties of black carbon, tar balls, and soil dust in clouds and aerosols ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117 (D6). <https://doi.org/10.1029/2011JD017218>.
- . 2014. « Effects of Biomass Burning on Climate, Accounting for Heat and Moisture Fluxes, Black and Brown Carbon, and Cloud Absorption Effects ». *Journal of*

- Geophysical Research: Atmospheres* 119 (14): 8980-9002. <https://doi.org/10.1002/2014JD021861>.
- Jaenicke, Ruprecht. 2005. « Abundance of cellular material and proteins in the atmosphere ». *Science* 308 (5718): 73-73.
- Jethva, H., et O. Torres. 2011. « Satellite-Based Evidence of Wavelength-Dependent Aerosol Absorption in Biomass Burning Smoke Inferred from Ozone Monitoring Instrument ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (20): 10541-51. <https://doi.org/10.5194/acp-11-10541-2011>.
- Jethva, Hiren, Omar Torres, Fabien Waquet, Duli Chand, et Yongxiang Hu. 2014. « How Do A-Train Sensors Intercompare in the Retrieval of above-Cloud Aerosol Optical Depth? A Case Study-Based Assessment: A-TRAIN ABOVE-CLOUD AEROSOL OPTICAL DEPTH ». *Geophysical Research Letters* 41 (1): 186-92. <https://doi.org/10.1002/2013GL058405>.
- Johnson, BT, KP Shine, et PM Forster. 2004. « The semi-direct aerosol effect: Impact of absorbing aerosols on marine stratocumulus ». *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 130 (599): 1407-22.
- Johnston Fay H., Henderson Sarah B., Chen Yang, Randerson James T., Marlier Miriam, DeFries Ruth S., Kinney Patrick, Bowman David M.J.S., et Brauer Michael. 2012. « Estimated Global Mortality Attributable to Smoke from Landscape Fires ». *Environmental Health Perspectives* 120 (5): 695-701. <https://doi.org/10.1289/ehp.1104422>.
- Jones, S., G. Creighton, E. Kuchera, K. George, et A. Elliott. 2010. « Adapting WRF-CHEM GOCART for Fine-Scale Dust Forecasting ». *AGU Fall Meeting Abstracts*, décembre.
- Jones, S. L., R. Adams-Selin, E. D. Hunt, G. A. Creighton, et J. D. Cetola. 2012. « Update on modifications to WRF-CHEM GOCART for fine-scale dust forecasting at AFWA ». *AGU Fall Meeting Abstracts* 33 (décembre): A33D-0188.
- Kahn, Ralph A., Barbara J. Gaitley, John V. Martonchik, David J. Diner, Kathleen A. Crean, et Brent Holben. 2005. « Multiangle Imaging Spectroradiometer (MISR) Global Aerosol Optical Depth Validation Based on 2 Years of Coincident Aerosol Robotic Network (AERONET) Observations ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 110 (D10). <https://doi.org/10.1029/2004JD004706>.
- Kahn, Ralph A., Michael J. Garay, David L. Nelson, Kevin K. Yau, Michael A. Bull, Barbara J. Gaitley, John V. Martonchik, et Robert C. Levy. 2007. « Satellite-Derived Aerosol Optical Depth over Dark Water from MISR and MODIS: Comparisons with AERONET and Implications for Climatological Studies ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 112 (D18). <https://doi.org/10.1029/2006JD008175>.
- Kahn, R. A., H. Yu, S. E. Schwartz, M. Chin, G. Feingold, L. A. Remer, D. Rind, R. Halthore, and P. DeCola, 2009: Introduction, in *Atmospheric Aerosol Properties and Climate Impacts, A Report by the U.S. Climate Change Science Program and the Subcommittee on Global Change Research*. [Mian Chin, Ralph A. Kahn, and Stephen E. Schwartz (eds.)]. National Aeronautics and Space Administration, Washington, D.C., USA.
- Kaiser, J. W., A. Heil, M. O. Andreae, A. Benedetti, N. Chubarova, L. Jones, J. J. Morcrette, et al. 2012. « Biomass Burning Emissions Estimated with a Global Fire Assimilation System Based on Observed Fire Radiative Power ». *Biogeosciences* 9 (1): 527-54. <https://doi.org/10.5194/bg-9-527-2012>.
- Kalnay, E., M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, et al. 1996. « The NCEP/NCAR 40-Year Reanalysis Project ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 77 (3): 437-72. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1996\)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2).

- Kanakidou, M, J H Seinfeld, S N Pandis, I Barnes, F J Dentener, M C Facchini, R Van Dingenen, et al. 2005. « Organic Aerosol and Global Climate Modelling: A Review ». *Atmos. Chem. Phys.*, 71.
- Kaufman, Y. J., A. Setzer, D. Ward, D. Tanre, B. N. Holben, P. Menzel, M. C. Pereira, et R. Rasmussen. 1992. « Biomass Burning Airborne and Spaceborne Experiment in the Amazonas (BASE-A) ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 97 (D13): 14581-99. <https://doi.org/10.1029/92JD00275>.
- Kaufman, Yoram J., Didier Tanré, et Olivier Boucher. 2002. « A Satellite View of Aerosols in the Climate System ». *Nature* 419 (6903): 215-23. <https://doi.org/10.1038/nature01091>.
- Keil, Andreas, et Jim M. Haywood. 2003. « Solar radiative forcing by biomass burning aerosol particles during SAFARI 2000: A case study based on measured aerosol and cloud properties ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D13). <https://doi.org/10.1029/2002JD002315>.
- Kettle, A. J., M. O. Andreae, D. Amouroux, T. W. Andreae, T. S. Bates, H. Berresheim, H. Bingemer, et al. 1999. « A Global Database of Sea Surface Dimethylsulfide (DMS) Measurements and a Procedure to Predict Sea Surface DMS as a Function of Latitude, Longitude, and Month ». *Global Biogeochemical Cycles* 13 (2): 399-444. <https://doi.org/10.1029/1999GB900004>.
- Kiehl, J. T., T. L. Schneider, P. J. Rasch, M. C. Barth, et J. Wong. 2000. « Radiative Forcing Due to Sulfate Aerosols from Simulations with the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model, Version 3 ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 105 (D1): 1441-57. <https://doi.org/10.1029/1999JD900495>.
- King, Michael D., Yoram J. Kaufman, Didier Tanré, et Teruyuki Nakajima. 1999. « Remote Sensing of Tropospheric Aerosols from Space: Past, Present, and Future ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 80 (11): 2229-60. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1999\)080<2229:RSOTAF>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1999)080<2229:RSOTAF>2.0.CO;2).
- Kirchstetter, T. W., et T. L. Thatcher. 2012. « Contribution of Organic Carbon to Wood Smoke Particulate Matter Absorption of Solar Radiation ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 12 (14): 6067-72. <https://doi.org/10.5194/acp-12-6067-2012>.
- Kirchstetter, Thomas W., T. Novakov, et Peter V. Hobbs. 2004. « Evidence That the Spectral Dependence of Light Absorption by Aerosols Is Affected by Organic Carbon ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 109 (D21). <https://doi.org/10.1029/2004JD004999>.
- Kirchstetter, Thomas W., T. Novakov, Peter V. Hobbs, et Brian Magi. 2003. « Airborne Measurements of Carbonaceous Aerosols in Southern Africa during the Dry Biomass Burning Season ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D13). <https://doi.org/10.1029/2002JD002171>.
- Knorr, Wolfgang, Frank Dentener, Jean-François Lamarque, Leiwen Jiang, et Almut Arneth. 2017. « Wildfire Air Pollution Hazard during the 21st Century ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 17 (14): 9223-36. <https://doi.org/10.5194/acp-17-9223-2017>.
- Knox, Andrew, Greg Evans, Brook Yao, Cheol-Heon Jeong, C. H. Krystal Godri Pollitt, Kelly Sabaliauskas, et Slowik. 2009. « Mass Absorption Cross-Section of Ambient Black Carbon Aerosol in Relation to Chemical Age ». *Aerosol Science and Technology* 43 (mars). <https://doi.org/10.1080/02786820902777207>.
- Koch, D., et A. D. Del Genio. 2010. « Black Carbon Semi-Direct Effects on Cloud Cover: Review and Synthesis ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (16): 7685-96. <https://doi.org/10.5194/acp-10-7685-2010>.
- Koepke, Peter, M Hess, I Schult, et EP Shettle. 1997. « Global aerosol data set ».
- Koffi, Brigitte, Michael Schulz, François-Marie Bréon, Frank Dentener, Birthe Marie Steensen, Jan Griesfeller, David Winker, et al. 2016. « Evaluation of the Aerosol Vertical

