

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

APPLICATION DU "NORTHERN AEROSOL REGIONAL CLIMATE MODEL" (NARCM)
À LA SIMULATION ET À L'ANALYSE DES CONCENTRATIONS DE SULFATE DURANT
LA CAMPAGNE SABINA EN ATLANTIQUE NORD

MÉMOIRE

PRÉSENTÉ

COMME EXIGENCE PARTIELLE

DE LA MAÎTRISE EN SCIENCES DE L'ATMOSPHÈRE

PAR

ATIF TAOUSSI

MAI 2023

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL
Service des bibliothèques

Avertissement

La diffusion de ce mémoire se fait dans le respect des droits de son auteur, qui a signé le formulaire *Autorisation de reproduire et de diffuser un travail de recherche de cycles supérieurs* (SDU-522 – Rév.04-2020). Cette autorisation stipule que «conformément à l'article 11 du Règlement no 8 des études de cycles supérieurs, [l'auteur] concède à l'Université du Québec à Montréal une licence non exclusive d'utilisation et de publication de la totalité ou d'une partie importante de [son] travail de recherche pour des fins pédagogiques et non commerciales. Plus précisément, [l'auteur] autorise l'Université du Québec à Montréal à reproduire, diffuser, prêter, distribuer ou vendre des copies de [son] travail de recherche à des fins non commerciales sur quelque support que ce soit, y compris l'Internet. Cette licence et cette autorisation n'entraînent pas une renonciation de [la] part [de l'auteur] à [ses] droits moraux ni à [ses] droits de propriété intellectuelle. Sauf entente contraire, [l'auteur] conserve la liberté de diffuser et de commercialiser ou non ce travail dont [il] possède un exemplaire.»

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma plus profonde gratitude à mon directeur, le Dr Jean-Pierre Blanchet, dont je n'oublierai jamais la sincérité et les encouragements. Le Dr Jean-Pierre Blanchet a été une source d'inspiration alors que je parcourais le chemin de cette maîtrise. Il est la véritable définition d'un leader et le modèle ultime. Son soutien et ses conseils dès la première étape de la recherche m'ont permis de développer une compréhension profonde du sujet.

Je suis reconnaissant envers ma mère dont l'amour et le soutien constants me gardent motivée et confiant. Un grand merci à ma femme, qui me garde les pieds sur terre, me rappelle ce qui est important dans la vie et me soutient toujours dans mes aventures.

Je remercie aussi tous ceux qui m'ont aidé de loin et de proche pour réaliser ce projet.

TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS	ii
LISTE DES FIGURES	v
LISTE DES TABLEAUX	viii
LISTE DES ABRÉVIATIONS, DES SIGLES ET DES ACRONYMES.....	ix
RÉSUMÉ.....	xi
ABSTRACT	xii
INTRODUCTION.....	1
CHAPITRE 1 REVUE DE LITTÉRATURE.....	3
1.1 Introduction.....	3
1.2 Généralités des aérosols	3
1.2.1 Formation des aérosols	5
1.2.2 Élimination des aérosols	6
1.2.3 Diméthylsulfure (DMS).....	8
1.3 Impacts des aérosols sur le climat.....	9
CHAPITRE 2 MÉTHODOLOGIE	11
2.1 Description de la campagne SABINA	11
2.2 Mesures des données de SABINA	13
2.3 Les variables météorologiques.....	13
2.4 Instruments des mesures	14
2.4.1 DMS océanique.....	14
2.4.2 DMS atmosphérique	15
2.4.3 Dioxyde de soufre (SO ₂).....	15
2.4.4 Le sulfate.....	16
2.4.5 Limite instrumentale :	17
2.5 Simulation des concentrations des aérosols sulfatés	18
2.5.1 Présentation du modèle	18
19	
2.5.1.1 Le modèle atmosphérique MRC	19
2.5.1.2 Le module CAM.....	20
2.5.2 Calcul du flux de DMS	21
2.5.2.1 Dimensions des particules	22
2.5.2.2 Processus des aérosols sulfatiques en ciel clair	23
2.5.2.2.1 Processus chimiques (S. L. Gong, 2003).....	23

2.5.3	Processus dans les nuages.....	27
2.5.3.1	Processus chimiques	27
2.5.3.1.1	Activation	29
2.5.3.1.2	Dimensions des gouttelettes	29
2.5.3.1.3	Précipitation.....	29
2.5.4	Exploitations des données.....	31
2.6	Simulations du NARCM.....	33
2.6.1	Le DMS océanique	35
2.6.2	Les gaz sulfurés : DMS et SO ₂	36
2.6.3	Les particules de sulfate.....	37
2.7	Vérification synoptique.....	38
CHAPITRE 3 RÉSULTATS ET ANALYSES		40
3.1	Analyse de la circulation atmosphérique	40
3.1.1	Cartes d'analyse de surface.....	40
3.1.2	Les rétrotrajectoires (HYSPLIT)	40
3.2	Les principales variables météorologiques	46
3.2.1	La pression de surface.....	47
3.2.2	Le vent près de la surface.....	47
3.2.3	La température près de la surface	48
3.2.4	DMS.....	49
3.2.5	DMS océanique.....	50
3.2.6	Flux de DMS.....	51
3.2.7	Vérification du DMS simulé.....	53
3.2.8	Vent versus DMS.....	56
3.3	SO ₂	58
3.4	Les particules du sulfate.....	63
3.4.1	Comparaison entre NARCM et SABINA.....	63
3.4.2	Moyenne temporelle régionale du sulfate	65
3.4.3	Profil vertical à la station T3	66
3.4.4	Distribution de tailles de particules	67
3.4.5	Évolution du spectre de tailles des particules de sulfate	69
CONCLUSION		74
ANNEXE A : Analyse du géopotentiel.....		76
ANNEXE B : Analyse du Sulfate		77
BIBLIOGRAPHIE		78

LISTE DES FIGURES

Figure 1-1 Répartition des sources des émissions de sulfate en fonction de la latitude et leurs compositions selon les sources d'origines naturelles (volcanique en jaune, feux de forêts en noir, maritime dont le sel de mer et le DMS en bleu, les déserts dont les particules de sol en vert) et anthropiques en rouge (raffineries, les usines, la combustion et les zones agricoles). (Bates et al., 1992).	4
Figure 1-2 Processus de formation et d'évolution des aérosols dans l'atmosphère. (A. Renoult et D. Boulaud, 1998).....	7
Figure 1-3 Une distribution schématique de la taille des aérosols atmosphériques et de leurs temps de résidence moyen dans l'air. (Réf. : https://allaboutaerosol.wordpress.com/aerosol-in-the-atmosphere/)	8
Figure 2-1 : Trajet du parcours de la campagne SABINA dans le bassin Nord-Atlantique représenté par la ligne pointillée. Le trajet inclut aussi les huit stations de séjours d'analyses étendues du bateau (les points étoiles) nommées L, T1, T2, T3, T4, T5, T6 et T7.	12
Figure 2-2 Échantillonneur d'air à haut volume PM10 (https://tisch-env.com/)	14
Figure 2-3 Schéma de structure générale du modèle NARCM.	19
Figure 2-4 Processus utilisé par NARCM : production et émission de DMS, oxydation, transformation en CCN et transport (Figure traduite et adaptée (Simo. 2001)).....	30
Figure 2-5 Domaine de l'expérience utilisé par le modèle NARCM incluant les 8 stations et le trajet de la campagne SABINA.	33
Figure 2-6 Base de données climatique globale de la concentration du DMS océanique (nmol/l) juillet (Kettle, 1999) pour le globe.....	36
Figure 3-1 Analyses de surface à 00Z produites par Environnement Canada pour les jours d'arrêts à chaque station du parcours de SABINA. Chaque panneau est défini par un des points rouges L, T1, T2, T3, T4, T5, T6 et T7. Ceux-ci représentent les stations de séjour du bateau correspondant respectivement aux dates 08, 10, 11, 14, 16, 18, 20 et 22 juillet 2003. La ligne rouge représente le trajet complet du parcours du bateau durant la campagne SABINA.	44
Figure 3-2 : Rétrotrajectoires calculées selon l'algorithme HYPPLIT pour 3 parcelles (rouge, bleu, vert) arrivant à chaque station (de L à T7). Trois altitudes arrivant à chaque station sont considérées : 100m (rouge), 500m (bleu) et 1000m (vert). Pour chacune des 8 stations, le panneau supérieur montre les trajectoires horizontales selon les positions géographiques, alors que le panneau inférieur montre les trajectoires verticales selon l'altitude en fonction du temps antérieur à la mesure.	45
Figure 3-3 : Courbes de corrélations entre les valeurs observées et simulées de pression, de vitesse de vent et de température.	46
Figure 3-4 : Pression au niveau de la mer observée (bleu) comparée à la simulation (rouge) le long du parcours SABINA.....	47

Figure 3-5 : La vitesse du vent au niveau de la mer observée (rouge) comparée à la simulation (bleu) le long du parcours SABINA.....	48
Figure 3-6 : Variation de température de l'air au niveau de la mer observée (rouge) comparée à la simulation (bleu) le long du parcours de la campagne SABINA.	49
Figure 3-7 : Comparaison entre les concentrations de DMS océanique mesurées par SABINA et celles de la base de données climatique de Kettle (1999) aux stations correspondantes {L, T1, T2, T3, T4, T6, T7} utilisée par le modèle NARCM pour le mois de juillet.	50
Figure 3-8 : Moyennes mensuelles du mois juillet 2003, pour : a) la vitesse du vent (m/s), b) la pression (hPa), c) le flux du DMS (ppbv) et d) le DMS atmosphérique (ppbv).	53
Figure 3-9 : Courbes de comparaison entre le DMS simulé et DMS observé le long du parcours de SABINA.	54
Figure 3-10 : Courbes des concentrations du DMS simulé réduit de 51% et du DMS observé durant le parcours de SABINA.....	55
Figure 3-11 : Comparaison des 2 corrélations : les concentrations du DMS observées et simulées originales (points bleus) et les concentrations du DMS observées et simulées corrigé (points rouges).	56
Figure 3-12 : L'évolution des résultats observés de la concentration du DMS atmosphérique (ppbv) et de la vitesse du vent (m/s) durant le parcours de SABINA.....	57
Figure 3-13 : Concentrations du DMS atmosphérique et la vitesse du vent simulées par NARCM durant le parcours de SABINA.....	57
Figure 3-14 : Moyenne mensuelle (juillet 2003) de Log10 concentration de SO ₂ simulée [ng/m ³].....	59
Figure 3-15 : Profil vertical de la moyenne mensuelle du juillet 2003 dans la station T4 du SO ₂ (anthropique +biogénique) et du SO ₂ biogénique.	60
Figure 3-16 : Comparaison entre le SO ₂ observé et simulé durant le parcours du SABINA : a) observations et simulations en surface (1000 hPa). b) observations en surface versus simulations au niveau 960hPa. Les flèches (1 à 4) indiquent des événements où la concentration simulée légèrement au-dessus de la surface (environ 400m) correspond mieux aux observations, indiquant la tendance du modèle à surélever le transport des aérosols anthropiques à partir du continent (Figure 3-15).	61
Figure 3-17 : Comparaison entre le sulfate total (anthropique + biogénique) simulé (bleu) et celui observé (magenta).	64
Figure 3-18 : Moyenne mensuelle (juillet 2003) du Log10 concentration [ng/m ³] du sulfate total simulée par NARCM : a) Sulfate anthropique + biogénique b) Sulfate biogénique seulement.	65
Figure 3-19 : Profile vertical moyen du Sulfate pour la station T3 : biogénique et anthropique + biogénique.	66
Figure 3-20 : Comparaison entre les concentrations de sulfate simulées par NARCM et celles observées durant la campagne SABINA au niveau de la surface pour les intervalles de tailles : a) D < 0.49, b) 0.49-0.95 et c) 0.95-10 µm.	70

Figure 3-21 : Spectres de tailles du sulfate (traceurs 17 à 22) le long du parcours de SABINA : a) le sulfate anthropique + biogénique (anth) et b) le sulfate biogénique (biog). 72

Figure 0-1 : Réanalyses de la région du parcours de SABINA été 2003 : épaisseurs géopotentielle de 500mb en couleur. La pression de la surface en lignes noires..... 76

Figure 0-2 : Séquence temporelle du Sulfate total simulé (biogénique à droite et anthropique + biogénique à gauche) à 18 Z pour chaque jour de la séquence du 8 au 12 juillet 2003. 77

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 2.1 Les informations de chaque station de la campagne (date, position et province biogéochimique).	13
Tableau 2.2 Diamètre des particules de sulfate détectées par l'instrument PM10 pendant la campagne SABINA.	17
Tableau 2.3 Les 12 catégories de chaque type parmi les 5 espèces d'aérosols dans le module CAM.....	20
Tableau 2.4 Définition des champs de traceurs calculés et sauvegardés par le modèle, ainsi que leurs noms et leurs unités de mesure.....	32
Tableau 2.5 Paramètres utilisés par les deux expériences dans NARCM.....	34
Tableau 2.6 Catégories de tailles des particules aérosols (traceurs) utilisé dans NARCM.....	37
Tableau 2.7 Comparaison entre les intervalles de diamètre des particules mesurées par SABINA et leur traceurs correspondants de NARCM.	38
Tableau 3.1 Comparaison entre les concentrations de DMS océanique observées et celles de la base des données de Kettle (1999).	51

LISTE DES ABRÉVIATIONS, DES SIGLES ET DES ACRONYMES

CAM	Canadian Aerosol Module
CCCMA	Canadian Centre for Climate Modelling and Analysis
CCN	Cloud Condensation Nuclei
CGCM	Canadian General Circulation Model
CLASS	Canadian Land Surface Scheme
CLAW	Charlson, Lovelock, Andreae, Warren
COS	Carbonyl-Sulfide
CRCM	Canadian Regional Climate Model
C-SOLAS	Canadian - Surface Ocean Lower Atmosphere Study
DMS	Di-Methyl-Sulfide
DMSP	Di-Methyl-Sulfonio-Propionate
GEIA	Global Emissions Inventory Activity
HNLC	High Nutrient Low Chlorophyll
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
MOZART	Model of Ozone And Related Tracers
MSA	Methane Sulfonic Acid
NARCM	Northern Aerosol Regional Climate Model
NCAR	National Center for Atmospheric Research
NCEP	National Centers for Environmental Prediction
NOAA	National Oceanic & Atmospheric Administration
PMEL	Pacific Marine Environmental Laboratory

RPN	Recherche en Prévision Numérique
SABINA	Study of the Air-Sea Biogeochemical Interactions in the North Atlantic
SeaWiFS	Sea-viewing Wide Field-of-view Sensor
SST	Sea surface temperature
SO ₄ ²⁻	Sulfate
NH ₄ ⁺	Ion Ammonium
CH ₃ SCH ₃	Dimethyl Sulfide (DMS)
SO ₂	Dioxyde de soufre
MSA	Acide méthanesulfonique
CH ₃ SO ₃ H	Acide méthanesulfonique (MSA)
NO ₃ ⁻	Nitrates
BrO	Monoxyde de brome
OH	Hydroxyde
FRM	Mesure de référence fédérale
CG	Chromatographe en phase Gazeuse
DSC	Détecteur de Chimiluminescence de Soufre

RÉSUMÉ

Les études expérimentales ont montré que le diméthylsulfure ou le sulfure de diméthyle (DMS) est le composé naturel émis abondamment dans l'atmosphère océanique et qui pourrait avoir des effets significatifs sur le climat. Il est donc important de comprendre le comportement des aérosols sulfatés maritimes et leurs interactions avec l'environnement atmosphérique. Cependant, les travaux de recherche déjà réalisés dans ce domaine sont limités vu que les campagnes de mesures et d'observations sont dispendieuses et que les modèles de simulation sont en cours de développement. Ce mémoire présente une étude d'évaluation des propriétés des sulfates atmosphériques issue du DMS océanique et influencé par des apports anthropiques du continent américain. L'objectif de cette étude est de vérifier si le modèle atmosphérique NARCM peut simuler de manière réaliste les concentrations observées de DMS, du SO₂ et des particules de sulfate en incluant explicitement les phénomènes d'émission et de transport impliqué à échelle synoptique et à mésoéchelle. Elle permet aussi d'analyser des résultats complémentaires obtenus par la modélisation numérique portant sur l'évolution du DMS et du sulfate à l'échelle régionale vers les observations locales. Pour atteindre ces objectifs, dans un premier temps, une comparaison a été faite entre des simulations du modèle NARCM et les mesures effectuées durant la campagne SABINA qui a eu lieu dans le secteur nord-ouest de l'Océan Atlantique au printemps, à l'été et à l'automne 2003. Par la suite, deux expériences ont été réalisées, avec et sans l'apport des sources anthropiques provenant de l'est de l'Amérique du Nord afin de départir l'apport océanique sur le total des concentrations observées. Les résultats obtenus des simulations ont été comparés à celles des observations prises durant la campagne SABINA dans le but de valider le modèle et d'étendre l'analyse de cette campagne sur l'Atlantique Nord. Ceux-ci ont montré que les simulations de modèle NARCM pour le DMS et le sulfate ne sont comparables aux observations de SABINA que si on prend en compte simultanément les émissions océaniques et anthropiques en provenance de l'Amérique du Nord. D'autre part, on a noté qu'au-dessus de la couche limite, près du continent, l'émission du sulfate anthropique domine, alors que plus loin, près de Groenland, l'émission du DMS océanique domine. La validation du modèle de simulation et l'analyse des multiples sources d'aérosols naturels et anthropiques provenant du DMS et des émissions continentales sont essentielles pour évaluer l'influence des aérosols sulfatés sur le climat.

Mots clés : DMS, aérosols, émissions océaniques, NARCM, simulations atmosphériques.

ABSTRACT

Experimental studies have shown that dimethyl sulfide (DMS) is the most naturally emitted sulfur compound in the atmosphere over the ocean. This could have significant effects on the Earth's climate. Hence, it is important to understand the behaviour of marine sulfate aerosols and their interactions with the atmospheric environment. However, the research already carried out in this area is limited as measurement and observation campaigns are expensive and simulation models are still being developed. This thesis presents a study to assess the properties of atmospheric sulfate near the oceanic surface. The objectives of this study is to verify whether the NARCM atmospheric model can realistically simulate observed concentrations of DMS, SO₂ and sulfate particles by explicitly including the emission and transport phenomena involved, both synoptical and meso-scale, and to numerically model the response of DMS and sulfate at the regional and local scale. To achieve these objectives, a comparison was initially made between simulations of the NARCM model and measurements made during the SABINA campaign in the Northwest Atlantic Ocean in the spring, summer and fall of 2003. Subsequently, two experiments were carried out, with and without the input of anthropogenic sources from Eastern North America, in order to derive the oceanic contribution to the observed total concentrations. The results of the simulations were compared with the SABINA observations to validate the model and extend the observational analysis of North Atlantic campaign. These results show that the NARCM model simulations for DMS and sulfate are comparable to SABINA observations only if oceanic and anthropogenic emissions from North America are considered simultaneously. On the other hand, it was noted that above the boundary layer, near the mainland, the emission of anthropogenic sulfate dominates, while further away, near Greenland, the emission of oceanic DMS dominates. Simulation model validation and analysis of multiple sources of natural and anthropogenic aerosols from MSD and continental emissions are essential to assess the influence of sulfate aerosols on climate.

Keywords: DMS, aerosols, oceanic emissions, NARCM, atmospheric simulations.

INTRODUCTION

Au cours des dernières décennies, le globe terrestre a connu des changements climatiques de plus en plus inquiétants qui ont préoccupé les spécialistes et les organisations météorologiques internationales. Parmi ces changements, on cite le réchauffement planétaire qui est dû principalement à des émissions très importantes de gaz à effets de serre (GES) avec des tendances de températures à la hausse tant sur les continents qu'à la surface des océans. Ce réchauffement a un impact néfaste sur la qualité de l'air, l'environnement et par conséquent sur la santé de l'humanité et de notre économie. Vu que la superficie des océans représente presque les deux tiers de celle de la terre, les aérosols maritimes issus de ces émissions influencent d'une manière significative directement et indirectement sur le système climatique (Manu Anna Thomas et coll. 2022). Notons en particulier, l'influence des aérosols océaniques en termes de forçages radiatifs direct et indirect via la réflectivité des nuages via l'effet Twomey qui est bien connu (Twomey, 1977). C'est particulièrement le cas des aérosols sulfatés dérivés du DMS atmosphérique qui jouent un rôle important dans la microphysique des nuages, des précipitations, de l'albédo planétaire et du bilan radiatif.

Ce mémoire de recherche s'inscrit dans le cadre d'une initiative internationale dont fait partie le réseau canadien SOLAS visant à comprendre les interactions entre les océans et l'atmosphère, ainsi que les conséquences de ces interactions sur le changement climatique mondial. Une campagne de mesures a été effectuée en juillet 2003 en vue de mieux comprendre les effets des aérosols de sulfate atmosphériques sur la composition de l'air. Il s'agit de déterminer les flux des gaz à l'état de traces dans les principales provinces biogéochimiques de l'Atlantique du Nord-ouest. L'objectif ultime de ce travail de recherche est d'évaluer les propriétés et la distribution des aérosols de sulfate et du Diméthyle sulfide (DMS) à partir des observations prises à différentes stations de l'Atlantique de Nord et de simulations simultanées sur le parcours durant la campagne SABINA en considérant les émissions naturelles et anthropiques affectant cette région.

Cette étude de recherche consiste à modéliser et analyser les concentrations en aérosols de sulfate simulées à l'aide du modèle atmosphérique NARCM (North Aerosol Regional Canadian Model) conçu pour traiter les aérosols à l'échelle régionale. Puis de comparer les résultats simulés avec

ceux observés. Comme les aérosols jouent un rôle important dans le changement climatique et puisque leurs observations représentent toujours un défi et surtout dans les régions océaniques où il n'y a pas de stations de mesures régulières, l'analyse des résultats obtenus de la campagne SABINA est considérée primordiale pour vérifier l'application de modèles complémentaires.

Structure de mémoire

Ce mémoire comprend trois chapitres. L'introduction résume le contexte général de cette recherche, la problématique, les objectifs à réaliser ainsi que la méthodologie proposée. Le chapitre 1 présente la revue de littérature sur la généralité des aérosols surtout les aérosols sulfatés, leurs propriétés et leur impact sur le climat ainsi leurs méthodes d'évaluation en citant les modèles existants de simulation. Le chapitre 2 expose les méthodes expérimentales utilisées pour l'évaluation des propriétés des aérosols ainsi que les modèles de simulations appropriées. Le chapitre 3 discute les résultats observés et simulés des concentrations d'aérosol et de ses précurseurs en faisant l'analyse comparative et l'interprétation de ses résultats. Finalement, une conclusion générale résume les principaux résultats obtenus dans cette recherche et propose des recommandations pour des travaux de recherche futurs.

CHAPITRE 1

REVUE DE LITTÉRATURE

1.1 Introduction

D'une part, ce chapitre présente une vue d'ensemble des aérosols, les processus de leur formation notamment les aérosols sulfatés ainsi que leur impact sur le climat. D'autre part, il rappelle des méthodes d'évaluation des propriétés des aérosols, les modèles existants de simulation des aérosols puis les travaux de recherche antérieurs sur la caractérisation des aérosols sulfatés sur l'océan.

1.2 Généralités des aérosols

Rappelons que les aérosols atmosphériques sont de fines particules liquides ou solides en suspension dans l'air. Ces particules ont deux origines principales. La première résulte d'un processus mécanique, par action du vent sur les surfaces continentales et océaniques. Ce processus est principalement à l'origine du mode "grossier" des aérosols dont la dimension est de l'ordre du micron et plus ($D > 1 \mu\text{m}$). La seconde source est physico-chimique associée aux processus de conversion gaz à particules par nucléation et/ou condensation des gaz précurseurs. Ce processus est à l'origine du mode fin des aérosols ($D < 1 \mu\text{m}$). Il conduit à des aérosols primaires et/ou secondaires, selon que la conversion de gaz à particule est réalisée à la source, avant l'émission dans l'atmosphère, ou ultérieurement durant le transport dans l'atmosphère. La composante massique majeure des particules atmosphériques est associée au système des composantes chimiques NO^{-3} / SO_4^{2-} / NH^{+4} . Ce système représente à lui seul 30 à 50 % de la masse particulaire totale (Finlayson-Pitts et Hemminger, 2000). La deuxième composante des aérosols fins est la matière organique. Cette composante représente typiquement 10 à 30 % de la masse particulaire totale au-dessus des surfaces continentales (Lurmann et al. 1997).

L'existence d'aérosols atmosphériques résulte d'un processus dynamique. Les particules après émission ou formation peuvent interagir entre elles par collision et coagulation; elles évoluent ainsi en dimension. Elles peuvent être éliminées par diffusion et impaction sur les surfaces, par sédimentation sous l'action de la gravité et par collection dans tous les processus qui accompagnent les précipitations atmosphériques (neige, grêle, pluie) soit lors de la formation des gouttelettes nuageuses, soit par lessivage lors de la précipitation elle-même. Ces processus d'élimination de particules déterminent leur temps de vie dans l'atmosphère qui peut s'échelonner sur quelques minutes pour les plus petites particules dans de l'air très polluées jusqu'à quelques jours dans la troposphère ou dans les régions éloignées et jusqu'à quelques années pour la stratosphère. Une bonne estimation sur l'océan à nos latitudes est d'environ une semaine (Madelaine, 1975).

La figure 1.1 montre les sources des émissions de sulfate, sa répartition sur les latitudes terrestres et leur composition selon leurs sources d'origines naturelles (volcan, forêts, l'océan dont le sel de mer et le DMS, les déserts, dont les particules de sol) et anthropiques (raffineries, les usines, la combustion et les zones agricoles). On remarque qu'il y a une présence dominante des sources anthropiques dans l'Hémisphère Nord, à la base de notre étude.

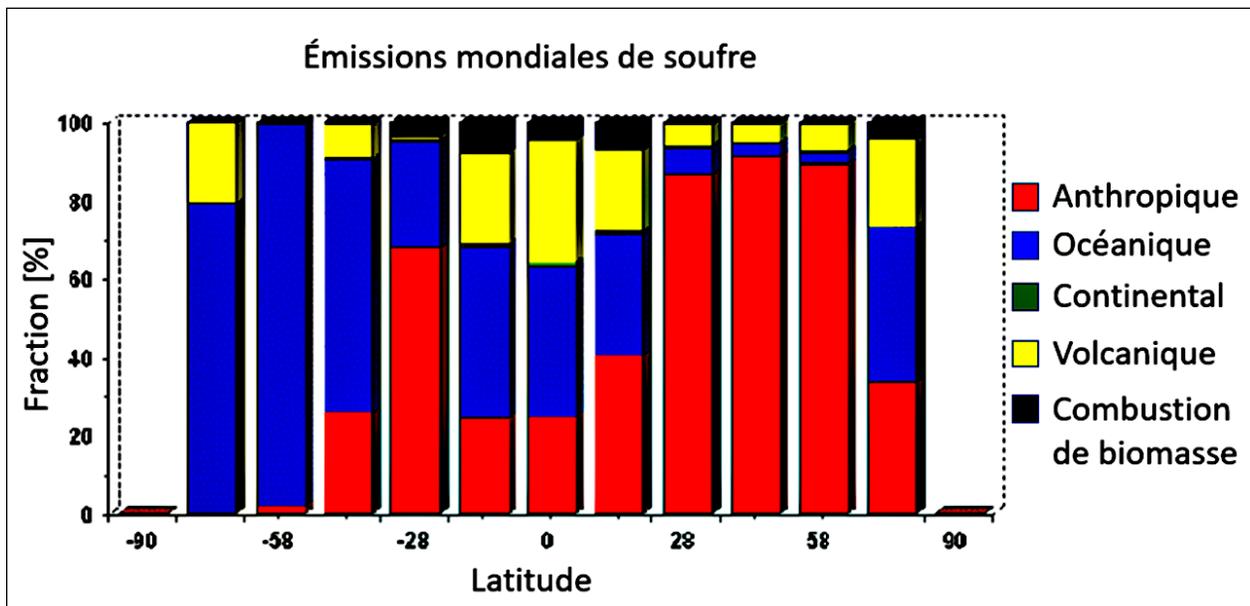


Figure 1-1 Répartition des sources des émissions de sulfate en fonction de la latitude et leurs compositions selon les sources d'origines naturelles (volcanique en jaune, feux de forêts en noir, maritime dont le sel de mer et le DMS en bleu, les déserts dont les particules de sol en vert) et anthropiques en rouge (raffineries, les usines, la combustion et les zones agricoles). (Bates et al., 1992).

1.2.1 Formation des aérosols

Les plus grosses particules aérosols sont formées par des processus mécaniques comme le broyage, l'impaction, la pulvérisation ou biogéniques telles l'émission des pollens et la génération des bactéries dans les nuages (Madelaine, 1975). Sur les continents, on retrouve les particules de sol produites par saltation et par l'activité industrielle ou par les véhicules tels les traces d'avions (Norman et coll. 2004). Sur l'océan, le sel de mer est une des principales sources de grosses particules produites mécaniquement (Ma et al., 2008). On retrouve aussi les émissions anthropiques par les moteurs à combustion des bateaux, sources de sulfate et de suie entre autres (Norman et coll. 2004). Les phénomènes naturels tels que l'entraînement des particules par le vent (tempêtes de sable) et de nombreuses activités industrielles sur les terres sont souvent entraînés par le vent vers l'océan, affectant la composition des aérosols marins en plus de la fragmentation des liquides telle que l'éclatement des bulles de l'écume à la surface de la mer et quelques émissions de bateaux qui produisent des fumées issues de la combustion et des panaches de gouttelettes. Ces gouttelettes peuvent s'évaporer laissant dans l'air de petites particules résiduelles de soluté non volatil. La condensation des particules lors de la combustion donne souvent un aérosol composé de très fines particules. En fonction des conditions d'émission, ces particules peuvent se coaguler et donner des agglomérats de fortes dimensions. On trouve aussi parmi les mécanismes de formation, les réactions chimiques sur la surface des particules favorisant la croissance de ces dernières. Parmi les plus importantes réactions, l'oxydation du SO_2 peut se produire à la surface de particules agissant comme catalyseur. On a aussi des réactions d'oxydation en phase aqueuse dans les gouttelettes (Von Salzen et coll., 2000).

La nucléation des gouttelettes et des cristaux de glace peut se former de façon hétérogène à partir de certaines particules aérosols ayant une affinité particulière pour la condensation, comme les sulfates, ou pour la déposition de la vapeur d'eau sur les surfaces d'aérosol permettant la nucléation. En l'absence d'aérosol, les nuages peuvent aussi se former à partir de la nucléation homogène, mais dans des conditions de température et d'humidité plus extrêmes. En effet, la nucléation homogène requiert des sursaturations très élevées en général bien au-dessus de 200 %. Si cette valeur n'est pas atteinte, aucune particule stable ne peut exister pendant une longue période. L'importance de la nucléation homogène dans l'atmosphère est encore très mal connue, mais elle joue probablement un rôle dans la formation des smogs près des sources de combustion.

L'évaporation de ces particules humides devient alors une source de nouvelles particules aérosols secondaires dans l'environnement. Il est important de garder en mémoire ces mécanismes d'interactions dans le développement de notre étude.

1.2.2 Élimination des aérosols

Comme pour la production de particules, on peut résumer les différents processus qui conduisent à l'élimination des aérosols dans l'atmosphère. La sédimentation est un processus important de réduction de la concentration des aérosols notamment pour les grosses particules, supérieures à quelques microns. La déposition sèche des aérosols sur les surfaces est également à considérer pour les plus grosses particules, ce processus se produit quand le flux d'air autour d'un obstacle ayant une courbure suffisante pour permettre aux particules d'impacter par inertie et d'y adhérer. La déposition humide se produit également quand les aérosols sont collectés par les gouttes de pluie. Les processus nuageux peuvent ou non éliminer les particules atmosphériques dépendant de la fréquence et de l'intensité des précipitations. La pluie et la neige éliminent alors des substances solides et gazeuses et elles agissent pour purifier l'air. La figure 1.2 illustre la distribution des aérosols selon leurs types et leurs origines et explique les processus cités ci-dessus en montrant les étapes de la formation des aérosols dès la nucléation du gaz, la coagulation et la croissance des noyaux de condensation. Elle montre aussi leurs sources et leurs tailles. La figure 1.3 montre une distribution schématique de la taille des aérosols atmosphériques et la durée de vie de chaque catégorie de taille.

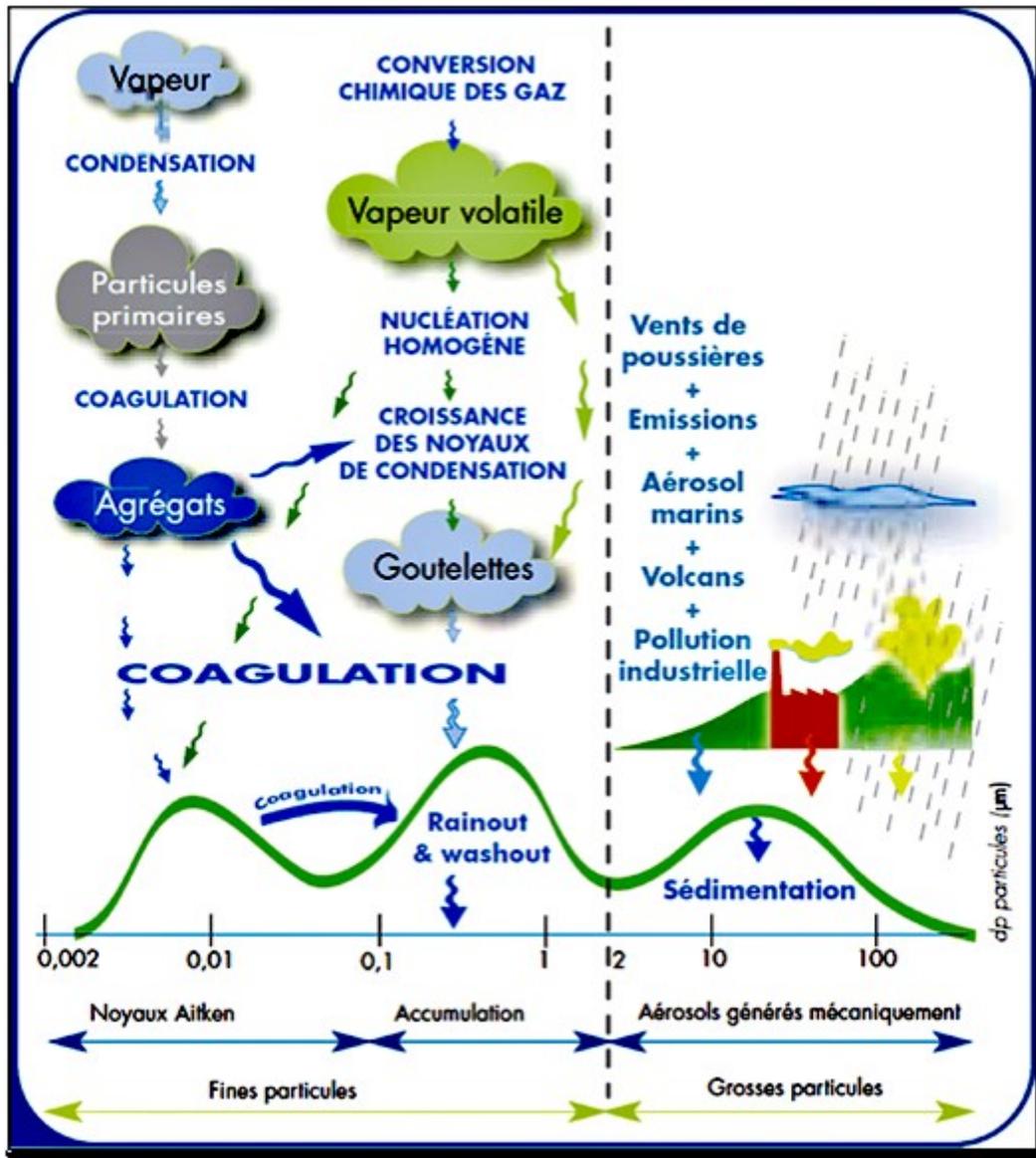


Figure 1-2 Processus de formation et d'évolution des aérosols dans l'atmosphère. (A. Renould et D. Boulaud, 1998)

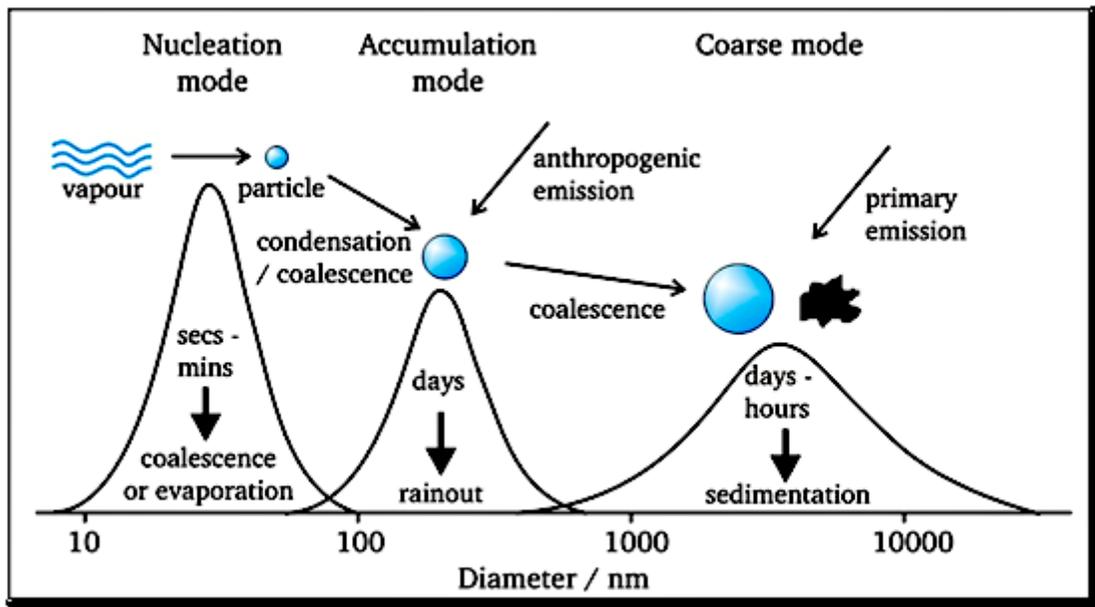


Figure 1-3 Une distribution schématique de la taille des aérosols atmosphériques et de leurs temps de résidence moyen dans l'air. (Réf. : <https://allaboutaerosol.wordpress.com/aerosol-in-the-atmosphere/>)

1.2.3 Diméthylsulfure (DMS)

Le phytoplancton est parmi les plus importantes sources naturelles de gaz précurseurs d'aérosols (Sharma et al., 1999). Il est aussi considéré parmi les agents clés dans le cycle du carbone. Cette substance est à l'origine du diméthylsulfure (DMS : $\text{CH}_3\text{-S-CH}_3$), un gaz important dans la formation de noyaux de condensation pour les nuages (CCN) (Charlson et coll., 1987).