- Distribution in Global Aerosol Models through Comparison against CALIOP Measurements: AeroCom Phase II Results ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 121 (12): 7254-83. <https://doi.org/10.1002/2015JD024639>.
- Koffi, Brigitte, Michael Schulz, Francois-Marie Bréon, Jan Griesfeller, David Winker, Yves Balkanski, Susanne Bauer, et al. 2012. « Application of the CALIOP Layer Product to Evaluate the Vertical Distribution of Aerosols Estimated by Global Models: AeroCom Phase I Results ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 117 (D10). <https://doi.org/10.1029/2011JD016858>.
- Koren, Ilan, J Vanderlei Martins, Lorraine A Remer, et Hila Afargan. 2008. « Smoke invigoration versus inhibition of clouds over the Amazon ». *science* 321 (5891): 946-49.
- Labonne, Mathieu, François-Marie Bréon, et Frédéric Chevallier. 2007. « Injection height of biomass burning aerosols as seen from a spaceborne lidar ». *Geophysical Research Letters* 34 (11). <https://doi.org/10.1029/2007GL029311>.
- Lack, Daniel A., Christopher D. Cappa, Eben S. Cross, Paola Massoli, Adam T. Ahern, Paul Davidovits, et Timothy B. Onasch. 2009. « Absorption Enhancement of Coated Absorbing Aerosols: Validation of the Photo-Acoustic Technique for Measuring the Enhancement ». *Aerosol Science and Technology* 43 (10): 1006-12. <https://doi.org/10.1080/02786820903117932>.
- Lack, Daniel A., Justin M. Langridge, Roya Bahreini, Christopher D. Cappa, Ann M. Middlebrook, et Joshua P. Schwarz. 2012. « Brown Carbon and Internal Mixing in Biomass Burning Particles ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 109 (37): 14802-7. <https://doi.org/10.1073/pnas.1206575109>.
- Lack, Daniel, et Christopher Cappa. 2010. « Impact of brown and clear carbon on light absorption enhancement, single scatter albedo and absorption wavelength dependence of black carbon ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (mai). <https://doi.org/10.5194/acp-10-4207-2010>.
- Laskin, A., J. Laskin, et Sergey A. Nizkorodov. 2015. « Chemistry of Atmospheric Brown Carbon ». *Chemical Reviews* 115 (10): 4335-82. <https://doi.org/10.1021/cr5006167>.
- Lassman, William, Bonne Ford, Ryan W. Gan, Gabriele Pfister, Sheryl Magzamen, Emily V. Fischer, et Jeffrey R. Pierce. 2017. « Spatial and Temporal Estimates of Population Exposure to Wildfire Smoke during the Washington State 2012 Wildfire Season Using Blended Model, Satellite, and in Situ Data ». *GeoHealth* 1 (3): 106-21. <https://doi.org/10.1002/2017GH000049>.
- Leahy, L. V., T. L. Anderson, T. F. Eck, et R. W. Bergstrom. 2007. « A Synthesis of Single Scattering Albedo of Biomass Burning Aerosol over Southern Africa during SAFARI 2000 ». *Geophysical Research Letters* 34 (12). <https://doi.org/10.1029/2007GL029697>.
- Lee, Hyun Ji (Julie), Paige Kuuipo Aiona, Alexander Laskin, Julia Laskin, et Sergey A. Nizkorodov. 2014. « Effect of Solar Radiation on the Optical Properties and Molecular Composition of Laboratory Proxies of Atmospheric Brown Carbon ». *Environmental Science & Technology* 48 (17): 10217-26. <https://doi.org/10.1021/es502515r>.
- Lee, Jaehwa, N. Christina Hsu, Corey Bettenhausen, Andrew M. Sayer, Colin J. Seftor, Myeong-Jae Jeong, Si-Chee Tsay, Ellsworth J. Welton, Sheng-Hsiang Wang, et Wei-Nai Chen. 2016. « Evaluating the Height of Biomass Burning Smoke Aerosols Retrieved from Synergistic Use of Multiple Satellite Sensors over Southeast Asia ». *Aerosol and Air Quality Research* 16 (11): 2831-42. <https://doi.org/10.4209/aaqr.2015.08.0506>.
- LeGrand, Sandra L., Chris Polashenski, Theodore W. Letcher, Glenn A. Creighton, Steven E. Peckham, et Jeffrey D. Cetola. 2019. « The AFWA Dust Emission Scheme for the GOCART Aerosol Model in WRF-Chem v3.8.1 ». *Geoscientific Model Development* 12 (1): 131-66. <https://doi.org/10.5194/gmd-12-131-2019>.



- Lenoble, J., M. Herman, J. L. Deuzé, B. Lafrance, R. Santer, et D. Tanré. 2007. « A Successive Order of Scattering Code for Solving the Vector Equation of Transfer in the Earth's Atmosphere with Aerosols ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 107 (3): 479-507. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2007.03.010>.
- Lenoble, J., D. Tanre, P. Y. Deschamps, et M. Herman. 1982. « A Simple Method to Compute the Change in Earth-Atmosphere Radiative Balance Due to a Stratospheric Aerosol Layer ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 39 (11): 2565-76. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1982\)039<2565:ASMTCT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1982)039<2565:ASMTCT>2.0.CO;2).
- Lesins, Glen, Petr Chylek, et Ulrike Lohmann. 2002. « A Study of Internal and External Mixing Scenarios and Its Effect on Aerosol Optical Properties and Direct Radiative Forcing ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 107 (D10): AAC 5-1-AAC 5-12. <https://doi.org/10.1029/2001JD000973>.
- Levelt, P. F., G. H. J. van den Oord, M. R. Dobber, A. Malkki, Huib Visser, Johan de Vries, P. Stammes, J. O. V. Lundell, et H. Saari. 2006. « The ozone monitoring instrument ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 44 (5): 1093-1101. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2006.872333>.
- Li, Lei, Oleg Dubovik, Yevgeny Derimian, Gregory L. Schuster, Tatyana Lapyonok, Pavel Litvinov, Fabrice Ducos, et al. 2019. « Retrieval of Aerosol Components Directly from Satellite and Ground-Based Measurements ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (21): 13409-43. <https://doi.org/10.5194/acp-19-13409-2019>.
- Li, Weijun, Longyi Shao, Daizhou Zhang, Chul-Un Ro, Min Hu, Xinhui Bi, Hong Geng, Atsushi Matsuki, Hongya Niu, et Jian-Min Chen. 2015. *A review of single aerosol particle studies in the atmosphere of East Asia: Morphology, mixing state, source, and heterogeneous reactions*. Vol. 112. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2015.04.050>.
- Limbeck, Andreas, Markku Kulmala, et Hans Puxbaum. 2003. « Secondary Organic Aerosol Formation in the Atmosphere via Heterogeneous Reaction of Gaseous Isoprene on Acidic Particles ». *Geophysical Research Letters* 30 (19). <https://doi.org/10.1029/2003GL017738>.
- Lin, Guangxing, Joyce E. Penner, Mark G. Flanner, Sanford Sillman, Li Xu, et Cheng Zhou. 2014. « Radiative Forcing of Organic Aerosol in the Atmosphere and on Snow: Effects of SOA and Brown Carbon ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 119 (12): 7453-76. <https://doi.org/10.1002/2013JD021186>.
- Lin, Shian-Jiann, et Richard B. Rood. 1996. « Multidimensional Flux-Form Semi-Lagrangian Transport Schemes ». *Monthly Weather Review* 124 (9): 2046-70. [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(1996\)124<2046:MFFSLT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1996)124<2046:MFFSLT>2.0.CO;2).
- Lin, Yuh-Lang, Richard D. Farley, et Harold D. Orville. 1983. « Bulk Parameterization of the Snow Field in a Cloud Model ». *Journal of Climate and Applied Meteorology* 22 (6): 1065-92. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1983\)022<1065:BPOTSF>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1983)022<1065:BPOTSF>2.0.CO;2).
- Lindesay, J. A., M. O. Andreae, J. G. Goldammer, G. Harris, H. J. Annegarn, M. Garstang, R. J. Scholes, et B. W. van Wilgen. 1996. « International Geosphere-Biosphere Programme/International Global Atmospheric Chemistry SAFARI-92 Field Experiment: Background and Overview ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 101 (D19): 23521-30. <https://doi.org/10.1029/96JD01512>.
- Lingard, Justin, Lorenzo Labrador, Daniel Brookes, et Andrea Fraser. 2013. « Statistical Evaluation of the Input Meteorological Data Used for the UK Air Quality Forecast (UK-AQF) », n° 1: 34.
- Liou, Kuo-Nan, et Szu-Cheng Ou. 1989. « The Role of Cloud Microphysical Processes in Climate: An Assessment from a One-Dimensional Perspective ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 94 (D6): 8599-8607. <https://doi.org/10.1029/JD094iD06p08599>.