Le phytoplancton produit du diméthylsulfoniopropionate (DMSP) qui produit à son tour le DMS. Quand le phytoplancton meurt, le DMSP est relâché dans l'eau où une partie est convertie en DMS (Nightingale et al., 2000). Sa concentration dépend du rayonnement solaire, de la température et de l'ensemble des processus de surface de l'océan. La plupart de ce DMS subit la photo-oxydation (Kieber et coll., 1996) et seulement environ 10 % passe dans l'atmosphère (Kiene et Bates, 1990). Le flux de DMS vers l'atmosphère dépend de sa concentration dans la couche océanique de surface et de la vitesse de transfert mer-air, celle-là qui dépend de la température et de la vitesse du vent en surface (Nightingale et al., 2000).

Le DMS atmosphérique peut s'oxyder par d'autres composants atmosphériques pour produire trois types principaux de composés sulfatés : le dioxyde de soufre (SO_2), le sulfate (SO_4^{2-}) et l'acide

méthanesulfonique (MSA ou $\text{CH}_3\text{-S O}_3\text{H}$) (Charlson et coll., 1987). La concentration de DMS augmente en été avec des valeurs maximales aux hautes latitudes (Andreae, 1986; Bates et al., 1987) favorisées par l'insolation. L'existence de petits noyaux de condensation (CCN) des nuages stratiformes marins est due en partie au DMS émis de l'océan (Fitzgerald, 1991).

Les mécanismes d'oxydation du DMS ne sont pas encore bien connus. Les modèles n'incluent pas tous les chemins potentiels d'oxydation du DMS. Cela pourrait poser un problème quant à l'évaluation quantitative et qualitative des effets du DMS dans la couche limite atmosphérique (Boucher et coll., 2003). Dans le prochain chapitre, on décrira les processus d'oxydation et de transformation de ces substances (DMS, SO_2 , MSA et sulfate) utilisées par notre modèle NARCM.

1.3 Impacts des aérosols sur le climat

La présence des aérosols dans l'atmosphère exerce une influence directe sur le climat d'une part par sa contribution sur la diffusion et l'absorption du rayonnement, et d'autre part indirectement en modifiant la distribution des tailles des gouttelettes des nuages et affectant la précipitation. Une augmentation du nombre de gouttelettes dans le nuage a pour effet de modifier l'albédo, réduire les précipitations et augmenter la durée de vie des nuages. Ceci implique un changement dans le budget d'énergie de l'atmosphère qui, en définitive, influe sur le climat (Lohmann, 2006). Ces forçages direct et indirect des aérosols sur le climat ont un signe opposé et une magnitude comparable à celui de l'effet de serre anthropique (Charlson et coll., 1987).

La campagne SABINA soulève des questions clés sur les aérosols biogéniques produits en milieu océanique. Parmi celles qui nous intéressent particulièrement dans cette étude sont les suivantes. Dans quelles mesures la production de DMS est-elle responsable des concentrations de particules de sulfate observées? Comment ces émissions affectent-elles la distribution de tailles des particules? Quelle est l'influence des émissions continentales, principalement d'origine anthropique? Comment contribuent-elles à la concentration nette observée sur l'océan Atlantique? Peut-on expliquer les variations de la concentration observée en fonction de la distance au continent et aux régions sources? À partir des concentrations de soufre observées sur le navire durant SABINA, pourrait-on utiliser un modèle atmosphérique pour étudier les transports et la structure verticale des concentrations? Bien d'autres questions secondaires seront examinées dans notre étude.

Comme objectif principal, nous posons l'hypothèse suivante : « *Les concentrations de sulfate observées durant la campagne SABINA sont fortement influencées par les émissions anthropiques provenant de l'Amérique du Nord.* » Dans cette étude, nous allons tenter de quantifier et d'expliquer la répartition des contributions biogéniques et anthropiques des particules de sulfate à l'aide d'un modèle détaillé de la microphysique des aérosols dans un système dynamiquement couplé à l'atmosphère.

CHAPITRE 2

MÉTHODOLOGIE

Ce chapitre présente la méthodologie utilisée pour l'évaluation des propriétés des aérosols étudiées à savoir le diméthylsulfure (DMS), le SO₂ et le sulfate. Les résultats à évaluer seront obtenus au moyen des observations prises dans une trajectoire parcourue durant la campagne de mesure (SABINA) sur la région de l'Atlantique de Nord. Les observations des trois types d'espèces seront collectées par échantillonnage en se servant de différents types d'instruments comme le chromatographe à gaz pour le DMS et les échantillonneurs d'air à haut volume pour le SO₂ et le sulfate. La collecte échantillonnée se base sur les données des variables météorologiques mesurées, dont la température de l'air, la vitesse du vent, la pression atmosphérique. Pour prédire les quantités de matière émises de ces trois composés sulfatés, le modèle de simulation NARCM sera adopté. Le modèle prévoit également la température, les vents et la pression atmosphérique qui serviront de vérification par rapport aux observations prises sur le bateau.

2.1 Description de la campagne SABINA

Le réseau canadien SOLAS fait partie d'une initiative internationale visant à comprendre les interactions entre les océans et l'atmosphère, ainsi que les conséquences de ces interactions sur le changement climatique global. Le principal objectif de la mission de la campagne (SABINA) SOLAS-Canada de l'été 2003 a été de déterminer les flux des gaz à l'état de traces dans les principales provinces biogéochimiques de l'Atlantique du Nord-ouest en effectuant des observations météorologiques et en recueillant des données sur DMS, le SO₂ et le sulfate à huit stations durant la période allant du 8 au 24 juillet 2003. Les mesures ont été prises le long du parcours de la campagne au niveau de la surface de la mer. Cette campagne de mesures vise entre autres à développer et à évaluer la performance des modèles atmosphériques dans le cycle du soufre en milieu océanique comme le modèle NARCM utilisé dans notre étude.

Le parcours de SABINA passant par ces 8 stations est réparti sur différentes provinces biogéochimiques. Ces dernières sont définies selon leur température de surface de la mer (SST) et la répartition de la concentration de la chlorophylle-a. On considère la classification dynamique des provinces biogéochimiques telle que décrite par Sathyendranath (1989, 1995) et Jackson et coll. (2017). Cette classification biogéochimique de l'Atlantique Nord divise tout d'abord le bassin en quatre domaines algaux primaires : polaire, vent d'ouest, alizés et côtier. Celles-ci sont à leur tour subdivisées en provinces plus petites. La classification est basée sur les différences de milieu physique susceptibles d'influencer la dynamique algale régionale (Sathyendranath et al. 1995). Cette définition a été améliorée pour prendre en compte, la température de la surface de la mer (SST) et la chlorophylle-a (Chl-a) mesuré par satellite avec l'instrument MODIS.

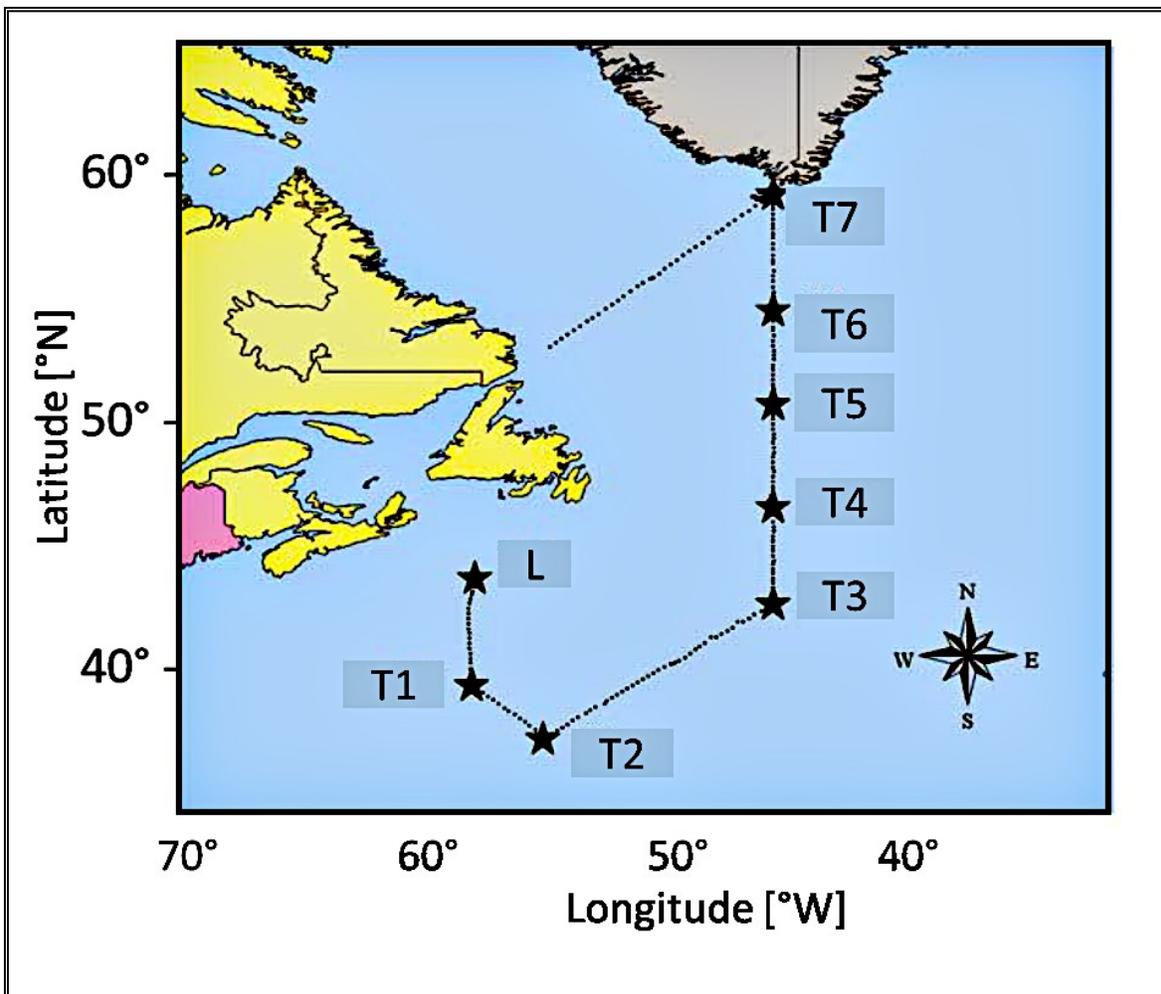


Figure 2-1 : Trajet du parcours de la campagne SABINA dans le bassin Nord-Atlantique représenté par la ligne pointillée. Le trajet inclut aussi les huit stations de séjours d'analyses étendues du bateau (les points étoiles) nommées L, T1, T2, T3, T4, T5, T6 et T7.

La figure 2.1 illustre le trajet du parcours de la campagne SABINA dans le bassin Nord-Atlantique. Ce trajet inclut les huit stations de passage du bateau qui sont indiquées par des points carrés et nommées L, T1, T2, T3, T4, T5, T6 et T7, alors que le tableau 2.1 résume les caractéristiques de ces huit stations. Pour chaque station on cite la date de passage, la position (latitude et longitude) et la région biogéochimique telle que définie par Sathyendranath (1995). Le bateau a commencé son parcours par la station L le 8 juillet pour arriver à la station T7 le 22 juillet.

Tableau 2.1 Les informations de chaque station de la campagne (date, position et province biogéochimique).

Station	Date	Région biogéochimique	Lat. N	Long. W
L	08-juil-03	Station du mouillage	43,42	57,70
T1	10-juil-03	Gulf Stream	39,00	57,50
T2	11-juil-03	Mer des Sargasses	36,83	54,40
T3	14-juil-03	Dérive Nord Atlantique	42,33	45,00
T4	16-juil-03	Subarctique #1	46,50	45,00
T5	18-juil-03	Subarctique #2	50,67	45,00
T6	20-juil-03	Subarctique #3	54,83	45,00
T7	22-juil-03	Courant du Groenland	59,25	45,00

2.2 Mesures des données de SABINA

Dans cette section nous décrivons les données mesurées le long de la trajectoire de la campagne, dont les variables météorologiques (la pression, le vent et la température de l'air), le DMS océanique et sa composante atmosphérique, ainsi que les concentrations de SO₂ et de sulfate, incluant un survol des instruments utilisés, leurs précisions et leurs limites.

2.3 Les variables météorologiques

Pour prendre les mesures des variables atmosphériques, une station météorologique automatisée a été installée sur le bateau à 23 mètres au-dessus du niveau de la mer pour surveiller en permanence et pendant le déplacement du bateau la température de l'air, la vitesse et la direction du vent, la pression ainsi que le point de rosé T_d.

2.4 Instruments des mesures

Les instruments de mesure qui ont été utilisés pendant la campagne de mesure océanique SABINA sont des échantillonneurs d'air et d'eau de mer. Il y a différentes catégories des échantillonneurs désignés pour les différentes espèces à mesurer. Pour le DMS il y en a deux : l'un pour le DMS océanique et l'autre pour le DMS atmosphérique. Quant au SO₂, on a utilisé un échantillonneur d'air à haut volume PM10 « High volume sampler » qui est un appareil de mesure de référence fédérale (FRM) désigné pour collecter les particules dans l'air ambiant d'un diamètre aérodynamique de 10 µm et moins. Cet échantillonneur est constitué de composantes de très haute qualité. Il peut être utilisé pour les toutes installations d'échantillonnage en milieu ambiant. Il sélectionne les particules de concentrations ayant un diamètre de plus de 10 µm pour se



Figure 2-2 Échantillonneur d'air à haut volume PM10 (<https://tisch-env.com/>)

déposer sur le filtre. En général ce type d'échantillonneurs fonctionne avec un débit allant de 36 à 60 pi³/min pendant une période de 24 heures. Les échantillonneurs d'air à haut volume PM10 de Tisch Environmental sont des échantillonneurs de méthode de référence fédérale sous le numéro de désignation 0202-141. La figure 2.2 montre un échantillonneur d'air à haut volume PM10 utilisé par SABINA.

2.4.1 DMS océanique

Les échantillons destinés à l'analyse du DMS océanique ont été prélevés à environ 1 m de profondeur à l'aide de bouteilles d'échantillonnage Niskin de 12 litres fixés à une rosette et immergées à une profondeur de 5 m à partir du système de pompage de l'eau non contaminée du navire. Pour valider la mesure, ces prélèvements d'échantillons de DMS dans l'eau de mer ont été comparés à plusieurs reprises sur le navire et leur précision a été évaluée à ± 15% de marge d'erreur en termes de la concentration (Sharma et coll., 1999).

2.4.2 DMS atmosphérique

Le DMS atmosphérique a été recueilli à l'aide d'un échantillonneur de DMS fabriqué sur mesure à un débit calibré (environ 200 mL.min⁻¹) pendant 5 minutes à travers un filtre Whatman QA de 47 mm dans des tubes Tenax-TA. Ces tubes d'échantillon ont été placés dans un injecteur sans fractionnement du chromatographe en phase gazeuse et désorbés thermiquement à 170°C. Les expériences de contrôles réalisées préalablement dans le laboratoire ont montré que 98% du DMS était récupéré à une température de 20°C (Seguin et al., 2010; Rempillo, 2011).

Les échantillons de DMS ont été analysés dans les 24 heures suivant leur collecte pour éviter toute détérioration, à l'aide d'un chromatographe en phase gazeuse (CG) Hewlett Packard 5890 équipé d'un détecteur de chimioluminescence de soufre (DSC) de type Sievers modèle 355. L'instrument a été étalonné et calibré lors du démarrage initial selon des méthodes décrites par (Sharma et al., 1999; Rempillo, 2011).

L'exactitude et la précision de la mesure du DMS étaient de $\pm 10\%$. La sensibilité de la mesure était directement en fonction de la sensibilité de l'instrument, qui variait sur une échelle allant de 0,005 ppb à 0,05 ppb sur la base d'étalonnages (Sharma et al., 1999; Rempillo, 2011).