- Lioussé, C., B. Guillaume, J. M. Grégoire, M. Mallet, C. Galy, V. Pont, A. Akpo, et al. 2010. « Updated African Biomass Burning Emission Inventories in the Framework of the AMMA-IDAF Program, with an Evaluation of Combustion Aerosols ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (19): 9631-46. <https://doi.org/10.5194/acp-10-9631-2010>.
- Liss, PS, et L Merlivat. 1986. « Air-sea gas exchange rates: introduction and synthesis, The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling P ». *P. Buat-Menard*, 113-27.
- Liu, Chao, Chul Eddy Chung, Yan Yin, et Martin Schnaiter. 2018. « The Absorption Ångström Exponent of Black Carbon: From Numerical Aspects ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (9): 6259-73. <https://doi.org/10.5194/acp-18-6259-2018>.
- Liu, Fengshan, Jérôme Yon, Andrés Fuentes, Prem Lobo, Gregory J. Smallwood, et Joel C. Corbin. 2020. « Review of recent literature on the light absorption properties of black carbon: Refractive index, mass absorption cross section, and absorption function ». *Aerosol Science and Technology* 54 (1): 33-51. <https://doi.org/10.1080/02786826.2019.1676878>.
- Liu, J., E. Scheuer, J. Dibb, G. S. Diskin, L. D. Ziemba, K. L. Thornhill, B. E. Anderson, et al. 2015. « Brown Carbon Aerosol in the North American Continental Troposphere: Sources, Abundance, and Radiative Forcing ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (14): 7841-58. <https://doi.org/10.5194/acp-15-7841-2015>.
- Liu, Jiumeng, Eric Scheuer, Jack Dibb, Luke D. Ziemba, Kenneth L. Thornhill, Bruce E. Anderson, Armin Wisthaler, et al. 2014. « Brown Carbon in the Continental Troposphere ». *Geophysical Research Letters* 41 (6): 2191-95. <https://doi.org/10.1002/2013GL058976>.
- Liu, Shang, Allison C. Aiken, Kyle Gorkowski, Manvendra K. Dubey, Christopher D. Cappa, Leah R. Williams, Scott C. Herndon, et al. 2015. « Enhanced Light Absorption by Mixed Source Black and Brown Carbon Particles in UK Winter ». *Nature Communications* 6 (septembre): 8435. <https://doi.org/10.1038/ncomms9435>.
- Liu, Zhaoyan, Mark Vaughan, David Winker, Chieko Kittaka, Brian Getzewich, Ralph Kuehn, Ali Omar, Kathleen Powell, Charles Trepte, et Chris Hostetler. 2009. « The CALIPSO Lidar Cloud and Aerosol Discrimination: Version 2 Algorithm and Initial Assessment of Performance ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26 (7): 1198-1213. <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1229.1>.
- Lu, Zheng, Xiaohong Liu, Zhibo Zhang, Chun Zhao, Kerry Meyer, Chamara Rajapakshe, Chenglai Wu, Zhifeng Yang, et Joyce E. Penner. 2018. « Biomass Smoke from Southern Africa Can Significantly Enhance the Brightness of Stratocumulus over the Southeastern Atlantic Ocean ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 115 (12): 2924-29. <https://doi.org/10.1073/pnas.1713703115>.
- Mallet, M, Jean-Claude Roger, S Despiiau, Oleg Dubovik, et Jean-Philippe Putaud. 2003. « Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE ». *Atmospheric Research* 69 (octobre): 73-97. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2003.07.001>.
- Marle, Margreet J. E. van, Silvia Kloster, Brian I. Magi, Jennifer R. Marlon, Anne-Laure Daniau, Robert D. Field, Almut Arneth, et al. 2017. « Historic Global Biomass Burning Emissions for CMIP6 (BB4CMIP) Based on Merging Satellite Observations with Proxies and Fire Models (1750–2015) ». *Geoscientific Model Development* 10 (9): 3329-57. <https://doi.org/10.5194/gmd-10-3329-2017>.
- Marticorena, B., et G. Bergametti. 1995. « Modeling the Atmospheric Dust Cycle: 1. Design of a Soil-Derived Dust Emission Scheme ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 100 (D8): 16415-30. <https://doi.org/10.1029/95JD00690>.
- Massie, Steven T., Omar Torres, et Steven J. Smith. 2004. « Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Observations of Increases in Asian Aerosol in Winter from 1979

- to 2000 ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 109 (D18). <https://doi.org/10.1029/2004JD004620>.
- McConnell, C. L., E. J. Highwood, H. Coe, P. Formenti, B. Anderson, S. Osborne, S. Nava, K. Desboeufs, G. Chen, et M. a. J. Harrison. 2008. « Seasonal Variations of the Physical and Optical Characteristics of Saharan Dust: Results from the Dust Outflow and Deposition to the Ocean (DODO) Experiment ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D14). <https://doi.org/10.1029/2007JD009606>.
- McCormick, Robert A, et John H Ludwig. 1967. « Climate modification by atmospheric aerosols ». *Science* 156 (3780): 1358-59.
- McMeeking, G. R., E. Fortner, T. B. Onasch, J. W. Taylor, M. Flynn, H. Coe, et S. M. Kreidenweis. 2014. « Impacts of Nonrefractory Material on Light Absorption by Aerosols Emitted from Biomass Burning ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 119 (21): 12,272-12,286. <https://doi.org/10.1002/2014JD021750>.
- Meyer, Kerry, Steven Platnick, Lazaros Oreopoulos, et Dongmin Lee. 2013. « Estimating the Direct Radiative Effect of Absorbing Aerosols Overlying Marine Boundary Layer Clouds in the Southeast Atlantic Using MODIS and CALIOP: ABOVE-CLOUD DARE FROM MODIS AND CALIOP ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 118 (10): 4801-15. <https://doi.org/10.1002/jgrd.50449>.
- Mie, Gustav. 1908. « Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen ». *Annalen der physik* 330 (3): 377-445.
- Mikhailov, E. F., S. S. Vlasenko, I. A. Podgorny, V. Ramanathan, et C. E. Corrigan. 2006. « Optical Properties of Soot–Water Drop Agglomerates: An Experimental Study ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (D7). <https://doi.org/10.1029/2005JD006389>.
- Mishchenko, Michael I., et Igor V. Geogdzhayev. 2007. « Satellite Remote Sensing Reveals Regional Tropospheric Aerosol Trends ». *Optics Express* 15 (12): 7423-38. <https://doi.org/10.1364/OE.15.007423>.
- Mishchenko, Michael I., Igor V. Geogdzhayev, Brian Cairns, William B. Rossow, et Andrew A. Lacis. 1999. « Aerosol Retrievals over the Ocean by Use of Channels 1 and 2 AVHRR Data: Sensitivity Analysis and Preliminary Results ». *Applied Optics* 38 (36): 7325-41. <https://doi.org/10.1364/AO.38.007325>.
- Mishchenko, Michael I., Igor V. Geogdzhayev, William B. Rossow, Brian Cairns, Barbara E. Carlson, Andrew A. Lacis, Li Liu, et Larry D. Travis. 2007. « Long-Term Satellite Record Reveals Likely Recent Aerosol Trend ». *Science* 315 (5818): 1543-1543. <https://doi.org/10.1126/science.1136709>.
- Mlawer, Eli J., Steven J. Taubman, Patrick D. Brown, Michael J. Iacono, et Shepard A. Clough. 1997. « Radiative Transfer for Inhomogeneous Atmospheres: RRTM, a Validated Correlated-k Model for the Longwave ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102 (D14): 16663-82. <https://doi.org/10.1029/97JD00237>.
- Mok, Jungbin, Nickolay A. Krotkov, Antti Arola, Omar Torres, Hiren Jethva, Marcos Andrade, Gordon Labow, et al. 2016. « Impacts of Brown Carbon from Biomass Burning on Surface UV and Ozone Photochemistry in the Amazon Basin ». *Scientific Reports* 6 (novembre): 36940. <https://doi.org/10.1038/srep36940>.
- Monahan, EC, DE Spiel, et KL Davidson. 1986. « Oceanic Whitecaps—and Their Role in Air–Sea Exchange Processes, chap. A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption ».
- Montavez, Juan Pedro, Jose Maria Lopez-Romero, Sonia Jerez, Juan Jose Gomez-Navarro, et Pedro Jimenez-Guerrero. 2017. « How much spin-up period is really necessary in regional climate simulations? » 19 (avril): 15806.

- Myhre, G., B. H. Samset, M. Schulz, Y. Balkanski, S. Bauer, T. K. Berntsen, H. Bian, et al. 2013a. « Radiative Forcing of the Direct Aerosol Effect from AeroCom Phase II Simulations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (4): 1853-77. <https://doi.org/10.5194/acp-13-1853-2013>.
- Myhre, G., D. Shindell, F.-M. Bréon, W. Collins, J. Fuglestad, J. Huang, D. Koch, J.-F. Lamarque, D. Lee, B. Mendoza, T. Nakajima, A. Robock, G. Stephens, T. Takemura and H. Zhang, 2013b: Anthropogenic and Natural Radiative Forcing. In: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Naeher, Luke P., Michael Brauer, Michael Lipsett, Judith T. Zelikoff, Christopher D. Simpson, Jane Q. Koenig, et Kirk R. Smith. 2007. « Woodsmoke Health Effects: A Review ». *Inhalation Toxicology* 19 (1): 67-106. <https://doi.org/10.1080/08958370600985875>.
- Nakajima, Teruyuki, et Michael D. King. 1989. « Determination of the Optical Thickness and Effective Particle Radius of Clouds from Reflected Solar Radiation Measurements. Part I: Theory ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 47 (15): 1878-93. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1990\)047<1878:DOTOTA>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1990)047<1878:DOTOTA>2.0.CO;2).
- Nakayama, T., K. Sato, Y. Matsumi, T. Imamura, A. Yamazaki, et A. Uchiyama. 2013. « Wavelength and NO<sub>x</sub> Dependent Complex Refractive Index of SOAs Generated from the Photooxidation of Toluene ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (2): 531-45. <https://doi.org/10.5194/acp-13-531-2013>.
- Olivier, Jos G. J., John A. Van Aardenne, Frank J. Dentener, Valerio Pagliari, Laurens N. Ganzeveld, et Jeroen A. H. W. Peters. 2005. « Recent trends in global greenhouse gas emissions: regional trends 1970–2000 and spatial distribution of key sources in 2000 ». *Environmental Sciences* 2 (2-3): 81-99. <https://doi.org/10.1080/15693430500400345>.
- Olson, Michael R., Mercedes Victoria Garcia, Michael A. Robinson, Paul Van Rooy, Mark A. Dietenberger, Michael Bergin, et James Jay Schauer. 2015. « Investigation of Black and Brown Carbon Multiple-Wavelength-Dependent Light Absorption from Biomass and Fossil Fuel Combustion Source Emissions: BC AND BRC LIGHT ABSORPTION FROM SOURCES ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 120 (13): 6682-97. <https://doi.org/10.1002/2014JD022970>.
- Omar, Ali H., David M. Winker, Mark A. Vaughan, Yongxiang Hu, Charles R. Trepte, Richard A. Ferrare, Kam-Pui Lee, et al. 2009. « The CALIPSO Automated Aerosol Classification and Lidar Ratio Selection Algorithm ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26 (10): 1994-2014. <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1231.1>.
- Osborne, S. R., et J. M. Haywood. 2005. « Aircraft observations of the microphysical and optical properties of major aerosol species ». *Atmospheric Research* 73 (3): 173-201. <https://doi.org/10.1016/j.atmosres.2004.09.002>.
- Osborne, S. R., B. T. Johnson, J. M. Haywood, A. J. Baran, M. a. J. Harrison, et C. L. McConnell. 2008. « Physical and Optical Properties of Mineral Dust Aerosol during the Dust and Biomass-Burning Experiment ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D23). <https://doi.org/10.1029/2007JD009551>.
- Oshima, N., M. Koike, Y. Zhang, et Y. Kondo. 2009. « Aging of Black Carbon in Outflow from Anthropogenic Sources Using a Mixing State Resolved Model: 2. Aerosol Optical Properties and Cloud Condensation Nuclei Activities ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 114 (D18). <https://doi.org/10.1029/2008JD011681>.
- Otto, S., M. de Reus, T. Trautmann, A. Thomas, M. Wendisch, et S. Borrmann. 2007. « Atmospheric Radiative Effects of an in Situ Measured Saharan Dust Plume and the

- Role of Large Particles ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 7 (18): 4887-4903. <https://doi.org/10.5194/acp-7-4887-2007>.
- Pan, Xiaohua, Charles Ichoku, Mian Chin, Huisheng Bian, Anton Darmenov, Peter Colarco, Luke Ellison, et al. 2019. « Six Global Biomass Burning Emission Datasets: Inter-Comparison and Application in One Global Aerosol Model ». Preprint. Aerosols/Atmospheric Modelling/Troposphere/Physics (physical properties and processes). <https://doi.org/10.5194/acp-2019-475>.
- Pandithurai, G., S. Dipu, K. K. Dani, S. Tiwari, D. S. Bisht, P. C. S. Devara, et R. T. Pinker. 2008. « Aerosol Radiative Forcing during Dust Events over New Delhi, India ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D13). <https://doi.org/10.1029/2008JD009804>.
- Park, S. K., S. Lim, et M. Zupanski. 2015. « Structure of Forecast Error Covariance in Coupled Atmosphere–Chemistry Data Assimilation ». *Geoscientific Model Development* 8 (5): 1315-20. <https://doi.org/10.5194/gmd-8-1315-2015>.
- Patterson, E. M., et C. K. McMahon. 1984. « Absorption characteristics of forest fire particulate matter ». *Atmospheric Environment* (1967) 18 (11): 2541-51. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(84\)90027-1](https://doi.org/10.1016/0004-6981(84)90027-1).
- Peckham, Steven Elbert. 2012. « WRF/Chem version 3.3 user's guide ».
- Peers, F., N. Bellouin, F. Waquet, F. Ducos, P. Goloub, J. Mollard, G. Myhre, et al. 2016. « Comparison of aerosol optical properties above clouds between POLDER and AeroCom models over the South East Atlantic Ocean during the fire season ». *Geophysical Research Letters* 43 (8): 3991-4000. <https://doi.org/10.1002/2016GL068222>.
- Peers, F., F. Waquet, C. Cornet, P. Dubuisson, F. Ducos, P. Goloub, F. Szczap, D. Tanré, et F. Thieuleux. 2015. « Absorption of Aerosols above Clouds from POLDER/PARASOL Measurements and Estimation of Their Direct Radiative Effect ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (8): 4179-96. <https://doi.org/10.5194/acp-15-4179-2015>.
- Peers, Fanny. 2015. « Caractérisation des propriétés des aérosols au-dessus des nuages et de leur effet direct avec POLDER/PARASOL ». Thesis, Lille 1. <http://www.theses.fr/2015LIL10199>.
- Penner, Joyce E. 2019. « Soot, Sulfate, Dust and the Climate — Three Ways through the Fog ». *Nature* 570 (7760): 158. <https://doi.org/10.1038/d41586-019-01791-6>.
- Penner, Joyce E, MO Andreae, H Annegarn, L Barrie, J Feichter, D Hegg, A Jayaraman, R Leaitch, D Murphy, et J Nganga. 2001. « Aerosols, their direct and indirect effects ». In *Climate Change 2001: The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 289-348. Cambridge University Press.
- Pfister, G. G., J. Avise, C. Wiedinmyer, D. P. Edwards, L. K. Emmons, G. D. Diskin, J. Podolske, et A. Wisthaler. 2011. « CO Source Contribution Analysis for California during ARCTAS-CARB ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (15): 7515-32. <https://doi.org/10.5194/acp-11-7515-2011>.
- Pistone, Kristina, Jens Redemann, Sarah Doherty, Paquita Zuidema, Sharon Burton, Brian Cairns, Sabrina Cochrane, et al. 2019. « Intercomparison of Biomass Burning Aerosol Optical Properties from in Situ and Remote-Sensing Instruments in ORACLES-2016 ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 19 (14): 9181-9208. <https://doi.org/10.5194/acp-19-9181-2019>.
- Platnick, S., M.D. King, S.A. Ackerman, W.P. Menzel, B.A. Baum, J.C. Riedi, et R.A. Frey. 2003. « The MODIS Cloud Products: Algorithms and Examples from Terra ». *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing* 41 (2): 459-73. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2002.808301>.