2.4.3 Dioxyde de soufre (SO₂)

Le SO₂ a été collecté à l'aide d'échantillonneur de type « High volume sampler » fabriqué par Sierra Miscu, opérant à un débit de 40 pscm (pieds cubes standard par minute ~ 1 mètre cube/minute) en utilisant des filtres en fibre de quartz EPM 2000. L'échantillonnage du SO₂ a été effectué uniquement durant les conditions favorables de vent pour minimiser la contamination par les émissions de la cheminée de la fumée du navire. L'appareil « High volume sampler » a été désactivé durant les périodes de pluie pour éviter le lessivage des aérosols collectés sur les filtres.

Les périodes d'échantillonnage du SO₂ ont été maintenues à environ 8 heures pour s'assurer qu'une quantité suffisante de matériel soit disponible pour l'analyse. Puis les échantillons de SO₂ ont été placés dans des sacs « Ziploc » (SC Johnson) propres et stockés dans un congélateur à bord du navire. Après expédition, ils ont été entreposés dans un réfrigérateur à -4°C avant d'être analysés.

2.4.4 Le sulfate

Le sulfate a été collecté par deux appareils, un « High Volume Samplers » Anderson PM10 pour les particules inférieures à 10 μm qui est équipé de six impacteurs en cascade (Sharma et al., 1999; Rempillo, 2011) et un « High Volume Samplers » Sierra Miscu PM100 pour toutes les particules plus petites que 100 μm . Ce dernier est le même qui a été utilisé pour collecter les échantillons de SO_2 . Pour chaque modèle on a utilisé deux appareils, un qui servait à échantillonner le jour et l'autre la nuit ce qui a donné des échantillons de jour et de nuit pour tenir compte des effets du cycle diurne (Séguin et coll., 2010).

Le « High Volume Samplers » Sierra Miscu PM100 avait un seul filtre pour collecter tous les aérosols dont le diamètre est inférieur à 100 μm alors que le « High Volume Samplers » Anderson PM10 avait six impacteurs avec six filtres pour collecter en cascade des aérosols dont le diamètre est inférieur à 10 μm , correspondant à six intervalles de tailles comme le montre le tableau 2.2 qui définit ces intervalles selon leurs tailles (diamètres (D)). Le premier intervalle contient les plus petites particules, D inférieure à 0.49 μm . Le deuxième contient les tailles dont D est entre 0.49 μm et 0.95 μm , le troisième, pour les tailles du D entre 0.95 μm et 1.5 μm , le quatrième celles entre 1.5 μm et 3.00 μm de diamètre, le cinquième contient les tailles de D entre 3.00 μm et 7.2 μm et enfin, le sixième intervalle accumule les tailles avec un D entre 7.2 μm et 10 μm (Sharma, 1999; Norman et coll., 2004; Rempillo et coll., 2011).

L'échantillonnage du sulfate a été effectué selon une procédure similaire au SO_2 , soit uniquement dans des conditions avantageuses du vent pour minimiser la contamination du navire. Comme mentionné précédemment, les appareils « High volume samplers » ont été désactivés durant la pluie pour éviter le lessivage des aérosols sur ces filtres (Norman et coll., 2004). Les périodes d'échantillonnage des aérosols ont été maintenues à environ 8 heures pour s'assurer qu'une quantité suffisante et comparable de matériel soit disponible pour l'analyse. Puis ces échantillons ont été placés dans des sacs « Ziploc » propres et stockés dans un congélateur à bord du navire. Après expédition, ils ont été maintenus à -4°C avant d'être analysés (Sharma et coll., 1999; Norman et coll. 2004; Rempillo et coll., 2011).

Tableau 2.2 Diamètre des particules de sulfate détectées par l'instrument PM10 pendant la campagne SABINA.

Taille Numéro	Intervalle des diamètres des particules de sulfates (μm)
1	< 0.49
2	0.49-0.95
3	0.95-1.5
4	1.5-3.00
5	3.00-7.2
6	7.2-10

2.4.5 Limite instrumentale :

La mesure d'aérosols à l'aide d'échantillonneurs « High Volume Samplers » a des limites techniques à considérer. Il existe un risque de migration des particules dans la cascade de filtres vers les filtres situés en dessous. Cela peut se produire en cas de désalignement des filtres supérieurs, de la déchirure d'un filtre ou d'un lavage accidentel. Les deux premiers cas sont peu probables tandis que les événements de lessivage ont été notés par les opérateurs de mesures et enregistrés dans le journal de bord. Le lavage est un problème lorsqu'il y a des précipitations, il se produit lorsque l'échantillon provenant des filtres supérieurs migre à travers le filtre et contamine le filtre situé en dessous. L'un ou l'autre de ces phénomènes entraînerait une sous-estimation des concentrations dans les fractions de taille grossière et une surestimation des fractions de taille plus petite. Ces phénomènes peuvent également se produire sur les filtres du « High Volume Samplers » Sierra Miscu PM100 et qui causerait une migration des aérosols vers le filtre de SO_2 et en résulterait de faibles concentrations de particules totales par rapport à la somme des échantillons d'aérosols fractionnés et une augmentation des concentrations de SO_2 mesurées.

Les débits des échantillonneurs à haut volume doivent également rester constants. Cependant, il a été noté au jour 201 (20 juillet 2003) l'échantillonneur à haut volume de particules totales avait un

débit de 0,65 m³/min au lieu du débit calibré de 1,4 m³/min après une forte averse pendant la journée. Les valeurs dans cette étude sont rapportées telles que mesurées, mais les concentrations qui peuvent être affectées par les conditions expérimentales telles que celles décrites ci-dessus ont été soigneusement examinées et corrigées (Séguin, 2007).

2.5 Simulation des concentrations des aérosols sulfatés

2.5.1 Présentation du modèle

Cette partie est basée sur la description des auteurs du modèle original tel que décrit par Gong et al. (2003); Munoz-Alpizar et al. (2003) ; Zaganescu, (2007). Pour analyser les données recueillies durant la campagne SABINA, on a réalisé des simulations au moyen du modèle numérique introduit précédemment. La comparaison des données observées avec d'autres données simulées nous aidera à analyser, à interpréter les observations et à mieux comprendre les processus de transport, de transformation, de dépôt et dissipation des aérosols. Toutes les simulations dans la présente étude ont été effectuées par l'auteur en utilisant le modèle régional NARCM – Northern Aerosol Regional Climate Model.

Un modèle régional, à aire limitée, offre des résolutions spatiales et temporelles plus élevées qu'un modèle global, permettant l'étude plus détaillée des processus physiques associés aux phénomènes locaux à la fine échelle spatiale. NARCM a été développé comme outil d'évaluation de l'influence des aérosols sur l'atmosphère aux moyennes et hautes latitudes de l'Hémisphère Nord. Plusieurs études ont démontré le potentiel de NARCM pour simuler l'évolution des aérosols à l'échelle régionale (Spacek et coll. 1999; Salzen et coll. 2000; Munoz-Alpizar et al. 2003).

Le modèle NARCM est composé d'une version antérieure au Modèle Régional du Climat courant, le MRCC, mais plus adaptée à l'inclusion des multiples traceurs (60) composants les distributions de tailles et d'espèces de particules aérosols. Il est basé sur le MC2 (Mesoscale Compressible Community), une version du noyau dynamique utilisé par (Spacek et al. 1999; Salzen et coll. 2000; Munoz-Alpizar et al. 2003) et du Module Canadien d'Aérosols CAM (Canadian Aerosol Module) développé aussi pour le modèle global canadien CGCM3 (Gong et al., 2003).

Le MRC, basé sur MC2, traite la dynamique, la physique de l’atmosphère et le transport des aérosols et le module CAM traite les sources des aérosols, leurs émissions et les processus de transformations chimiques et physiques. La figure 2.3 illustre le schéma général du modèle et ses deux composantes majeures : le Modèle Régional du Climat et le Module Canadien d’Aérosols. Chaque module sera discuté plus en détail dans les sections suivantes.

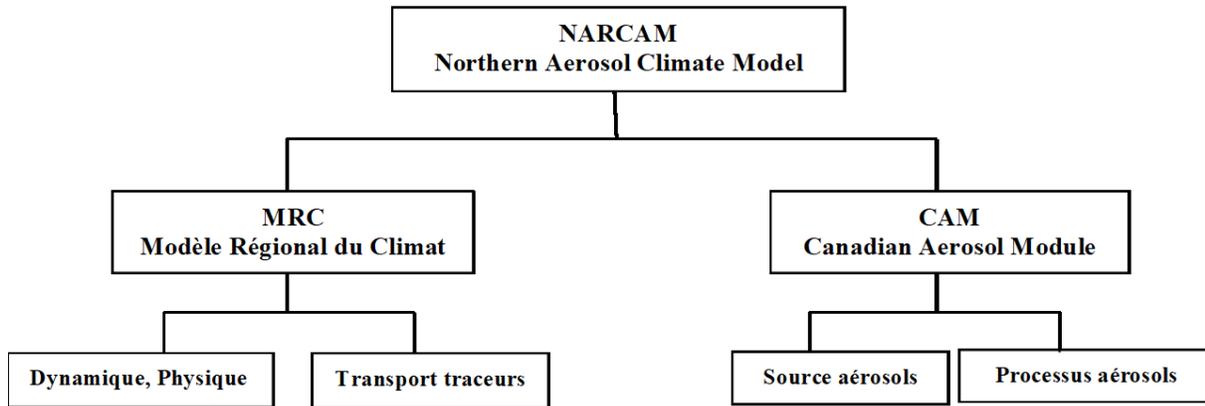


Figure 2-3 Schéma de structure générale du modèle NARCAM.

2.5.1.1 Le modèle atmosphérique MRC

La partie atmosphérique de NARCAM comprend la dynamique et la physique de la version MC2 du premier CRCM – Canadian Regional Climate Model tel que développé par Laprise et Caya (Laprise et al., 1997; Caya et Laprise, 1999). Il est basé sur les équations eulériennes complètement élastiques, non-hydrostatiques, résolues par un schéma semi-implicite semi-lagrangien assurant une bonne flexibilité aux changements d’échelle et une faible dispersion numérique. L’interpolation semi-lagrangienne (Caya et al. 1995) permet la représentation appropriée du transport et de l’advection des composants atmosphériques, y compris des aérosols.

La discrétisation horizontale est faite sur une grille polaire stéréographique du type Arakawa C et la coordonnée verticale utilise une échelle de hauteur Gal-Chen suivant la topographie. Sur les bords de la grille de calcul on peut définir une zone éponge pour la transition entre les données de pilotage venant de la grande échelle et la zone libre à l’intérieur du modèle. Le pilotage, par les conditions initiales et aux frontières, est effectué avec les données mondiales des réanalyses (NCEP), (McFarlane, 1992).

Les paramétrages physiques sont analogues au CGCM - Canadian General Circulation Model (McFarlane et al. 1992). Ce sont les paramétrages traitant la radiation terrestre et solaire, les nuages convectifs, les processus de surface, la diffusion turbulente, les ondes de gravité, ainsi que le module CLASS (Canadian Land Surface Scheme) qui simule les flux d'énergie, de quantité de mouvement et des échanges d'eau entre l'atmosphère et la surface terrestre (Verseghy, 1991; Verseghy et al. 1993). Les flux turbulents verticaux (mouvement, humidité, chaleur, aérosols) sont calculés à l'aide de la théorie de similarité de Monin-Obukov en surface. Un schéma pour la microphysique des nuages stratiformes (Lohmann and Roeckner, 1996) est utilisé pour résoudre des équations pronostiques séparées pour l'eau et la glace dans les nuages. Un autre module représente les nuages cumulus en incluant les effets de l'entraînement et du mélange issu des flux convectifs de masse (Zhang et McFarlane, 1995).

2.5.1.2 Le module CAM

La partie chimique assurée par CAM (Gong et al., 2003), traite les aérosols de façon prédictive explicite en représentation de catégories de tailles (dit de « bins ») à l'aide du module CAM. Le modèle prend en considération les caractéristiques intrinsèques des aérosols, leurs transformations et leurs interactions avec les autres composants de l'atmosphère. La version utilisée du CAM inclut cinq espèces d'aérosols, soient: le sel de mer, le sulfate, la suie, les poussières de sol et le carbone organique. Chaque espèce est répartie sur douze catégories de taille (voir Tableau 2.3) pour constituer 60 champs tridimensionnels pronostiques à évaluer dynamiquement à chaque pas de temps du modèle. Tous les processus physiques et chimiques sont définis en fonction du diamètre des particules, y compris la nucléation, la condensation, la coagulation, l'accrétion, les interactions aérosol-nuage, les dépositions sèche et humide.

Tableau 2.3 Les 12 catégories de chaque type parmi les 5 espèces d'aérosols dans le module CAM. Ces tailles sont entre 0.01 et 40.96 μm .

Groupe	I	II	III	VI	V	VI	VII	VIII	IX	X	XI	XII
Diamètre (μm)	0.01 0.02	0.02 0.04	0.04 0.08	0.08 0.16	0.16 0.32	0.32 0.64	0.64 1.28	1.28 2.56	2.56 5.12	5.12 10.24	10.24 20.48	20.48 40.96

Le taux de variation de la concentration totale X d'un aérosol sec d'espèce e et de dimension i est calculée par une somme de tendances de tous les termes sources et puits, selon:

$$\frac{\partial X_{ei}}{\partial t} = \frac{\partial X_{ei}}{\partial t} \Big|_{trans} + \frac{\partial X_{ei}}{\partial t} \Big|_{surf} + \frac{\partial X_{ei}}{\partial t} \Big|_{air} + \frac{\partial X_{ei}}{\partial t} \Big|_{nuag} + \frac{\partial X_{ei}}{\partial t} \Big|_{deps} + \frac{\partial X_{ei}}{\partial t} \Big|_{deph} \quad (\text{II.1})$$

où les sources sont symbolisées par les indices *trans* – transportés, *surf* – sources de surface, *air* – produits en ciel clair, *nuag* - produits dans les nuages, et les puits par les indices *deps* – déposition sèche, *deph* – déposition humide.

Pour les fins de notre étude, nous décrivons seulement le traitement des aérosols sulfatés. Ces aérosols sulfatés à l'entrée du modèle proviennent de deux sources distinctes : primaires, émis directement dans l'atmosphère par les activités anthropiques, et secondaires, provenant de la transformation des gaz précurseurs. L'origine anthropique des SO_2 et $[\text{SO}_4]^{2-}$ utilisé dans NARCM provient de l'inventaire GEIA-1B qui reflète les émissions moyennes saisonnières pour 1985, en surface et à 100 m d'altitude (Benkovitz et al., 1996).

2.5.2 Calcul du flux de DMS

Au moment de ces expériences, il n'existe pas une paramétrisation généralement acceptée pour évaluer le flux de DMS à partir de la concentration du DMS dans l'eau océanique. On trouve des différences de deux ordres de grandeurs entre les flux calculés par différentes méthodes (Kettle et Andreae, 2000).

Dans notre étude, le flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère est calculé dans NARCM en utilisant la méthode empirique proposée par Wanninkhof (1992) :

$$Kw = (0.31 \times ws^2) \times \left(\frac{660}{Sc} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{II.2})$$

où

$$S_c = 2674 - (147.12 \times t) + (3.726 \times t^2) - (0.038 \times t^3) \quad (\text{II.3})$$

S_c est le nombre de Schmidt pour le DMS conformément à Saltzman et al. [1993], w_s est la vitesse du vent en [m/s], t est la température de surface de l’océan en degrés Celsius et K_w est le coefficient de ventilation en [cm/h].

Alors, le flux de DMS est

$$\Phi_{DMS} = K_w \times C_{DMSg} \quad (\text{II.4})$$

où C_{DMSg} est la concentration de DMS dans l’eau de surface.

2.5.2.1 Dimensions des particules

La dimension réelle d’une particule d’aérosol est définie pour les particules d’aérosols en équilibre avec l’humidité relative de l’environnement. La dimension effective utilisée dans le modèle est le résultat de la croissance hygroscopique des particules solubles, calculée à partir de la distribution de taille des particules sèches et de l’humidité relative simulées. Au fur et à mesure que les dimensions d’une particule augmentent, sa densité change. La condition d’équilibre pour une particule d’aérosol dissous, en air humide, est donnée par l’équation de Köhler:

$$RH = a_w \exp\left(\frac{2\sigma}{\rho_w R_w T r_d f_r}\right) \quad (\text{II.5})$$

où RH est l’humidité relative par rapport à l’eau, a_w est l’activité de l’eau (facteur reliant propriétés osmotiques empiriques de la solution, quantité de soluté et d’eau, et le nombre d’ions dissous dans la solution), σ est la tension superficielle à l’interface gouttelette-air, ρ_w est la densité de l’eau, R_w est la constante des gaz pour la vapeur d’eau, T est la température, r_d est le rayon de la particule d’aérosol sec, r est le rayon final de la particule d’aérosol humide, f_r est le rapport r/r_d .

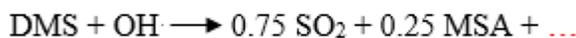
La particule d’aérosol sec est présumée sphérique, et le volume de la particule d’aérosol humide est égal à la somme des volumes de la particule sèche et de l’eau contenue (Saltzman et al., 1993).

2.5.2.2 Processus des aérosols sulfatiques en ciel clair

Nous présenterons dans cette section les processus chimiques en ciel clair produisant du sulfate à partir des précurseurs et les processus physiques de nucléation, condensation et coagulation impliquant ce sulfate.

2.5.2.2.1 Processus chimiques (S. L. Gong, 2003)

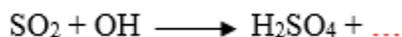
Durant la journée, en présence du rayonnement solaire, les réactions chimiques suivantes entre les précurseurs DMS et H₂S d'un côté et le radical hydroxyle (OH) de l'autre, produisent du dioxyde de soufre (SO₂) en phase gazeuse :



Durant la nuit, en absence de la radiation solaire, le DMS est oxydé par le radical nitrate ([NO₃][·]) :



CAM utilise des formules empiriques pour calculer les coefficients de taux de production et d'oxydation. Tout le DMS est oxydé. Le seul puits de DMS est l'oxydation par OH ou par [NO₃][·] menant au SO₂ en phase gazeuse. Le SO₂ ainsi produit subira l'oxydation par OH pour former de l'acide sulfurique (H₂SO₄) en phase gazeuse :



Ce H₂SO₄ est condensé rapidement, dissocié et soumis à deux processus compétitifs pour former des CCN. Aux faibles concentrations, [SO₄]⁻² forme directement des CCN, par nucléation. Aux

concentrations plus élevées, la coagulation produit des particules de taille intermédiaire qui serviront de CCN pour la formation de nuages. Dans la distribution des tailles, les CCN sont parmi les particules les plus grandes tel que montré dans la figure 1.3 (Michaud, 2009).