- Podgorny, I. A., et V. Ramanathan. 2001. « A Modeling Study of the Direct Effect of Aerosols over the Tropical Indian Ocean ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D20): 24097-105. <https://doi.org/10.1029/2001JD900214>.
- Pokhrel, Rudra P., Eric R. Beamesderfer, Nick L. Wagner, Justin M. Langridge, Daniel A. Lack, Thilina Jayarathne, Elizabeth A. Stone, Chelsea E. Stockwell, Robert J. Yokelson, et Shane M. Murphy. 2017. « Relative Importance of Black Carbon, Brown Carbon, and Absorption Enhancement from Clear Coatings in Biomass Burning Emissions ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 17 (8): 5063-78. <https://doi.org/10.5194/acp-17-5063-2017>.
- Pokhrel, Rudra P., Nick L. Wagner, Justin M. Langridge, Daniel A. Lack, Thilina Jayarathne, Elizabeth A. Stone, Chelsea E. Stockwell, Robert J. Yokelson, et Shane M. Murphy. 2016. « Parameterization of Single-Scattering Albedo (SSA) and Absorption Ångström Exponent (AAE) with EC / OC for Aerosol Emissions from Biomass Burning ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (15): 9549-61. <https://doi.org/10.5194/acp-16-9549-2016>.
- Popp, Thomas, Gerrit De Leeuw, Christine Bingen, Christoph Brühl, Virginie Capelle, Alain Chedin, Lieven Clarisse, et al. 2016. « Development, Production and Evaluation of Aerosol Climate Data Records from European Satellite Observations (Aerosol\_cci) ». *Remote Sensing* 8 (5): 421. <https://doi.org/10.3390/rs8050421>.
- Pósfai, Mihály, András Gelencsér, Renáta Simonics, Krisztina Arató, Jia Li, Peter V. Hobbs, et Peter R. Buseck. 2004. « Atmospheric Tar Balls: Particles from Biomass and Biofuel Burning ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 109 (D6). <https://doi.org/10.1029/2003JD004169>.
- Powers, Jordan G., Joseph B. Klemp, William C. Skamarock, Christopher A. Davis, Jimmy Dudhia, David O. Gill, Janice L. Coen, et al. 2017. « The Weather Research and Forecasting Model: Overview, System Efforts, and Future Directions ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 98 (8): 1717-37. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-15-00308.1>.
- Quéré, Corinne Le, Robbie M. Andrew, Pierre Friedlingstein, Stephen Sitch, Judith Hauck, Julia Pongratz, Penelope A. Pickers, et al. 2018. « Global Carbon Budget 2018 ». *Earth System Science Data* 10 (4): 2141-94. <https://doi.org/10.5194/essd-10-2141-2018>.
- Rajapakshe, Chamara, Zhibo Zhang, John E. Yorks, Hongbin Yu, Qian Tan, Kerry Meyer, Steven Platnick, et David M. Winker. 2017. « Seasonally Transported Aerosol Layers over Southeast Atlantic Are Closer to Underlying Clouds than Previously Reported ». *Geophysical Research Letters* 44 (11): 5818-25. <https://doi.org/10.1002/2017GL073559>.
- Ramanathan, Veerabhadran, et Gregory Carmichael. 2008. « Global and regional climate changes due to black carbon ». *Nature geoscience* 1 (4): 221.
- Ramaswamy, V, C Leovy, H Rodhe, et K Shine. 1991. « Radiative Forcing of Climate », 32.
- Redemann, Jens, Peter Pilewskie, Philip B. Russell, John M. Livingston, Steve Howard, Beat Schmid, John Pommier, Warren Gore, James Eilers, et Manfred Wendisch. 2006. « Airborne Measurements of Spectral Direct Aerosol Radiative Forcing in the Intercontinental Chemical Transport Experiment/Intercontinental Transport and Chemical Transformation of Anthropogenic Pollution, 2004 ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (D14). <https://doi.org/10.1029/2005JD006812>.
- Reid Colleen E., Brauer Michael, Johnston Fay H., Jerrett Michael, Balmes John R., et Elliott Catherine T. 2016. « Critical Review of Health Impacts of Wildfire Smoke Exposure ». *Environmental Health Perspectives* 124 (9): 1334-43. <https://doi.org/10.1289/ehp.1409277>.

- Reid, Jeffrey S., Edward J. Hyer, Elaine M. Prins, Douglas L. Westphal, Jianglong Zhang, Sundar A. Christopher, Cynthia A. Curtis, et al. 2009. « Global Monitoring and Forecasting of Biomass-Burning Smoke: Description of and Lessons From the Fire Locating and Modeling of Burning Emissions (FLAMBE) Program ». *IEEE Journal of Selected Topics in Applied Earth Observations and Remote Sensing* 2: 144-62. <https://doi.org/10.1109/JSTARS.2009.2027443>.
- Reid, Jeffrey S, James E Kinney, Douglas L Westphal, Brent N Holben, Ellsworth J Welton, Si-Chee Tsay, Daniel P Eleuterio, James R CAMPBELL, Sundar A Christopher, et PR Colarco. 2003. « Analysis of measurements of Saharan dust by airborne and ground-based remote sensing methods during the Puerto Rico Dust Experiment (PRIDE): Puerto Rico Dust Experiment (PRIDE1) ». *Journal of geophysical research* 108 (D19): PRD2-1.
- Remer, L. A., Y. J. Kaufman, D. Tanré, S. Mattoo, D. A. Chu, J. V. Martins, R.-R. Li, et al. 2005. « The MODIS Aerosol Algorithm, Products, and Validation ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 62 (4): 947-73. <https://doi.org/10.1175/JAS3385.1>.
- Richter, I., et C. R. Mechoso. 2004. « Orographic Influences on the Annual Cycle of Namibian Stratocumulus Clouds ». *Geophysical Research Letters* 31 (24). <https://doi.org/10.1029/2004GL020814>.
- Riedi, J., B. Marchant, S. Platnick, B. A. Baum, F. Thieuleux, C. Oudard, F. Parol, J.-M. Nicolas, et P. Dubuisson. 2010. « Cloud Thermodynamic Phase Inferred from Merged POLDER and MODIS Data ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (23): 11851-65. <https://doi.org/10.5194/acp-10-11851-2010>.
- Roberts, G, M J Wooster, et E Lagoudakis. 2009. « Annual and Diurnal African Biomass Burning Temporal Dynamics », 18.
- Rosenfeld, Daniel, Steven Sherwood, Robert Wood, et Leo Donner. 2014. « Climate Effects of Aerosol-Cloud Interactions ». *Science* 343 (6169): 379-80. <https://doi.org/10.1126/science.1247490>.
- Ruellan, Stéphane, Hélène Cachier, Annie Gaudichet, Pierre Masclet, et Jean-Pierre Lacaux. 1999. « Airborne Aerosols over Central Africa during the Experiment for Regional Sources and Sinks of Oxidants (EXPRESSO) ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 104 (D23): 30673-90. <https://doi.org/10.1029/1999JD900804>.
- Sakaeda, Naoko, Robert Wood, et Philip J. Rasch. 2011. « Direct and Semidirect Aerosol Effects of Southern African Biomass Burning Aerosol ». *Journal of Geophysical Research* 116 (D12). <https://doi.org/10.1029/2010JD015540>.
- Saleh, Rawad, Marguerite Marks, Jinhyok Heo, Peter J. Adams, Neil M. Donahue, et Allen L. Robinson. 2015. « Contribution of Brown Carbon and Lensing to the Direct Radiative Effect of Carbonaceous Aerosols from Biomass and Biofuel Burning Emissions: CLIMATE EFFECT OF CARBONACEOUS AEROSOLS ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 120 (19): 10,285-10,296. <https://doi.org/10.1002/2015JD023697>.
- Saleh, Rawad, Ellis S. Robinson, Daniel S. Tkacik, Adam T. Ahern, Shang Liu, Allison C. Aiken, Ryan C. Sullivan, et al. 2014. « Brownness of Organics in Aerosols from Biomass Burning Linked to Their Black Carbon Content ». *Nature Geoscience* 7 (9): 647-50. <https://doi.org/10.1038/ngeo2220>.
- Samset, B. H., G. Myhre, Andreas Herber, Y. Kondo, S.-M. Li, N. Moteki, M. Koike, et al. 2014. « Modeled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (août): 20083-115. <https://doi.org/Samset, B. , Myhre, G. , Herber, A. , Kondo, Y. , Li, S. M. , Moteki, N. , Koike, M. , Oshima, N. , Schwarz, J. , Balkanski, Y. , Bauers, S. , Bellouin, N. , Berntsen, T. , Bian, H. , Chin, M. , Diehl, T. , Easter, R. , Ghan, S. ,>

- Iversen, T. , Kirkevåg, A. , Lamarque, J. F. , Lin, G. , Liu, X. , Penners, J. , Schulz, M. , Seland, Ø. , Skeie, R. , Stier, P. , Tamemura, T. , Tsigaridis, K. and Zhang, K. (2014) Modeled black carbon radiative forcing and atmospheric lifetime in AeroCom Phase II constrained by aircraft observations , *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14 (14), pp. 20083-20115 . doi:<https://doi.org/10.5194/acpd-14-20083-2014> <<https://doi.org/10.5194/acpd-14-20083-2014>> , hdl:10013/epic.44048.
- Samset, B.H., G. Myhre, M. Schulz, Y. Balkanski, S. Bauer, T. K. Berntsen, H. Bian, et al. 2013. « Black Carbon Vertical Profiles Strongly Affect its Radiative Forcing Uncertainty ». *Atmospheric Chemistry and Physics*, mars, 2423-34. <https://doi.org/10.5194/acp-13-2423-2013>.
- Satheesh, S. K., et K. Krishna Moorthy. 2005. « Radiative effects of natural aerosols: A review ». *Atmospheric Environment* 39 (11): 2089-2110. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2004.12.029>.
- Schnaiter, M., C. Linke, O. Möhler, K.-H. Naumann, H. Saathoff, R. Wagner, U. Schurath, et B. Wehner. 2005. « Absorption Amplification of Black Carbon Internally Mixed with Secondary Organic Aerosol ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 110 (D19). <https://doi.org/10.1029/2005JD006046>.
- Schultz, M.G., Leif Backman, Yves Balkanski, S. Bjoerndalsaeter, R. Brand, J.P. Burrows, S. Dalsoeren, et al. 2007. *REanalysis of the TROpospheric chemical composition over the past 40 years*.
- Schwarz, J. P., J. R. Spackman, D. W. Fahey, R. S. Gao, U. Lohmann, P. Stier, L. A. Watts, et al. 2008. « Coatings and Their Enhancement of Black Carbon Light Absorption in the Tropical Atmosphere ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D3). <https://doi.org/10.1029/2007JD009042>.
- Seinfeld, John H., et Spyros N. Pandis. 2016. *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons.
- Seinfeld, John H., Spyros N. Pandis, et Kevin Noone. 1998. « Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change ». *Physics Today* 51 (10): 88. <https://doi.org/10.1063/1.882420>.
- Shao, Y., M. Ishizuka, M. Mikami, et J. F. Leys. 2011. « Parameterization of Size-Resolved Dust Emission and Validation with Measurements ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 116 (D8). <https://doi.org/10.1029/2010JD014527>.
- Shao, Yaping. 2001. « A Model for Mineral Dust Emission ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D17): 20239-54. <https://doi.org/10.1029/2001JD900171>.
- . 2004. « Simplification of a Dust Emission Scheme and Comparison with Data ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 109 (D10). <https://doi.org/10.1029/2003JD004372>.
- Shiraiwa, M., Y. Kondo, T. Iwamoto, et K. Kita. 2010. « Amplification of Light Absorption of Black Carbon by Organic Coating ». *Aerosol Science and Technology* 44 (1): 46-54. <https://doi.org/10.1080/02786820903357686>.
- Sierau, Berko, David S. Covert, Derek J. Coffman, Patricia K. Quinn, et Timothy S. Bates. 2006. « Aerosol Optical Properties during the 2004 New England Air Quality Study-Intercontinental Transport and Chemical Transformation: Gulf of Maine Surface Measurements-Regional and Case Studies: AEROSOL OPTICAL PROPERTIES NEAQS 2004 ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (D23): n/a-n/a. <https://doi.org/10.1029/2006JD007568>.
- Sinha, Parikhit, Peter V. Hobbs, Robert J. Yokelson, Isaac T. Bertschi, Donald R. Blake, Isobel J. Simpson, Song Gao, Thomas W. Kirchstetter, et Tica Novakov. 2003. « Emissions of Trace Gases and Particles from Savanna Fires in Southern Africa ». *Journal of*



- Skamarock, C., B. Klemp, Jimmy Dudhia, O. Gill, Dale Barker, G. Duda, Xiang-yu Huang, Wei Wang, et G. Powers. 2008. « A Description of the Advanced Research WRF Version 3 ». <https://doi.org/10.5065/D68S4MVH>.
- Skamarock, William C, Joseph B Klemp, Jimmy Dudhia, David O Gill, Dale M Barker, Wei Wang, et Jordan G Powers. 2005. « A description of the advanced research WRF version 2 ». National Center For Atmospheric Research Boulder Co Mesoscale and Microscale ....
- Slingo, A., T. P. Ackerman, R. P. Allan, E. I. Kassianov, S. A. McFarlane, G. J. Robinson, J. C. Barnard, et al. 2006. « Observations of the Impact of a Major Saharan Dust Storm on the Atmospheric Radiation Balance ». *Geophysical Research Letters* 33 (24). <https://doi.org/10.1029/2006GL027869>.
- Smirnov, A., B. N. Holben, T. F. Eck, O. Dubovik, et I. Slutsker. 2000. « Cloud-Screening and Quality Control Algorithms for the AERONET Database ». *Remote Sensing of Environment* 73 (3): 337-49. [https://doi.org/10.1016/S0034-4257\(00\)00109-7](https://doi.org/10.1016/S0034-4257(00)00109-7).
- Solomon, Susan, Martin Manning, Melinda Marquis, et Dahe Qin. 2007. *Climate change 2007-the physical science basis: Working group I contribution to the fourth assessment report of the IPCC*. Vol. 4. Cambridge university press.
- Sorensen, C. M. 2001. « Light Scattering by Fractal Aggregates: A Review ». *Aerosol Science and Technology* 35 (2): 648-87. <https://doi.org/10.1080/02786820117868>.
- Stephens, Graeme L., Deborah G. Vane, Ronald J. Boain, Gerald G. Mace, Kenneth Sassen, Zhien Wang, Anthony J. Illingworth, et al. 2002. « The cloudsat mission and the a-train ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 83 (12): 1771-90. <https://doi.org/10.1175/BAMS-83-12-1771>.
- Stevens, Robin, et Ashu Dastoor. 2019. « A Review of the Representation of Aerosol Mixing State in Atmospheric Models ». *Atmosphere* 10 (4): 168. <https://doi.org/10.3390/atmos10040168>.
- Stier, P., N. a. J. Schutgens, N. Bellouin, H. Bian, O. Boucher, M. Chin, S. Ghan, et al. 2013. « Host Model Uncertainties in Aerosol Radiative Forcing Estimates: Results from the AeroCom Prescribed Intercomparison Study ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 13 (6): 3245-70. <https://doi.org/10.5194/acp-13-3245-2013>.
- Sumlin, Benjamin, Yuli Heinson, Nishit Shetty, Apoorva Pandey, Robert Pattison, Stephen Baker, Wei Hao, et Rajan Chakrabarty. 2017. « UV-Vis-IR Spectral Complex Refractive Indices and Optical Properties of Brown Carbon Aerosol from Biomass Burning ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 206 (décembre). <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.12.009>.
- Swap, R., M. Garstang, S. A. Macko, P. D. Tyson, W. Maenhaut, P. Artaxo, P. Kållberg, et R. Talbot. 1996. « The Long-Range Transport of Southern African Aerosols to the Tropical South Atlantic ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 101 (D19): 23777-91. <https://doi.org/10.1029/95JD01049>.
- Swap, R. J., H. J. Annegarn, J. T. Suttles, J. Haywood, M. C. Helmlinger, C. Hely, P. V. Hobbs, et al. 2002. « The Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000) : Overview of the Dry Season Field Campaign ». *South African Journal of Science* 98 (3-4): 125-30.
- Tanré, D., F. M. Bréon, J. L. Deuzé, O. Dubovik, F. Ducos, P. François, P. Goloub, M. Herman, A. Lifermann, et F. Waquet. 2011. « Remote Sensing of Aerosols by Using Polarized, Directional and Spectral Measurements within the A-Train: The PARASOL Mission ». *Atmospheric Measurement Techniques* 4 (7): 1383-95. <https://doi.org/10.5194/amt-4-1383-2011>.