La formation de gouttelettes dépend de la concentration, la composition des aérosols et de la supra-saturation à chaque point de grille.

2.5.2.2.2 Processus physiques

Nucléation et condensation

Dès que le H_2SO_4 en phase gazeuse est produit par les réactions chimiques, il subit deux processus compétitifs : la nucléation et la condensation en fonction de la taille des particules, de la température et de l'humidité relative de l'air ambiant. Le taux de diminution de la concentration (kg/kg) du H_2SO_4 gazeux due à la nucléation est :

$$\frac{\partial X_{H_2SO_4}}{\partial t} = -C_1 (X_{H_2SO_4})^{C_2} \quad (II.6)$$

où C_1 et C_2 sont des constantes calculées dans la paramétrisation de la nucléation de Kulmala [Gong et al., 2003]. La masse de sulfate produite par nucléation est placée dans la catégorie de taille la plus petite durant une simulation. Le taux de diminution de la concentration du H_2SO_4 gazeux due à la condensation sur une particule déjà existante est :

$$\frac{\partial X_{H_2SO_4}}{\partial t} = -C_3 X_{H_2SO_4} \quad (II.7)$$

où C_3 est une constante calculée par l'équation Fuchs-Sutugin modifiée [idem]. La condensation ne change pas le nombre de particules déjà existantes, mais augmente la masse individuelle de chaque particule, ce qui produit l'augmentation de la taille. Chaque particule passe éventuellement dans une catégorie de taille supérieure. L'équation de la balance de masse pour H_2SO_4 est finalement:

$$\frac{\partial X_{H_2SO_4}}{\partial t} = P_{H_2SO_4} - C_3 X_{H_2SO_4} - C_1 (X_{H_2SO_4})^{C_2} \quad (II.8)$$

où $P_{H_2SO_4}$ est le taux de production du H_2SO_4 en phase gazeuse. Cette équation n'a pas de solution analytique et peut être résolue par de très longues itérations à chaque point de grille. Ceci mènerait au gaspillage de ressources informatiques. En pratique, l'approximation suivante de l'équation (II.8) est utilisée:

$$\frac{\partial X_{H_2SO_4}}{\partial t} = P_{H_2SO_4} - C_3 X_{H_2SO_4} - C_1 (X_{H_2SO_4}) (X_{H_2SO_4}^0)^{C_2-1} \quad (II.9)$$

où $X_{H_2SO_4}^0$ est la concentration initiale de H_2SO_4 . La solution de l'équation (II.9) est :

$$X_{H_2SO_4}(t) = \frac{e^{-\Omega t} [(e^{\Omega t} - 1) P_{H_2SO_4} + \Omega X_{H_2SO_4}^0]}{\Omega} \quad (II.10)$$

où

$$\Omega = C_3 + C_1 (X_{H_2SO_4}^0)^{C_2-1} \quad (II.11)$$

Cette approche permet une diminution considérable du temps de calcul. La précision est considérée acceptable pour estimer le bilan en tenant compte que les incertitudes dans les mesures expérimentales de la nucléation s'étalant sur quelques ordres de grandeur.

Coagulation

CAM considère seulement les collisions entre deux particules à la fois. L'équation générale pour la coagulation est:

$$\frac{dN_k}{dt} = \frac{1}{2} \sum_{j=1}^{k-1} K_{j,k-j} N_j N_{k-j} - N_k \sum_{j=1}^{\infty} K_{k,j} N_j \quad (II.12)$$

où $K_{k,j}$ est le coefficient de coagulation entre des particules de dimension k et j (englobant la contribution des mouvements brownien et turbulent, ainsi que la déposition gravitationnelle) et N_k est la concentration de nombre dans la catégorie de taille k .

L'équation n'a pas de solution analytique et CAM utilise une solution semi-implicite. Cette solution conserve le volume total à chaque pas de temps (Gong et al., 2003).

Déposition sèche et sédimentation

La vitesse de déposition sèche dépend de la taille et de la densité des particules d'aérosols, ainsi que des propriétés de la surface et des conditions météorologiques. La version actuelle de CAM

tient compte de la contribution des processus suivants à la déposition sèche: le mouvement brownien, l'impact, l'interception, la déposition gravitationnelle, le rebondissement des particules et la croissance des particules due aux taux d'humidité élevé.

La vitesse de déposition sèche est donnée par la formule de Slinn:

$$V_d = V_g + \frac{1}{R_a + R_s} \quad (\text{II.13})$$

où V_g est la vitesse de déposition gravitationnelle, R_a est la résistance aérodynamique au-dessus de la canopée et R_s est la résistance de la surface. On évalue V_g selon

$$V_g = \frac{\rho d_p^2 g C}{18\eta} \quad (\text{II.14})$$

où ρ est la densité de la particule, d_p est le diamètre de la particule, g est l'accélération gravitationnelle, C est un facteur de correction pour les particules fines (dépendant du diamètre de la particule et de la température, la pression et la viscosité cinématique de l'air) et η est le coefficient de viscosité de l'air. La résistance aérodynamique est calculée selon

$$R_a = \frac{\ln\left(\frac{z_R}{z_0}\right) - \Psi_H}{k u^*} \quad (\text{II.15})$$

où z_R est la hauteur où la vitesse V_d est évaluée, z_0 est la longueur de rugosité, Ψ_H est la fonction de stabilité, k est la constante de von Karman et u^* est la vitesse de friction. Et enfin la résistance de la surface est

$$R_s = \frac{1}{\varepsilon_0 u^* (E_B + E_{IM} + E_{IN}) R_1} \quad (\text{II.16})$$

où ε_0 est une constante empirique; E_B , E_{IM} , E_{IN} sont les coefficients d'efficacité de collection correspondants au mouvement brownien, impact et interception; R_1 est un facteur de correction représentant la fraction de particules qui adhèrent à la surface (les particules de diamètre supérieur à 5 μm peuvent subir des rebondissements, mais seulement sur une surface sèche).

Enfin, la croissance dans des conditions d'humidité élevée est représentée par la relation de Gerber

$$r_w = \left[\frac{C_1 r_d^{C_2}}{C_3 r_d^{C_4} - \log RH} + r_d^3 \right] \quad (\text{II.17})$$

où r_w est le rayon de la particule humide, r_d est le rayon de la particule sèche, RH est l'humidité relative et C_1 , C_2 , C_3 , C_4 sont des constantes empiriques spécifiques au type d'aérosol.

Lessivage sous les nuages

Le lessivage est le processus d'élimination des aérosols de l'atmosphère par les précipitations, sous formes de la pluie ou la neige, dans la couche entre la base du nuage et le sol. La capture des particules d'aérosols par les hydrométéores se fait principalement par la diffusion brownienne, la diffusion due au cisaillement turbulent, la diffusiophorèse, la thermophorèse et les effets électrostatiques. Le taux de lessivage par unité de volume est exprimé par la formule de Slinn :

$$\frac{\partial X_i}{\partial t} = f_{cld} \times \Psi(r_i) \times X_i(r_i) \quad (\text{II.18})$$

Où X_i est la concentration et r_i est le rayon moyen d'une particule de la catégorie de taille i , f_{cld} est la fraction de couverture nuageuse et Ψ est le taux de collection qui dépend des dimensions des particules d'aérosols et des dimensions des hydrométéores (Gong et al., 2003).

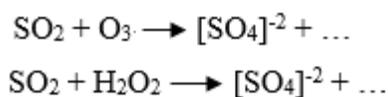
2.5.3 Processus dans les nuages

Nous présenterons dans cette section les processus chimiques produisant du sulfate à partir des précurseurs dans les nuages et les processus physiques impliquant ce sulfate, soit : l'activation, la formation des nuages et les interactions aérosols-précipitation.

L'effet indirect des aérosols sur le climat résultant de ces processus modifie aussi la distribution de taille, la composition chimique des aérosols et des gouttelettes et finalement l'albédo des nuages, puis le bilan radiatif responsable du climat.

2.5.3.1 Processus chimiques

Dans les nuages, le SO_2 est dissous. L'oxydation en phase aqueuse est produite par l'ozone (O_3) si le pH est supérieur à 5 où par le peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) si le pH est inférieur à 5, pour obtenir du H_2SO_4 dans les gouttelettes (Von Salzen et coll., 2000) :



Le pH est calculé en évaluant la concentration des ions d'hydrogène (H^+) à partir du bilan de masse des espèces chimiques dissoutes dans la masse nuageuse concernée au point de maille du modèle. La paramétrisation tient compte de la disponibilité et la répartition du SO_2 entre la phase gazeuse et liquide, ainsi que de la disponibilité de H_2O_2 (Gong et al., 2003).

La production de H_2O_2 est paramétrée de manière simple :

$$\left. \frac{\partial X_{H_2O_2}}{\partial t} \right|_{prod} = -\tau^{-1} (X_{H_2O_2} - X_{H_2O_2}^b) \quad (II.19)$$

où $X_{H_2O_2}^b$ est la concentration de fond provenant du modèle MOZART et τ est la durée de vie, égale à 36 heures conformément aux observations. Ce paramétrage tente de restaurer la concentration de H_2O_2 aux valeurs de fond, après la consommation par les réactions d'oxydation. La disponibilité du SO_2 et H_2O_2 agit sur la production de sulfate. Elle est calculée par les relations suivantes :

$$\left. \frac{\partial X_{S(IV)}}{\partial t} \right|_{trans} = -\frac{\partial X_{S(IV)}}{\partial t} + \frac{\partial X_{S(IV)}}{\partial t} \quad (II.20)$$

et

$$\frac{\partial X_{H_2O_2}}{\partial t} = -F_2 X_{H_2O_2} X_{S(IV)} \quad (II.21)$$

où $X_{S(IV)}$ est la concentration molaire de sulfate, $X_{S(IV)}$ est la concentration totale de SO_2 (en phase gazeuse et dissous dans les gouttelettes) et $X_{H_2O_2}$ est la concentration totale de H_2O_2 (phase gazeuse et dissous). Le terme *trans* décrit le transport du SO_2 par entrainement et par mélanges turbulents dans les nuages convectifs.

Finalement, le sulfate produit dans les nuages est calculé par :

$$\frac{\partial X_{S(IV)}}{\partial t} = F_1 X_{O_3} X_{S(IV)} + F_2 X_{H_2O_2} X_{S(IV)} \quad (II.22)$$

où F_1 et F_2 sont des constantes d'efficacité de réaction englobant la répartition du SO_2 et du H_2O_2 entre la phase gazeuse et la phase aqueuse.

2.5.3.1.1 Activation

Les nuages se forment en atmosphère par suite de la croissance des particules d'aérosols par condensation. La formation des nuages dépend de la concentration de nombre des aérosols, de leur composition et de la sursaturation. La sursaturation dépend du mouvement vertical de l'air. Cependant, l'approche empirique de Jones (Jones et al., 1994) est utilisée dans CAM afin de générer la densité de nombre des gouttelettes de nuage:

$$N_{drop} = 3.75 \times 10^8 \left[1 - \exp(-2.5 \times 10^{-9} N_a) \right] \quad (\text{II.23})$$

où N_a est la concentration de nombre des aérosols ayant le rayon entre 0.05 et 1.5 μm . L'équation (II.15) est une relation empirique basée sur un nombre limité de mesures. Le paramétrage n'utilise pas la distribution de taille des aérosols, ni leur composition, ni les conditions météorologiques.

2.5.3.1.2 Dimensions des gouttelettes

En présumant que le contenu en eau du nuage en phase liquide est distribué de manière égale entre les particules d'aérosol active, alors la taille des gouttelettes est donnée par :

$$r_{cld}(i) = \left(r_{0i}^3 \frac{\rho_{0i}}{\rho_{H_2O}} + \frac{\frac{q_{cl}}{N_{drop}}}{\frac{4}{3} \pi \rho_{H_2O}} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (\text{II.24})$$

2.5.3.1.3 Précipitation

Les interactions entre aérosols et nuages considérées par CAM sont celles qui affectent la distribution d'aérosols, la formation des précipitations et le lessivage dans les nuages. La formation des précipitations dépend de la concentration du nombre de gouttelettes et du contenu en eau liquide des nuages. La masse d'aérosols contenue dans les gouttelettes est transférée aux précipitations. La tendance de lessivage par les précipitations est donnée par :

$$\left. \frac{\partial X_{ip}}{\partial t} \right|_{in-cloud} = -\lambda \times X_{ip}(r_i) \quad (\text{II.25})$$

où λ est la fréquence locale de lessivage [s^{-1}] qui dépend du taux local de condensation et des précipitations. Quand la précipitation subit de l'évaporation dans une couche d'air non saturée, le pourcentage de masse d'aérosol est transféré de la phase condensée de la précipitation à la phase nuage où les particules d'aérosols secs sont présumées être en concentration égale au rapport local entre le taux d'évaporation et le taux de précipitation.

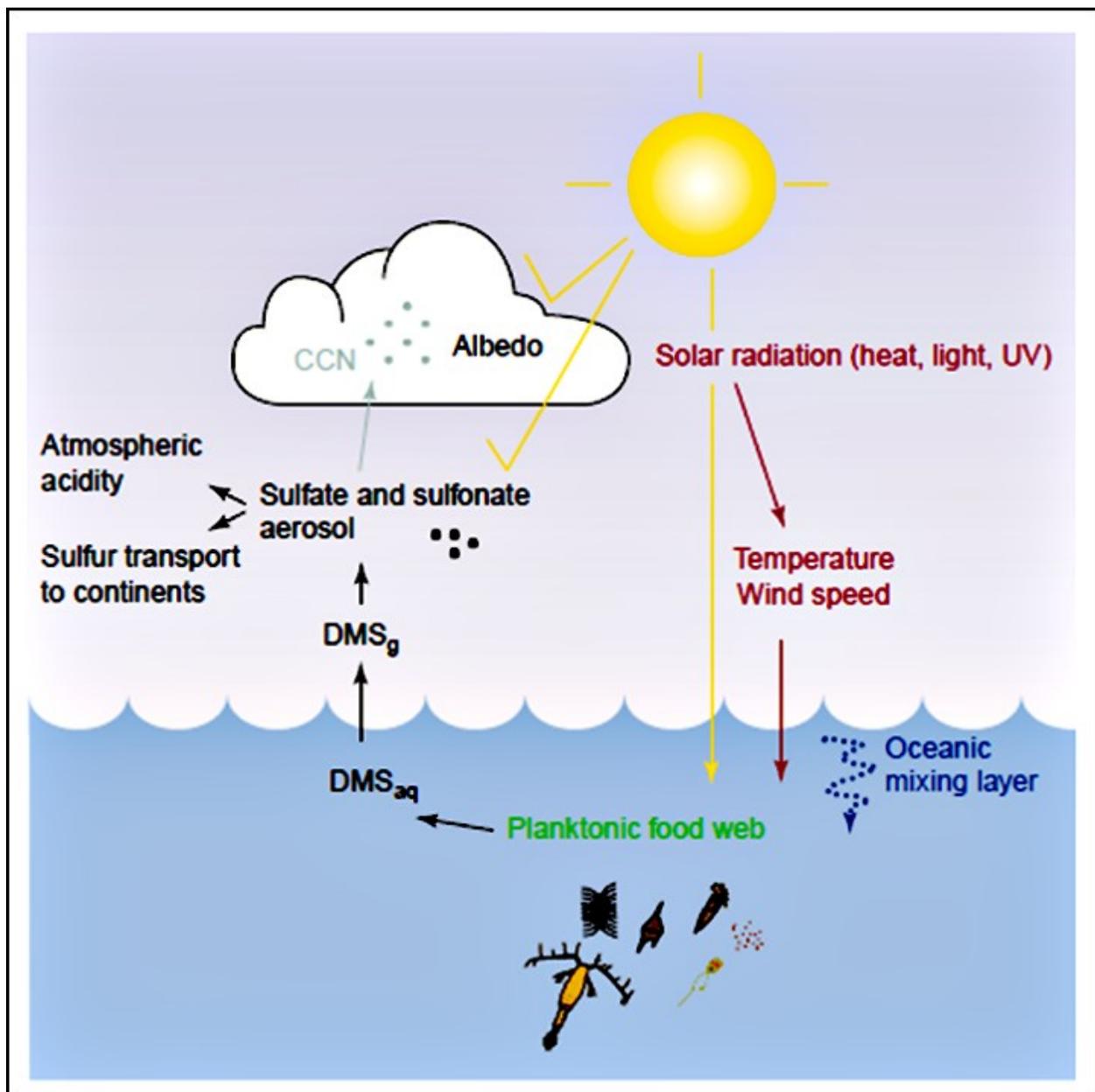


Figure 2-4 Processus utilisé par NARCM : production et émission de DMS, oxydation, transformation en CCN et transport (Figure traduite et adaptée (Simo. 2001)).

La figure 2.4 représente les processus utilisés dans NARCM, incluant l'émission de DMS, son oxydation et la transformation en CCN qui prend en considération le transport des précurseurs anthropiques (SO_2 et SO_4). Ces processus sont calculés par NARCM pour chaque point de la maille se trouvant sur l'océan.

2.5.4 Exploitations des données

Premièrement, nous avons enlevé une bordure contenant neuf points de chaque côté de la grille, appelée zone « éponge », afin d'éviter la prise en considération des données de transition entre la région de pilotage à grande échelle et la sous-grille du modèle régional dans la région d'étude. Deuxièmement, pour sélectionner seulement les données correspondant à la période d'intérêt durant la campagne de mesures, soit du 8 au 25 juillet 2003, nous avons enlevé la période d'initialisation vers un équilibre climatique, dite « spin-up » en anglais, correspondante aux 1440 premiers pas de temps temporels des simulations et qui représentent les premiers 15 jours du calcul du modèle (du 23 juin au 7 juillet 2003) précédant la période d'étude allant le 8 juillet à partir du 23 juin 2003.