- Tanré, D, C Deroo, et P Duhaut. 1986. « Simulate the satellite signal in the solar spectrum (5S) ». *User's Guide, Laboratory d'Optique Atmospherique, UST de Lille* 59655.
- Tanré, D., Y. J. Kaufman, M. Herman, et S. Mattoo. 1997. « Remote Sensing of Aerosol Properties over Oceans Using the MODIS/EOS Spectral Radiances ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 102 (D14): 16971-88. <https://doi.org/10.1029/96JD03437>.
- Tanré, D., Y. J. Kaufman, B. N. Holben, B. Chatenet, A. Karnieli, F. Lavenu, L. Blarel, O. Dubovik, L. A. Remer, et A. Smirnov. 2001. « Climatology of Dust Aerosol Size Distribution and Optical Properties Derived from Remotely Sensed Data in the Solar Spectrum ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 106 (D16): 18205-17. <https://doi.org/10.1029/2000JD900663>.
- Tanré, Didier. 2014. « Fin de la mission Parasol ». *La Météorologie* 8 (84): 2. <https://doi.org/10.4267/2042/53177>.
- Taylor, Jonathan W., Huihui Wu, Kate Szpek, Keith Bower, Ian Crawford, Michael J. Flynn, Paul I. Williams, et al. 2020. « Absorption Closure in Highly Aged Biomass Burning Smoke ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 20 (19): 11201-21. <https://doi.org/10.5194/acp-20-11201-2020>.
- Tewari, M, F Chen, W Wang, J Dudhia, M A LeMone, G Gayno, J Wegiel, et R H Cuenca. 2004. « 14.2A IMPLEMENTATION AND VERIFICATION OF THE UNIFIED NOAH LAND SURFACE MODEL IN THE WRF MODEL », 6.
- Thunis, P., Emilia Georgieva, et Stefano Galmarini. 2011. *A procedure for air quality models benchmarking, Version 2*.
- Tian, Hanqin, Chaoqun Lu, Philippe Ciais, Anna M. Michalak, Josep G. Canadell, Eri Saikawa, Deborah N. Huntzinger, et al. 2016. « The Terrestrial Biosphere as a Net Source of Greenhouse Gases to the Atmosphere ». *Nature* 531 (7593): 225-28. <https://doi.org/10.1038/nature16946>.
- Torres, O., C. Ahn, et Z. Chen. 2013. « Improvements to the OMI Near-UV Aerosol Algorithm Using A-Train CALIOP and AIRS Observations ». *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (11): 3257-70. <https://doi.org/10.5194/amt-6-3257-2013>.
- Torres, O., P. K. Bhartia, J. R. Herman, Z. Ahmad, et J. Gleason. 1998. « Derivation of Aerosol Properties from Satellite Measurements of Backscattered Ultraviolet Radiation: Theoretical Basis ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 103 (D14): 17099-110. <https://doi.org/10.1029/98JD00900>.
- Torres, O., P. K. Bhartia, J. R. Herman, A. Sinyuk, Paul Ginoux, et Brent Holben. 2002. « A Long-Term Record of Aerosol Optical Depth from TOMS Observations and Comparison to AERONET Measurements ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 59 (3): 398-413. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(2002\)059<0398:ALTROA>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(2002)059<0398:ALTROA>2.0.CO;2).
- Torres, Omar, Hiren Jethva, et P. K. Bhartia. 2012. « Retrieval of Aerosol Optical Depth above Clouds from OMI Observations: Sensitivity Analysis and Case Studies ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 69 (3): 1037-53. <https://doi.org/10.1175/JAS-D-11-0130.1>.
- Torres, Omar, Aapo Tanskanen, Ben Veihelmann, Changwoo Ahn, Remco Braak, Pawan K. Bhartia, Pepijn Veefkind, et Pieternel Levelt. 2007. « Aerosols and Surface UV Products from Ozone Monitoring Instrument Observations: An Overview ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 112 (D24). <https://doi.org/10.1029/2007JD008809>.
- Trenberth, Kevin E., John T. Fasullo, et Jeffrey Kiehl. 2009. « Earth's Global Energy Budget ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 90 (3): 311-24. <https://doi.org/10.1175/2008BAMS2634.1>.
- Turquety, S, Laurent Menut, B Bessagnet, Alessandro Anav, Nicolas Viovy, Fabienne Maignan, et M Wooster. 2014. *APIFLAME v1.0: high-resolution fire emission model*

- and application to the Euro-Mediterranean region. Vol. 7. <https://doi.org/10.5194/gmd-7-587-2014>.
- Twomey, S. 1977. « The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 34 (7): 1149-52. [https://doi.org/10.1175/1520-0469\(1977\)034<1149:TIOPOT>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0469(1977)034<1149:TIOPOT>2.0.CO;2).
- Vanbauce, Claudine, Bertrand Cadet, et Roger T. Marchand. 2003. « Comparison of POLDER Apparent and Corrected Oxygen Pressure to ARM/MMCR Cloud Boundary Pressures ». *Geophysical Research Letters* 30 (5). <https://doi.org/10.1029/2002GL016449>.
- Vaughan, Mark A., Kathleen A. Powell, David M. Winker, Chris A. Hostetler, Ralph E. Kuehn, William H. Hunt, Brian J. Getzewich, Stuart A. Young, Zhaoyan Liu, et Matthew J. McGill. 2009. « Fully Automated Detection of Cloud and Aerosol Layers in the CALIPSO Lidar Measurements ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26 (10): 2034-50. <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1228.1>.
- Vester, Barbara P., Martin Ebert, Eric B. Barnert, Johannes Schneider, Konrad Kandler, Lothar Schütz, et Stephan Weinbruch. 2007. « Composition and Mixing State of the Urban Background Aerosol in the Rhein-Main Area (Germany) ». *Atmospheric Environment* 41 (29): 6102-15. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.04.021>.
- Wagner, S. C., Y. M. Govaerts, et A. Lattanzio. 2010. « Joint Retrieval of Surface Reflectance and Aerosol Optical Depth from MSG/SEVIRI Observations with an Optimal Estimation Approach: 2. Implementation and Evaluation ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 115 (D2). <https://doi.org/10.1029/2009JD011780>.
- Wang, X., C. L. Heald, D. A. Ridley, J. P. Schwarz, J. R. Spackman, A. E. Perring, H. Coe, D. Liu, et A. D. Clarke. 2014. « Exploiting Simultaneous Observational Constraints on Mass and Absorption to Estimate the Global Direct Radiative Forcing of Black Carbon and Brown Carbon ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (20): 10989-10. <https://doi.org/10.5194/acp-14-10989-2014>.
- Wang, Xuan, Colette L. Heald, Arthur J. Sedlacek, Suzane S. de Sá, Scot T. Martin, M. Lizabeth Alexander, Thomas B. Watson, Allison C. Aiken, Stephen R. Springston, et Paulo Artaxo. 2016. « Deriving Brown Carbon from Multiwavelength Absorption Measurements: Method and Application to AERONET and Aethalometer Observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (19): 12733-52. <https://doi.org/10.5194/acp-16-12733-2016>.
- Waquet, F., C. Cornet, J.-L. Deuzé, O. Dubovik, F. Ducos, P. Goloub, M. Herman, et al. 2013a. « Retrieval of Aerosol Microphysical and Optical Properties above Liquid Clouds from POLDER/PARASOL Polarization Measurements ». *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (4): 991-1016. <https://doi.org/10.5194/amt-6-991-2013>.
- Waquet, F., F. Peers, F. Ducos, P. Goloub, S. Platnick, J. Riedi, D. Tanré, et F. Thieuleux. 2013b. « Global analysis of aerosol properties above clouds ». *Geophysical Research Letters* 40 (21): 5809-14. <https://doi.org/10.1002/2013GL057482>.
- Waquet, F., J. Riedi, L. C. Labonnote, P. Goloub, B. Cairns, J.-L. Deuzé, et D. Tanré. 2009. « Aerosol Remote Sensing over Clouds Using A-Train Observations ». *Journal of the Atmospheric Sciences* 66 (8): 2468-80. <https://doi.org/10.1175/2009JAS3026.1>.
- Werf, G. R. van der, J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, M. Mu, P. S. Kasibhatla, D. C. Morton, R. S. DeFries, Y. Jin, et T. T. van Leeuwen. 2010. « Global Fire Emissions and the Contribution of Deforestation, Savanna, Forest, Agricultural, and Peat Fires (1997–2009) ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 10 (23): 11707-35. <https://doi.org/10.5194/acp-10-11707-2010>.
- Werf, Guido R. van der, James T. Randerson, Louis Giglio, Thijs T. van Leeuwen, Yang Chen, Brendan M. Rogers, Mingquan Mu, et al. 2017. « Global Fire Emissions Estimates