Durant la simulation, NARCM calcule les concentrations de cinq espèces d'aérosols, soient : le sel de mer, le sulfate, la suie, la poussière de sol et le carbone organique. Ils sont répartis sur douze catégories de taille pour chaque espèce. Ce sont les champs numérotés de 05 à 64 dans le tableau 2.4. Les champs de 65 à 68 représentent les concentrations des espèces chimiques H_2S , DMS, SO_2 et H_2SO_4 en phase gazeuse. Ils sont utilisés comme variables pronostiques ou prédictives de façon interactive avec la dynamique pour chaque point de la maille du modèle.

Tableau 2.4 Définition des champs de traceurs calculés et sauvegardés par le modèle, ainsi que leurs noms et leurs unités de mesure.

Traceurs	Description	Unité
01	Eau liquide dans les nuages	kg / m ³
02	Eau glacée dans les nuages	kg / m ³
03	Gouttelettes d'eau	/ m ³
04	Couverture nuageuse	%
05 – 16	Sel de mer	kg / m ³
17 – 28	Sulfate	kg / m ³
29 – 40	Suie	kg / m ³
41 – 52	Poussières de sol	kg / m ³
53 - 64	Carbone organique	kg / m ³
65	H ₂ S	kg / m ³
66	DMS	kg / m ³
67	SO ₂	kg / m ³
68	SO ₄	kg / m ³
69	H ₂ O ₂	kg / m ³

Pour visualiser, analyser et interpréter les résultats nous avons utilisé le logiciel d'analyse graphique IDPro (IDPro., 2003). Ce logiciel est capable de traiter des fichiers en 3D, de fournir des séries temporelles, des cartes, des coupes et des profils verticaux, de calculer des moyennes temporelles et de produire des séquences animées. Les données météorologiques d'observation recueilli sur le bateau et celles provenant des analyses objectives mondiales (Séguin et coll., 2010) nous ont été utiles aux fins d'évaluation de nos simulations et d'interprétation des phénomènes observés et simulés. À cette fin nous utiliserons essentiellement les données obtenues en surface seulement, compatibles avec les mesures *in situ*, car les équipes de la campagne SABINA n'ont pas effectué des mesures en altitude. Les mesures météorologiques de surface principales, servant de références sont : la température, la pression au niveau de la mer, la vitesse et la direction du vent. Ces mesures étaient nombreuses, régulières, mais disponibles uniquement le long de la trajectoire du bateau.

2.6 Simulations du NARCM

On a réalisé deux simulations par NARCM dans le même domaine et avec les mêmes paramètres de base, mais une avec et l'autre sans l'inclusion des émissions continentales. La figure 2.5 représente le domaine des expériences qui contient le parcours du bateau et les huit stations biogéochimiques {L, T1 à T7} visitées par le navire. Le domaine de calcul consiste en la région bordée au nord en une partie du Groenland, de la baie de Hudson, les provinces à l'est du Canada jusqu'au Manitoba et en bordure de la Saskatchewan; et pour les États-Unis, allant au sud de la Floride et une partie du Golf de Mexique, au nord allant des Grands Lacs jusqu'au Dakota du Nord au centre du continent. Cette vaste région inclus la majeure partie des émissions continentale des sulfates anthropiques pouvant influencer directement la région parcourue durant la campagne SABINA sur l'Atlantique Nord.

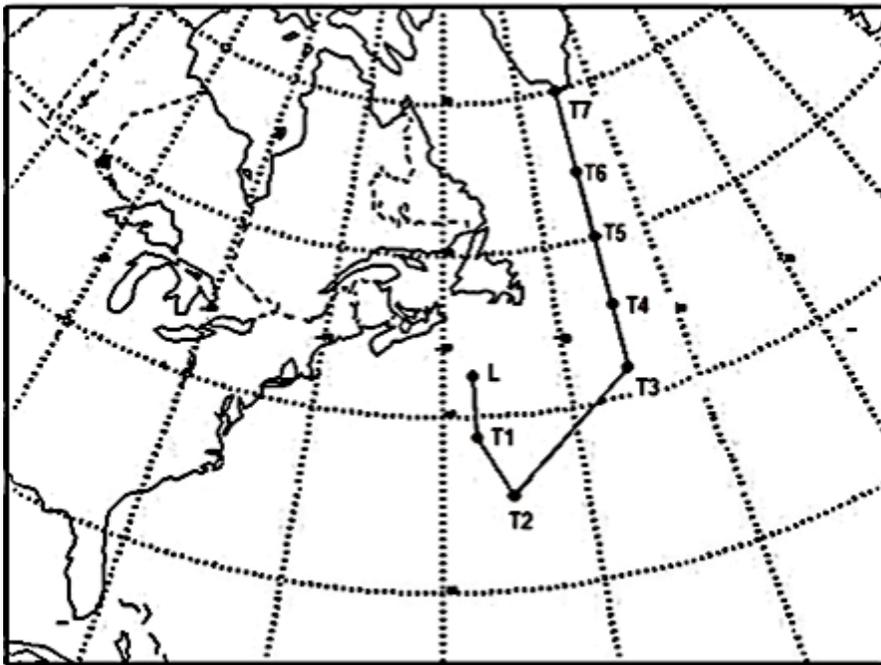


Figure 2-5 Domaine de l'expérience utilisé par le modèle NARCM incluant les 8 stations et le trajet de la campagne SABINA.

Pour exécuter ces deux expériences, on a utilisé les réanalyses du NCEP pour les deux mois, juin et juillet 2003 prises à chaque 6 h, comme fichier du pilotage. La résolution horizontale à 60° N est de 50 km, les coordonnées du centre de la grille sont (50°N,45°O). Le nombre de points (X,Y) de la grille en X est 101, nombre des points en Y est 91 avec 29 niveaux verticaux. La période totale

d'intégration est du 01 au 28 juillet. Le pas du temps de l'intégration est 900 s, et la période analysée est du 8 au 25 juillet. Le tableau 2.5 décrit les paramètres des deux expériences I et II réalisées par NARCM comme expliqués ci-dessus.

Tableau 2.5 Paramètres utilisés par les deux expériences dans NARCM

Paramètre	Expérience I et II
Fichier pilotage (et leur résolution temporelle)	Réanalyses NCEP : juin - juillet 2003 (à chaque 6 h)
Résolution horizontale à 60°N	50 [km]
Latitude centre grille	50°N
Longitude centre grille	45°W
Nombre points en X	101
Nombre points en Y	91
Nombre niveaux verticaux	29
Période totale	1-28 juillet
Pas de temps de l'intégration	900 [s]
Période analysée	8-25 juillet

Nous avons sauvegardé les calculs aux mêmes pas de temps (heures) que les observations enregistrées pour SABINA. La comparaison qu'on a faite pour les variables simulées par NARCM et observées durant la campagne SABINA a commencé le 8 juillet 2003 à partir de 18h00 et a fini après 398 heures de simulations, soit jusqu'au 25 juillet à 9h00, couvrant toute la période selon laquelle les mesures ont été prises, incluant les sept stations, la station du mouillage et le trajet de retour. Pour chaque point du trajet (x_t , y_t) à la résolution de maille du modèle, suivi par le bateau et pour le pas du temps de calcul correspondant aux mesures SABINA, pour consolider la

représentation statistique on prend la moyenne de cinq points se trouvant à la même latitude et longitude et ayant comme centre le point coïncidant avec celui du parcours de la campagne SABINA-été-2003. Considérant que les temps des mesures étaient différents chaque jour, et pour fin d'analyse, on a pris les résultats des simulations pour chaque 6 heures durant le parcours, permettant de tenir compte de l'évolution temporelle suivant la trajectoire de SABINA. Puis, on a comparé les valeurs mesurées aux moments coïncidant du modèle avec ceux de SABINA. Les résultats de cette analyse sont présentés au prochain chapitre.

2.6.1 Le DMS océanique

Les valeurs issues de la base de données de Kettle (1999) à partir d'un nombre restreint de données historique, sont considérées ici comme représentatives « de moyennes climatiques » pour le mois juillet selon les provinces biogéochimiques. Par hypothèse, on suppose également dans ce travail que tous les points de la même province biogéochimique ont la même valeur moyenne uniforme durant tout le mois. Les conséquences de cette approximation est analysé au chapitre 3.

La figure 2.6 montre la distribution de DMS océanique dans tout le globe pour le mois de juillet. Ces valeurs sont des valeurs climatiques extraites de la base de données de Kettle 1999 (Kettle et al., 1999). On note particulièrement que la concentration de DMS suit approximativement les courants chauds au Nord de l'océan Pacifique (Kuroshio) et celui du Gulf Stream dans l'Atlantique Nord.

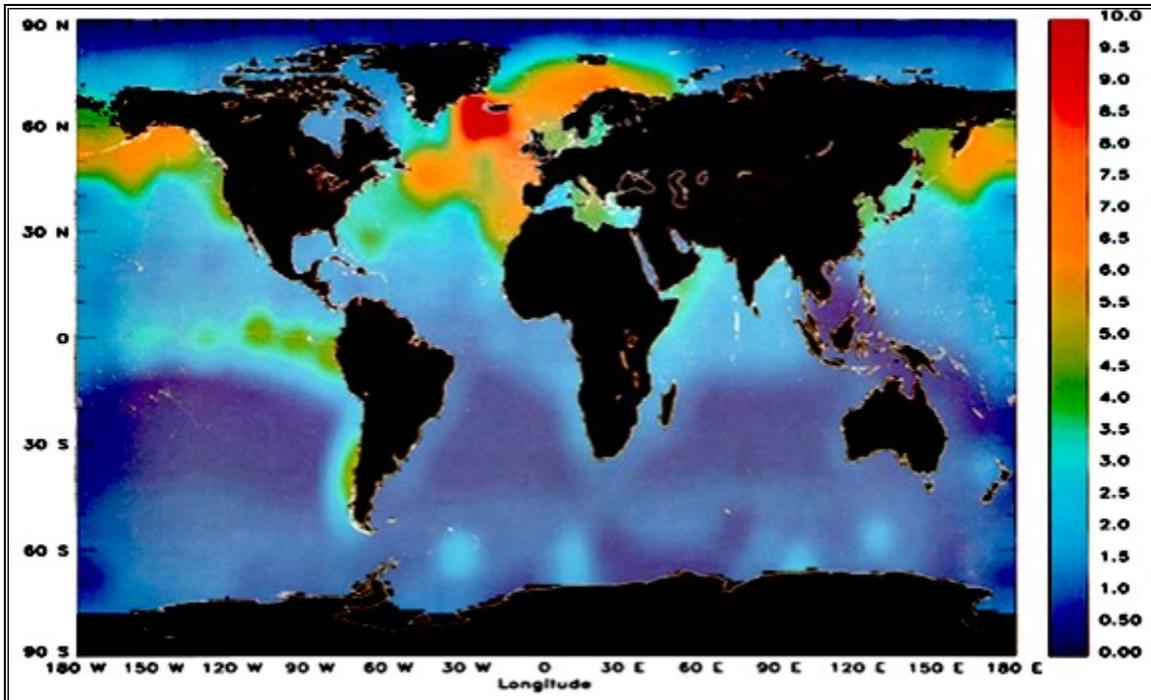


Figure 2-6 Base de données climatique globale de la concentration du DMS océanique (nmol/l) juillet (Kettle, 1999) pour le globe.

2.6.2 Les gaz sulfurés : DMS et SO₂

Pour la concentration de DMS simulée, on a utilisé les résultats de la simulation archivée à chaque heure correspondante aux observations de SABINA-été-2003 durant le parcours. Pour le SO₂, durant la campagne SABINA, une mesure le jour et une mesure la nuit ont été prélevé, mais elles n’ont pas été prises aux mêmes heures. Chaque jour, on a pris une mesure à des heures variables selon les conditions météorologiques. L’appareil de mesures utilisé est « High-Volume sampler 2 » utilisé pour mesurer les particules de sulfate de diamètre <100 µm.

Pour la simulation, on a quatre évaluations par jours sauvegardées aux périodes de 6 heures. Dans notre étude, on compare les observations avec les valeurs des simulations pour les mêmes périodes correspondantes aux observations afin de prendre en compte le transport du SO₂ et sa trajectoire historique. Ainsi, on utilisera les résultats du SO₂ pour tout le domaine sur plusieurs pas de temps de manière à montrer l’évolution et la répartition du SO₂ durant la période de campagne, et ce pour tout le domaine. Par ailleurs, on utilisera le profile vertical pour prendre en compte la répartition verticale du SO₂ simulé, notamment sur la station T3 où l’effet de transport vertical par

soulèvement de l'air semble important. On comparera ainsi les observations aux simulations pour les points de grille correspondants, mais à deux niveaux d'altitudes, soit 1000 mb et 960 mb, et on évaluera la correspondance entre les observations et la simulation en tenant compte de la structure verticale de la concentration simulée du SO₂.

2.6.3 Les particules de sulfate

La campagne SABINA avait 2 instruments « High-Volume sampler » pour mesurer la distribution de tailles des aérosols, un instrument mesurant la concentration totale de toutes les tailles dont le diamètre est inférieur à 100 µm, et un deuxième instrument mesurant par segmentation de leurs tailles dans six intervalles de diamètre. Pour comparer les résultats de la simulation aux observations, on a effectué une interpolation linéaire sur les distributions de tailles calculées par NARCM et coïncidentes avec celles de SABINA. Pour SABINA les 6 tailles rapportées vont de 0 à 10 µm de diamètre, tandis que pour NARCM on a 12 tailles (traceurs) vont de 0.01 à 40.96 µm de diamètre telle que présenté au tableau 2.6.

Tableau 2.6 Catégories de tailles des particules aérosols (traceurs) utilisé dans NARCM

Taille	Intervalle de diamètre (µm)	Traceur
1	0.010-0.020	Traceur 17
2	0.020-0.040	Traceur 18
3	0.040-0.080	Traceur 19
4	0.080-0.160	Traceur 20
5	0.16-0.32	Traceur 21
6	0.32-0.64	Traceur 22
7	0.64-1.28	Traceur 23
8	1.28-2.56	Traceur 24
9	2.56-5.12	Traceur 25
10	5.12-10.24	Traceur 26
11	10.24-20.48	Traceur 27
12	20.48-40.96	Traceur 28

En fait, il s'agit de deux types de comparaisons entre les simulations et les mesures pour toutes les tailles des aérosols sulfatés, soient :

- La première comparaison a été faite entre la somme totale des concentrations de tous les traceurs calculés par NARCM et celles mesurées par l'appareil PM100 pour chaque point du parcours.
- La deuxième comparaison a été faite entre les concentrations des sulfates simulées et celles observées ou mesurées pour trois catégories de taille des particules, soient : $D < 0.49 \mu\text{m}$, $0.49 < D < 0.95 \mu\text{m}$ et $D > 0.95 \mu\text{m}$.

Pour faire ces trois comparaisons avec une résolution de la distribution de tailles, on a regroupé les tailles du NARCM incluses dans chaque catégorie correspondante aux observations. De la même manière on a regroupé les tailles des particules collectées par l'appareil PM10 « High-Volume Sampling » pour qu'elles soient comparables à celles de NARCM. Le tableau 2.7 montre la comparaison entre les intervalles de diamètre des particules simulées par NARCM et celles mesurées au cours de la campagne SABINA, ainsi que la manipulation qu'on a faite pour que les intervalles puissent coïncider entre elles.

Tableau 2.7 Comparaison entre les intervalles de diamètre des particules mesurées par SABINA et leur traceurs correspondants de NARCM.

Intervalle des diamètres des particules de sulfates (μm)	Numéros des tailles de SABINA	Traceurs de NARCM regroupés selon les tailles comparées
< 0.49	1	Traceurs 17-22
0.49-0.95	2	Traceurs 22-23
0.95-1.5	3, 4, 5 et 6	Traceurs 24-26

2.7 Vérification synoptique

Afin de vérifier la correspondance statistique de nos simulations avec l'évolution des conditions synoptiques durant la campagne de mesures, on a effectué deux comparaisons de trois variables météorologiques observées sur le bateau, soit la température, la pression et le vent. Pour chaque variable on a comparé l'évolution temporelle des variables simulées par NARCM avec celles observées localement durant la campagne SABINA aux stations et tout au long de son parcours.

La comparaison qu'on a fait pour chaque variable météorologique a commencé le 8 juillet 2003 à partir de 18h00 pour se terminer 398 heures plus tard, soit jusqu'au 25 juillet à 9h00 couvrant ainsi toute la période durant laquelle les mesures ont été prises aux sept stations, à la station du mouillage et sur une partie du trajet de retour. Ainsi, on vérifiera pour chacune de ces variables météorologiques, la corrélation linéaire entre les données simulées et observées, et en calculant le coefficient de corrélation r défini par :

$$r = \frac{\sum_{i=1}^n [(x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})]}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \cdot (y_i - \bar{y})^2}}$$

où x_i représente une valeur de la première distribution (variable simulée), \bar{x} est la moyenne de la première distribution (variable simulée), y_i une valeur de la deuxième distribution (variable observée), \bar{y} la moyenne de la deuxième distribution (variable observée) et $\sum_{i=1}^n$ est la somme des termes.

CHAPITRE 3

RÉSULTATS ET ANALYSES

3.1 Analyse de la circulation atmosphérique

3.1.1 Cartes d'analyse de surface

Pour vérifier les conditions météorologiques observées durant la campagne SABINA, on a étudié l'évolution de l'état synoptique de l'atmosphère durant la trajectoire du bateau entre le 8 et le 22 juillet 2003. On se limite aux stations où le bateau s'est positionné pour prendre des mesures locales plus élaborées. Ces stations sont illustrées à la figure 2.3. Pour cette analyse, on a sélectionné les cartes de surface produites par Environnement Changement Climatique Canada (ECCC) à 00Z pour les dates suivantes : soient les 8, 10, 11, 14, 16, 18, 20 et 22 juillet 2003 montrées à la figure 3.1. Ces cartes couvrent la région correspondante à celle de la simulation du modèle NARCM, incluant le parcours du bateau et la position des 8 stations biogéochimiques visitées durant la campagne. Nous analyserons ces cartes météorologiques dans une prochaine étape, voyons d'abord les rétrotrajectoires correspondantes à ces stations de mesures.

3.1.2 Les rétrotrajectoires (HYSPLIT)

En complément d'étude, à la figure 3.2, on montre les rétrotrajectoires pour des parcelles d'air aboutissant dans la couche limite planétaire (CLP) de la campagne, soient : 100 m, 500 m et 1000 m. Ces parcelles arrivent toutes simultanément à chacune des stations visitées par le bateau durant SABINA. Les rétrotrajectoires arrivant à 100 mètres d'altitude sont considérées comme étant représentatives des conditions au niveau de la mer, bien que des biais soient possibles par rapport aux instruments sur le bateau à une vingtaine de mètres de hauteur au niveau de la mer (Seguin, 2007) et le premier niveau du modèle à 1000 mb.

En déterminant la provenance des régions sources à chaque altitude de la CPL, ces rétrotrajectoires sont un outil important pour évaluer l'origine et la composition générale des substances anthropiques ou biogéniques et océaniques (DMS) à chacun des sites d'observation. Le modèle de rétrotrajectoires permet d'évaluer la région source la plus probable pour l'origine de la masse d'air observée aux stations. Pour ce calcul, le modèle « Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory » (HYSPLIT) du « National Oceanic and Atmospheric Administration » (NOAA) a été utilisé. Il permet de tracer les rétrotrajectoires de la masse d'air dans la CPL (Draxler & Rolph, 2003) en fonction de l'altitude et de la position géographique. En utilisant les données de « NCEP (National Centers for Environmental Prediction) Reanalysis », les rétrotrajectoires ont été calculées sur les 120 heures précédant l'heure d'échantillonnage aux stations. Les latitudes et les longitudes des points choisis coïncident avec celles des stations visitées par le navire. Le mouvement vertical a été exprimé en termes de la pression atmosphérique [hPa/h].

L'analyse de la carte du 8 juillet (figure 3.1) montre que la station L est dans un creux barométrique, qu'elle a connu récemment le passage d'un front froid et que le vent est alors du nord-ouest. L'analyse de la trajectoire de la masse d'air arrivée à cette station (figure 3.2 - 8 juillet) confirme aussi que les parcelles d'air de la couche limite (100 m, 500 m et 1000 m) venaient du nord-ouest, en partant du continent et traversant l'océan durant cinq jours jusqu'à la station L. La région source, principalement au centre et au nord du Québec, est relativement dépourvue de sources anthropogéniques, favorisant un air plus propre.

Pour la carte du 10 juillet (figure 3.1) la station T1 est elle aussi sous l'influence du même creux de pression qui s'est déplacé vers le nord-ouest, avec un vent de l'ouest à T1. L'analyse de la trajectoire de la masse d'air arrivée à cette station (figure 3.2-10 juillet) montre que les parcelles d'air de la couche limite venaient principalement de l'ouest en altitude avec une composante sud-sud-ouest près de la surface. Les parcelles arrivant au niveau 1000 m venaient d'un mélange de parcelles d'air continental en altitude et d'air océanique issu de la surface qui se sont combinées en traversant l'océan durant ces cinq jours jusqu'à la station T1. Cependant, la parcelle arrivant au niveau 500 m venaient de l'Océan, longeant le continent de la Floride aux Carolines avant d'obliquer vers la station T1. On note que la parcelle du niveau 100 m est restée près de la surface tout au long de sa trajectoire vers la station T1 avec une influence maritime soutenue.

Lorsque le bateau est arrivé le 11 juillet à la station T2, celle-ci était sous l'influence d'un anticyclone et le vent provenait aussi du sud-ouest. Les parcelles d'air de la couche limite (100 m, 500 m et 1000 m) arrivées à cette station (figure 3.2-11 juillet) avaient des trajectoires semblables

à celles de la station T1 à l'exception de celle à 500 m qui venaient plus profondément du continent, partant du Texas et traversant le centre des États-Unis.

Les cartes du 14, 16 et 18 juillet (figure 3.1) montrent que les stations T3, T4 et T5 étaient également sous l'influence d'un anticyclone quasi-permanent et que les vents dominants étaient aussi du sud-ouest. L'analyse des trajectoires de la masse d'air arrivée à ces stations (figure 3.2-14, 16 et 18 juillet) montre que les parcelles d'air de la couche limite venaient toutes de l'océan, de la direction sud-sud-Ouest pour atteindre les trois stations en passant à proximité du continent, ce qui permettrait de capturer des résidus des particules et gaz continentaux transportés vers l'océan par la circulation atmosphérique durant cette période.

En ce qui concerne l'analyse de la carte du 20 juillet (figure 3.1), elle montre que la station T6 est dans une faible dépression formant un point de selle avec un vent léger du sud-ouest. L'analyse de la trajectoire de la masse d'air arrivée à cette station (figure 3.2-20 juillet) montre que les parcelles d'air à tous les niveaux de la couche limite venaient du sud-ouest en longeant la Nouvelle-Angleterre, les provinces maritimes et Terre-Neuve pour se diriger vers la station T6. On a donc ici une influence océanique importante caractérisée par le DMS, mais également une potentielle contribution anthropique des côtes américaines à partir de la Nouvelle Angleterre et de provinces Maritimes canadiennes, comme nous le verrons avec nos simulations (figure 3.16).

Enfin la carte du 22 juillet (figure 3.1) montre que la station T7 à l'extrémité sud du Groenland était aussi située dans ce point de selle avec une faible dépression (quasi-stationnaire) et que le vent était léger du sud. L'analyse de la trajectoire de la masse d'air arrivée à ces stations (figure 3.2-22 juillet) indique que les parcelles d'air de la couche limite venaient toutes de l'océan direction sud pour arriver à la station T7 avec un bon potentiel d'influence du DMS océanique.

On note que la région étudiée a connu les effets en périphérie du passage de la tempête tropicale Danny entre le 16 et le 21 juillet. L'influence de Danny, en s'approchant de la zone de la campagne SABINA, a apporté beaucoup d'humidité les 19 et 20 juillet, comme le montre la figure 3.1 sur le panneau d'analyse du 20 juillet 00Z. Durant ces deux jours, la région a connu de fortes précipitations. Ces pluies ont contaminé les mesures en augmentant la déposition humide du SO₂ et des aérosols.

En général, la région d'étude a été dominé durant cette période par l'anticyclone quasi stationnaire situé au sud et sud-est entre les stations L et T4. On note aussi l'influence de creux dépressionnaires dans le secteur nord qui ont favorisé une circulation synoptique avec des vents modérés ou faibles

de l'ouest ou du sud-ouest au début de la campagne. Ceux-ci ont permis le transport et le mélange des substances d'origine continentale et océanique dans le secteur sud de la région d'études. À la fin de la campagne, la circulation d'origine océanique a dominé favorisant la production d'aérosols biogéniques provenant du DMS.

Selon cette analyse, on s'attend à ce que la composition de SO_2 et de sulfate particulaire soit influencée par des sources d'origine anthropique et continentale comme nous le verrons dans les prochaines sections en analysant les variables météorologiques ainsi que les concentrations observées et simulés du DMS, du SO_2 et des particules de sulfate.

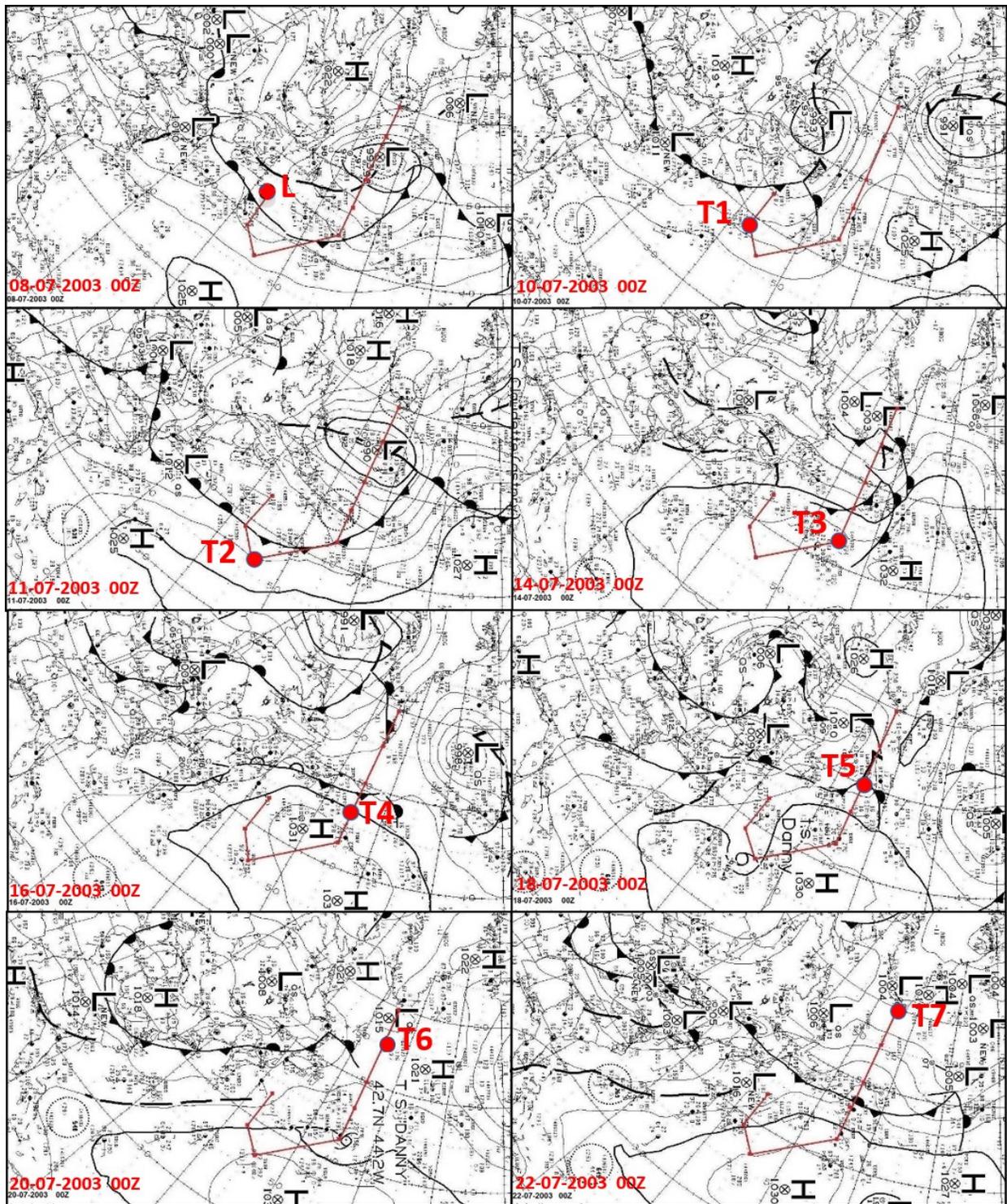


Figure 3-1 Analyses de surface à 00Z produites par Environnement Canada pour les jours d'arrêts à chaque station du parcours de SABINA. Chaque panneau est défini par un des points rouges L, T1, T2, T3, T4, T5, T6 et T7. Ceux-ci représentent les stations de séjour du bateau correspondant respectivement aux dates 08, 10, 11, 14, 16, 18, 20 et 22 juillet 2003. La ligne rouge représente le trajet complet du parcours du bateau durant la campagne SABINA.

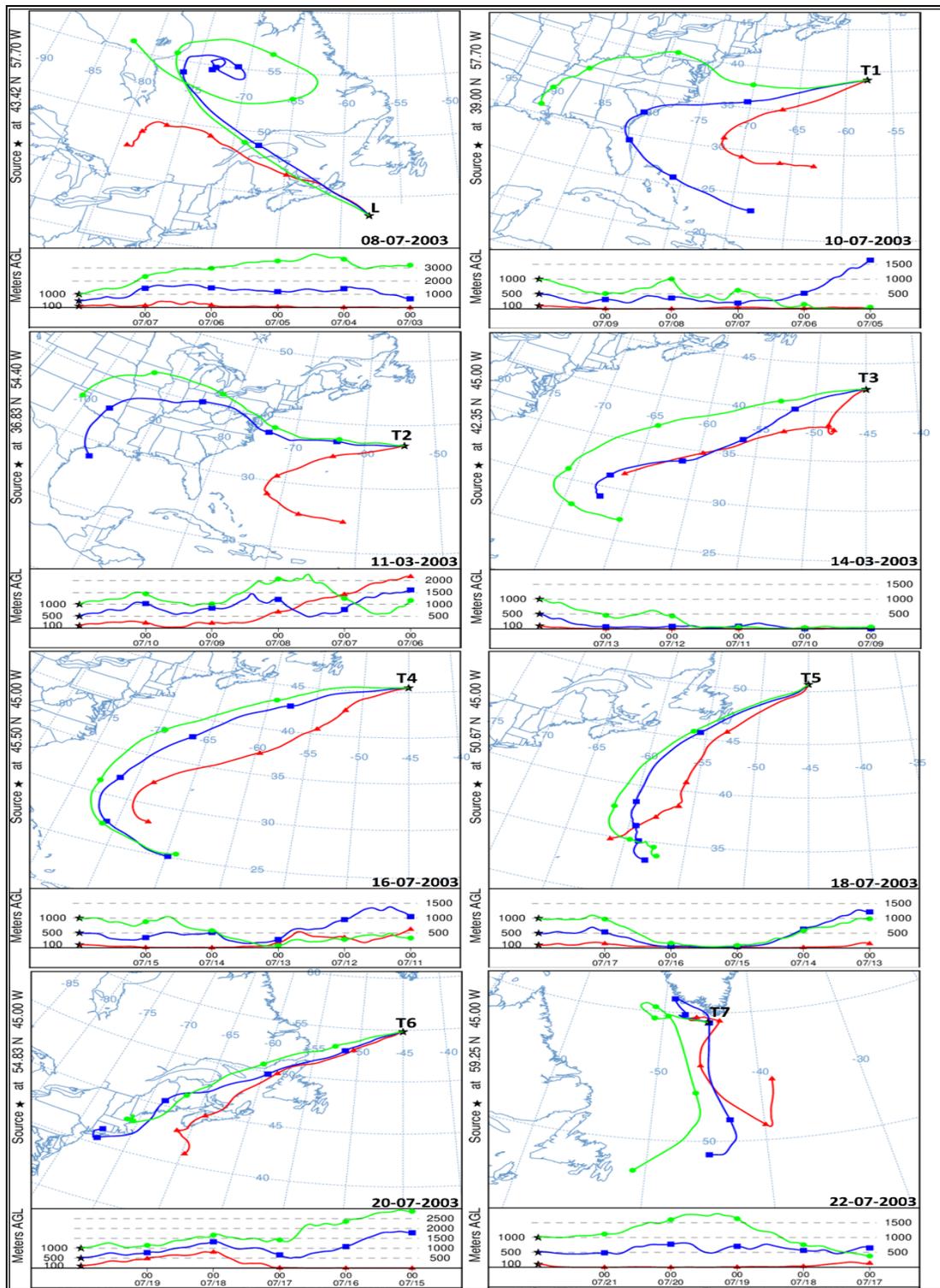


Figure 3-2 : Rétrotrajectoires calculées selon l'algorithme HYPPLIT pour 3 parcelles (rouge, bleu, vert) arrivant à chaque station (de L à T7). Trois altitudes arrivant à chaque station sont considérées : 100m (rouge), 500m (bleu) et 1000m (vert). Pour chacune des 8 stations, le panneau supérieur montre les trajectoires horizontales selon les positions géographiques, alors que le panneau inférieur montre les trajectoires verticales selon l'altitude en fonction du temps antérieur à la mesure.

3.2 Les principales variables météorologiques

Notre objectif pour cette analyse est d'évaluer dans quelle mesure le modèle NARCM permet de simuler de manière réaliste l'évolution des systèmes météorologiques, conformément aux observations prélevées sur le bateau. Pour cette vérification, on s'attardera ici aux variables dominantes de la circulation atmosphérique qui influencent les concentrations observées du DMS, du SO₂ et d'aérosols de sulfate. Ainsi, on compare la simulation prévue dans le secteur sur une seule maille du modèle NARCM aux observations *in situ* localement prélevées sur le bateau durant la campagne, donc à une échelle beaucoup plus fine. Enfin, dans la mesure où le modèle capture adéquatement l'évolution du système, nous analyserons la campagne SABINA en utilisant nos simulations comme complément d'information pour permettre une interprétation plus détaillée des mesures. On envisage que ça nous permettra de mieux intégrer les processus d'émission et de transport des aérosols ainsi que la structure verticale des concentrations.

Pour cette analyse, on sélectionne trois variables pronostiques dominantes de l'atmosphère au niveau de la surface, soit la pression de surface, le vent et la température. Pour chaque variable, on compare l'évolution temporelle des variables simulées par NARCM avec celles observées *in situ* durant la campagne SABINA tout au long de son parcours. Les comparaisons débutent le 8 juillet 2003 à partir de 18h00 pour se terminer 398 heures plus tard, soit jusqu'au 25 juillet à 9h00, couvrant ainsi toute la période durant laquelle les mesures sur le bateau ont été prises, incluant la station du mouillage L, les sept stations (de T1 à T7) et une partie du trajet de retour.

Une comparaison statistique et une corrélation des principales variables pronostiques sont présentées à la figure 3.3.

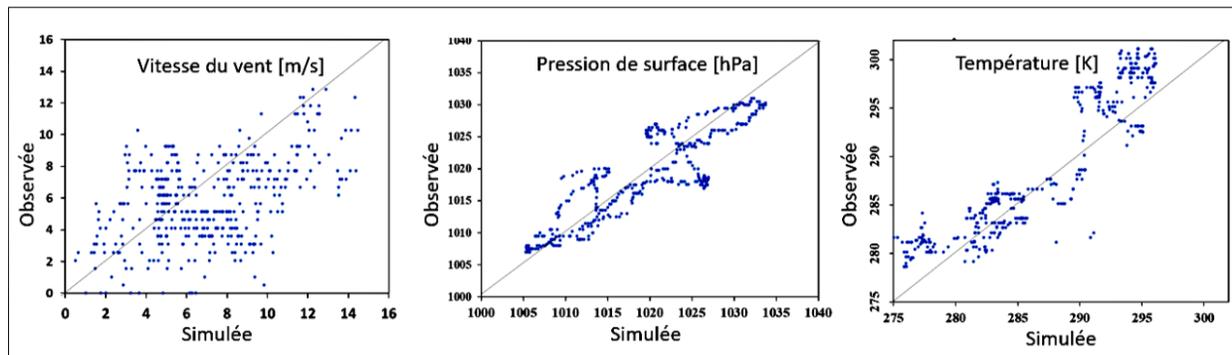


Figure 3-3 : Courbes de corrélations entre les valeurs observées et simulées de pression, de vitesse de vent et de température.