- during 1997–2016 ». *Earth System Science Data* 9 (2): 697-720. <https://doi.org/10.5194/essd-9-697-2017>.
- Wesely, M. L. 1989. « Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models ». *Atmospheric Environment* (1967) 23 (6): 1293-1304. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(89\)90153-4](https://doi.org/10.1016/0004-6981(89)90153-4).
- Whitby, K. T. (1978). On the multimodal nature of atmospheric size distribution. In *Third International Conference on Nucleation, Leningrad, URSS*.
- Whitby, K. T., & Cantrell, B. (1976). Atmospheric aerosols- Characteristics and measurement. In *International Conference on Environmental Sensing and Assessment, Las Vegas, Nev* (p. 1).
- Wiedinmyer, C., S. Akagi, Robert Yokelson, L. Emmons, J. Al-Saadi, J. Orlando, et A. Soja. 2011. « The Fire INventory from NCAR (FINN): A High Resolution Global Model to Estimate the Emissions from Open Burning ». *Geoscientific Model Development*, janvier, 625-41.
- Wilcox, E. M. 2012. « Direct and Semi-Direct Radiative Forcing of Smoke Aerosols over Clouds ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 12 (1): 139-49. <https://doi.org/10.5194/acp-12-139-2012>.
- Williams, T. C., C. R. Shaddix, K. A. Jensen, et J. M. Suo-Anttila. 2007. « Measurement of the dimensionless extinction coefficient of soot within laminar diffusion flames ». *International Journal of Heat and Mass Transfer* 50 (7): 1616-30. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2006.08.024>.
- Winker, David M., Mark A. Vaughan, Ali Omar, Yongxiang Hu, Kathleen A. Powell, Zhaoyan Liu, William H. Hunt, et Stuart A. Young. 2009. « Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26 (11): 2310-23. <https://doi.org/10.1175/2009JTECHA1281.1>.
- Wu, Cheng, Dui Wu, et Jian Zhen Yu. 2018. « Quantifying Black Carbon Light Absorption Enhancement with a Novel Statistical Approach ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (1): 289-309. <https://doi.org/10.5194/acp-18-289-2018>.
- Yokelson, R. J., T. J. Christian, T. G. Karl, et A. Guenther. 2008. « The Tropical Forest and Fire Emissions Experiment: Laboratory Fire Measurements and Synthesis of Campaign Data ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 8 (13): 3509-27. <https://doi.org/10.5194/acp-8-3509-2008>.
- Yon, Jérôme, Alexandre Bescond, et Fengshan Liu. 2015. « On the radiative properties of soot aggregates part 1: Necking and overlapping ». *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 162 (avril). <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2015.03.027>.
- Young, Stuart A., et Mark A. Vaughan. 2009. « The Retrieval of Profiles of Particulate Extinction from Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations (CALIPSO) Data: Algorithm Description ». *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 26 (6): 1105-19. <https://doi.org/10.1175/2008JTECHA1221.1>.
- Yu, H., Y. J. Kaufman, M. Chin, G. Feingold, L. A. Remer, T. L. Anderson, Y. Balkanski, et al. 2005. « A review of measurement-based assessment of aerosol direct radiative effect and forcing ». *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 5 (4): 7647-7768.
- Yu, H, PK Quinn, G Feingold, LA Remer, RA Kahn, M Chin, et SE Schwartz. 2009. « Remote sensing and in situ measurements of aerosol properties, burdens, and radiative forcing ». *Atmospheric Aerosol Properties and Climate Impacts: Synthesis and Assessment Product 2.3: Report by the US Climate Change Science Program and the Subcommittee on Global Change Research*, 21-54.
- Yu, Hongbin, R. E. Dickinson, M. Chin, Y. J. Kaufman, B. N. Holben, I. V. Geogdzhayev, et M. I. Mishchenko. 2003. « Annual Cycle of Global Distributions of Aerosol Optical Depth from Integration of MODIS Retrievals and GOCART Model Simulations ».

- Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D3).  
<https://doi.org/10.1029/2002JD002717>.
- Zhang, Renyi, Alexei F. Khalizov, Joakim Pagels, Dan Zhang, Huaxin Xue, et Peter H. McMurry. 2008. « Variability in Morphology, Hygroscopicity, and Optical Properties of Soot Aerosols during Atmospheric Processing ». *Proceedings of the National Academy of Sciences* 105 (30): 10291-96. <https://doi.org/10.1073/pnas.0804860105>.
- Zhang, Ying, Zhengqiang Li, Yuhuan Zhang, Donghui Li, Lili Qie, Huizheng Che, et Hua Xu. 2017. « Estimation of Aerosol Complex Refractive Indices for Both Fine and Coarse Modes Simultaneously Based on AERONET Remote Sensing Products ». *Atmospheric Measurement Techniques* 10 (9): 3203-13. <https://doi.org/10.5194/amt-10-3203-2017>.
- Zhang, Zhibo, Kerry Meyer, Hongbin Yu, Steven Platnick, Peter Colarco, Zhaoyan Liu, et Lazaros Oreopoulos. 2016. « Shortwave Direct Radiative Effects of Above-Cloud Aerosols over Global Oceans Derived from 8 Years of CALIOP and MODIS Observations ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 16 (5): 2877-2900. <https://doi.org/10.5194/acp-16-2877-2016>.
- Zhao, R., A. K. Y. Lee, L. Huang, X. Li, F. Yang, et J. P. D. Abbatt. 2015. « Photochemical Processing of Aqueous Atmospheric Brown Carbon ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 15 (11): 6087-6100. <https://doi.org/10.5194/acp-15-6087-2015>.
- Zhao, Tom X.-P., Istvan Laszlo, Wei Guo, Andrew Heidinger, Changyong Cao, Aleksandar Jelenak, Dan Tarpley, et Jerry Sullivan. 2008. « Study of Long-Term Trend in Aerosol Optical Thickness Observed from Operational AVHRR Satellite Instrument ». *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D7). <https://doi.org/10.1029/2007JD009061>.
- Zhong, M., et M. Jang. 2014. « Dynamic Light Absorption of Biomass-Burning Organic Carbon Photochemically Aged under Natural Sunlight ». *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (3): 1517-25. <https://doi.org/10.5194/acp-14-1517-2014>.
- Zhong, Min, et Myoseon Jang. 2011. « Light absorption coefficient measurement of SOA using a UV-Visible spectrometer connected with an integrating sphere ». *Atmospheric Environment* 45 (25): 4263-71. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.04.082>.
- Zuidema, Paquita, Ping Chang, Brian Medeiros, Ben P. Kirtman, Roberto Mechoso, Edwin K. Schneider, Thomas Toniazzo, et al. 2016a. « Challenges and Prospects for Reducing Coupled Climate Model SST Biases in the Eastern Tropical Atlantic and Pacific Oceans: The U.S. CLIVAR Eastern Tropical Oceans Synthesis Working Group ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 97 (12): 2305-28. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-15-00274.1>.
- Zuidema, Paquita, Jens Redemann, James Haywood, Robert Wood, Stuart Piketh, Martin Hipondoka, et Paola Formenti. 2016b. « Smoke and Clouds above the Southeast Atlantic: Upcoming Field Campaigns Probe Absorbing Aerosol's Impact on Climate ». *Bulletin of the American Meteorological Society* 97 (7): 1131-35. <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-15-00082.1>.
- Zuidema, Paquita, Arthur J. Sedlacek, Connor Flynn, Stephen Springston, Rodrigo Delgadillo, Jianhao Zhang, Allison C. Aiken, Annette Koontz, et Paytsar Muradyan. 2018. « The Ascension Island Boundary Layer in the Remote Southeast Atlantic Is Often Smoky ». *Geophysical Research Letters* 45 (9): 4456-65. <https://doi.org/10.1002/2017GL076926>.