3.2.1 La pression de surface

La pression est une variable primordiale pour définir la dynamique des systèmes météorologiques, leur position ainsi que leur évolution. La surestimation ou la sous-estimation par le modèle de cette variable exercerait une influence directe sur la simulation du vent et en général, sur la circulation atmosphérique.

Sur la figure 3.4, on note que la simulation de la pression au niveau de la mer suit généralement les observations avec une bonne corrélation linéaire de $r=0.91$ (figure 3.3), sauf pour quelques écarts aux stations T4 et T5, où notre modèle sous-estime la pression de 6 hPa en T4 et la surestime de 9 hPa en T5. On note aussi une légère surestimation (< 3 hPa) de la haute pression dans la région entre T2 et T3, ce qui influence la simulation de la vitesse du vent dans la région (figure 3.5).

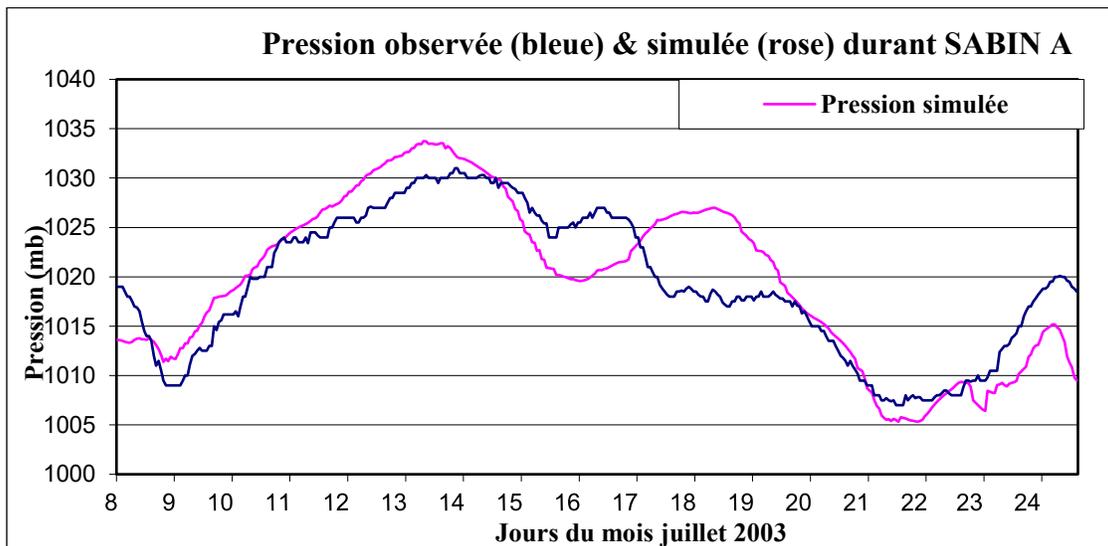


Figure 3-4 : Pression au niveau de la mer observée (bleue) comparée à la simulation (rouge) le long du parcours SABINA

3.2.2 Le vent près de la surface

Vu que le vent joue un rôle important dans l'émission du DMS, d'après la relation de Wanninkof, la sous-estimation du vent dans le modèle aurait des effets sur l'émission du DMS, sur le mélange vertical et sur son transport aéroporté. Elle aurait aussi un effet sur le transport du SO_2 précurseur et des particules de sulfate, donc de leur concentration dans la région.

La figure 3.5 illustre les courbes comparatives pour la vitesse du vent observées et simulées le long du parcours de SABINA. Ici également, les mesures *in situ* qui ont été réalisées sur le bateau

couvrent la même période, soit du 8 juillet au 25 juillet 2003. On remarque une plus grande variabilité dans l'observation de la vitesse du vent par rapport au modèle, en bonne partie à cause des écarts importantes entre les échelles impliquées, soit l'échelle régionale du modèle (~50 km) et l'échelle très locale du bateau (<100 m).

Tout de même, la simulation de l'amplitude du vent suit approximativement (± 3 m/s) l'amplitude du vent simulé, bien qu'elle soit généralement plus lisse que l'observation. Ceci est en partie due à la turbulence rencontrée à la fine échelle sur le bateau, mais absente à l'échelle plus grande du modèle. Le biais principal est noté en T6 avec des surestimations moyenne d'environ 5 m/s et un maximum d'écart de 8 m/s le 20 juillet. Considérant les échelles en cause et la variabilité naturelle du vent à l'échelle locale du bateau, les résultats montrent tout de même une concordance approximative générale entre le modèle et l'observation *in situ*.

La figure 3.3 présente une corrélation de 0.5 entre l'observation et la simulation de l'intensité du vent avec une sous-estimation moyenne dans la simulation, probablement liée à présence de rafales à la fine échelle, avec des conséquences sur le mélange et l'émission de DMS par la surface.

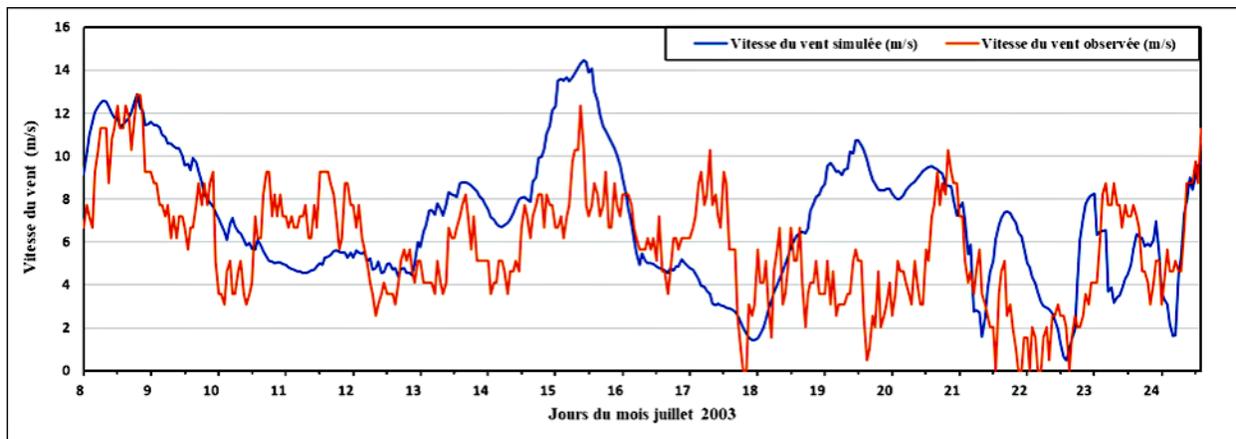


Figure 3-5 : La vitesse du vent au niveau de la mer observée (rouge) comparée à la simulation (bleu) le long du parcours SABINA

3.2.3 La température près de la surface

Cette fois, les températures simulées (figure 3.6) suivent relativement bien l'observation, particulièrement dans la seconde moitié de la campagne avec une corrélation linéaire de $r = 0.88$. On note un écart moyen significatif d'environ -5°C du modèle sur la plage de stations allant de T1 à T3, soit dans la portion sud de la trajectoire du bateau, sur le Golfe de Mexique, là où les températures sont chaudes puisque le modèle utilise une valeur climatologique mensuelle de la

température de surface d'océan (SST) pour le courant du Golfe de Mexique qui peuvent être différentes des valeurs actuelles de la campagne de mesures, et aussi en tenant compte de sa variabilité naturelle. Rappelons l'importance et le rôle de la température dans les réactions chimiques et la production, l'émission et la transformation des substances étudiées.

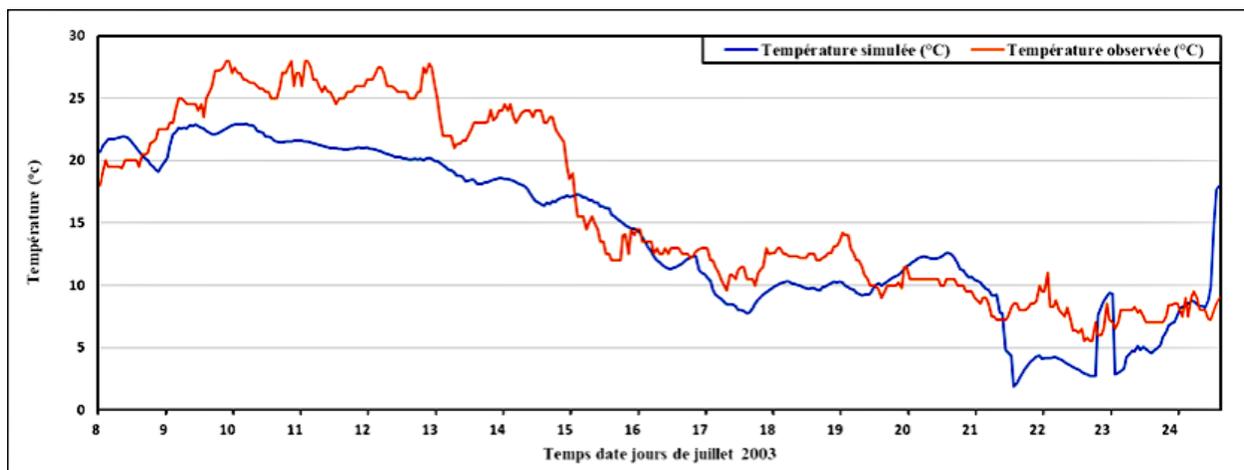


Figure 3-6 : Variation de température de l'air au niveau de la mer observée (rouge) comparée à la simulation (bleu) le long du parcours de la campagne SABINA.

La comparaison de ces variables nous permet de traiter avec un bon degré de confiance l'analyse des processus d'évolution des aérosols, puisque ceux-ci sont influencés en bonne partie par la situation météorologique. Le transport du sulfate par le vent est le facteur déterminant pour la distribution spatiale de sa concentration sur l'Océan Atlantique. Sa composante d'origine anthropique est transportée principalement de la côte est de l'Amérique du Nord vers l'océan par la circulation dominante, allant normalement d'ouest en est aux moyennes et hautes altitudes de notre domaine d'étude.

3.2.4 DMS

L'objectif principal de ce travail est de fournir une analyse complémentaire, à partir des simulations NARCM, des concentrations DMS dans l'océan et dans l'air, de son flux d'émission, de son transport par l'atmosphère et de sa transformation par oxydation en SO_2 , puis en sulfate. Pour ce faire, on analyse successivement des comparaisons entre les observations et les simulations en commençant par la concentration de DMS océanique, puis le flux de DMS de l'océan vers

l'atmosphère, ensuite la concentration de DMS atmosphérique, pour finir par l'analyse de l'influence du vent sur la concentration le long du parcours de la campagne SABINA.

3.2.5 DMS océanique

Pour chaque station du parcours de la campagne SABINA, nous avons comparé les mesures *in situ* avec celles de la base de données standard de Kettle (1999) afin de vérifier notre hypothèse d'émission dans le modèle. L'équipe en charge des mesures du DMS océanique durant la campagne n'ont prélevé qu'une seule mesure par station tout au long du parcours, puisqu'elle ne varie que lentement par rapport au temps de séjour du bateau. On note qu'aucune mesure de DMS océanique n'a pu être prélevée pour la station T5 à cause de problèmes techniques avec les instruments. Cependant, puisque la station T4 et T5 se trouvent dans la même province biogéochimique, cette situation n'affectera que modérément l'évaluation de cette région.

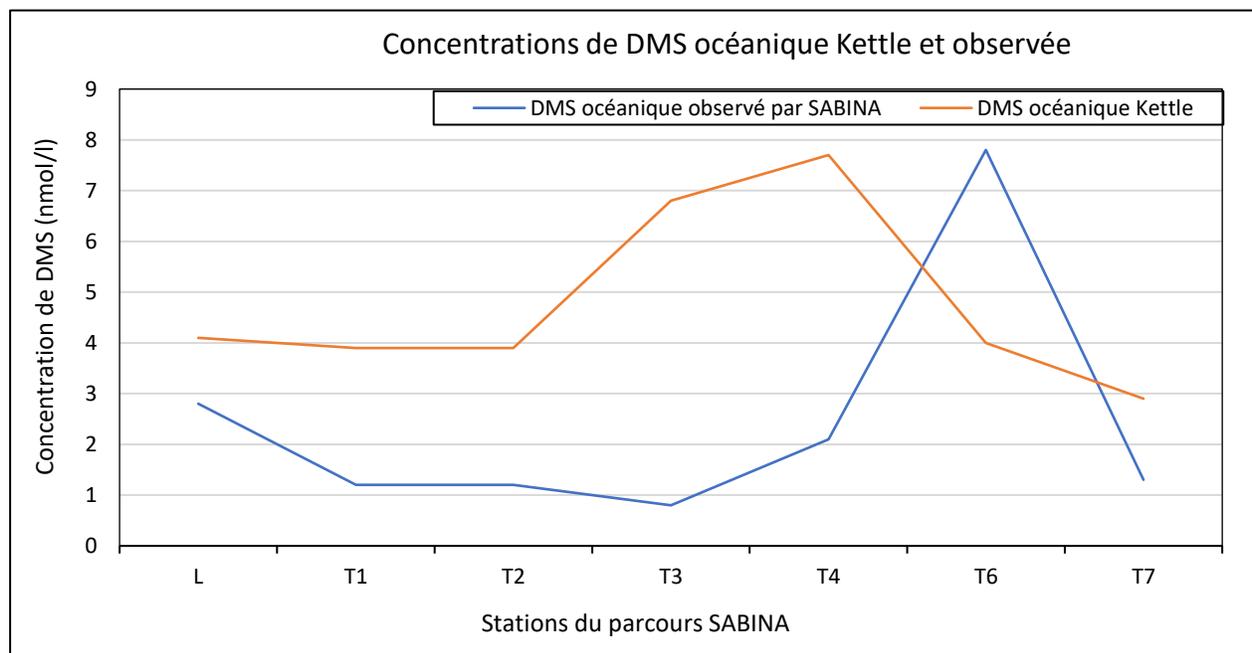


Figure 3-7 : Comparaison entre les concentrations de DMS océanique mesurées par SABINA et celles de la base de données climatique de Kettle (1999) aux stations correspondantes {L, T1, T2, T3, T4, T6, T7} utilisée par le modèle NARCM pour le mois de juillet.

Cette comparaison montre que les concentrations du DMS océanique provenant de la base de données de Kettle sont systématiquement plus grandes que celles observées à toutes les stations, sauf à la station T6. La même constatation est indiquée au tableau 3.1. Puisque durant la campagne

SABINA les valeurs actuels d'émissions de DMS sur tout le domaine ne sont pas connues, le modèle utilise comme approximation, les valeurs climatologiques de la concentration du DMS de Kettle (1999). Les valeurs issues de la base de données de Kettle (1999) à partir d'un nombre restreint de données historiques, sont considérées ici comme représentatives « de moyennes climatiques » pour le mois juillet selon chacune des provinces biogéochimiques. Ces différences expliquent en bonne partie les écarts entre les mesures de la campagne SABINA et le modèle NARCM. Ce biais systématique sera discuté dans l'analyse de nos résultats.

Elle nous indique quantitativement que la moyenne des valeurs de la base de données de Kettle et du modèle correspondent environ au double de la moyenne des observations prises durant la campagne SABINA.

Dans les prochaines étapes on tiendra compte de l'effet de cette surestimation reliant les processus de transformation chimique du DMS en SO₂ et de la production d'aérosols de sulfate.

Tableau 3.1 Comparaison entre les concentrations de DMS océanique observées et celles de la base des données de Kettle (1999).

Station	Concentration du DMS océanique observée (nmol/l)	Concentration du DMS océanique Kettle (nmol/l)	Écart entre les concentrations de DMS observées et celles de Kettle	Concentration Observée / Concentration simulée
L	2.8	4.1	1,3	0,7
T1	1.2	3.9	2,7	0,3
T2	1.2	3.9	2,7	0,3
T3	0.8	6.8	6	0,1
T4	2.1	7.7	5,5	0,3
T6	7.8	4.0	3,8	2,0
T7	1.3	2.9	1,6	0,4
Moyenne	2.5	4.8	2.3	0,5

3.2.6 Flux de DMS

La Figure 3.8 permet de comparer les moyennes mensuelles des variables suivantes : a) la vitesse du vent, b) la pression atmosphérique au niveau de la mer, c) le flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère et d) la concentration de DMS dans l'atmosphère. On remarque la consistance entre

le gradient de pression atmosphérique en b) et le vent quasi-géostrophique en a). D'après ces trois figures, on constate la corrélation entre l'intensité du vent, la concentration de DMS océanique de Kettle (Figure 3.7) et les régions d'émission du DMS atmosphérique en c). Cette figure illustre l'importance de la ventilation sur les régions à forte concentration de DMS océanique. Ce sont les régions où nous trouvons simultanément des valeurs maximales du vent et de fortes concentrations du DMS océanique, reliant ainsi les deux facteurs dominants d'émissions vers l'atmosphère. Ce résultat nous aidera pour l'analyse et la discussion des simulations.

Le panneau d) de la figure 3.8 montre la distribution de la moyenne mensuelle de la concentration du DMS atmosphérique résultante dans le domaine de l'expérience. Cette distribution est influencée à la fois par la production locale de DMS que nous venons de décrire et par la circulation de l'air transportant le DMS dans la couche limite et la basse troposphère. Pour investiguer davantage la relation entre les concentrations nettes et l'influence des autres facteurs, dont le vent, la concentration du DMS océanique et le transport par la circulation atmosphérique, nous réexaminons les relations entre la pression atmosphérique au niveau de la mer, le vent à la surface, le flux de DMS et la concentration du DMS atmosphérique.

La comparaison de ces quatre variables nous permet de visualiser plus complètement la relation entre la distribution de DMS et les variables moyennes contrôlant la concentration nette résultante sur notre domaine d'expérimentation. Nous remarquons à la figure 3.8c) qu'il y a production de DMS atmosphérique le long de la côte est de l'Amérique du Nord, à partir du nord de la Floride jusqu'à Terre-Neuve. Mais aussi, au centre de l'Océan Atlantique, au nord de la latitude 40°N et à l'est du Groenland. Ces flux du DMS émis dans l'atmosphère sont transportés dans la couche limite par la circulation atmosphérique et contribue à la composition de la zone de concentration maximum s'étendant du sud-ouest vers le nord-est dans le coin supérieur droit de la figure 3.8d). On doit donc considérer que ces régions sont affectées à la fois par les émissions locales et par les transports du DMS à grandes distances. Le parcours de la campagne SABINA coïncide en bonne partie avec la région où les concentrations de DMS atmosphérique évaluées par le modèle sont les plus importantes.

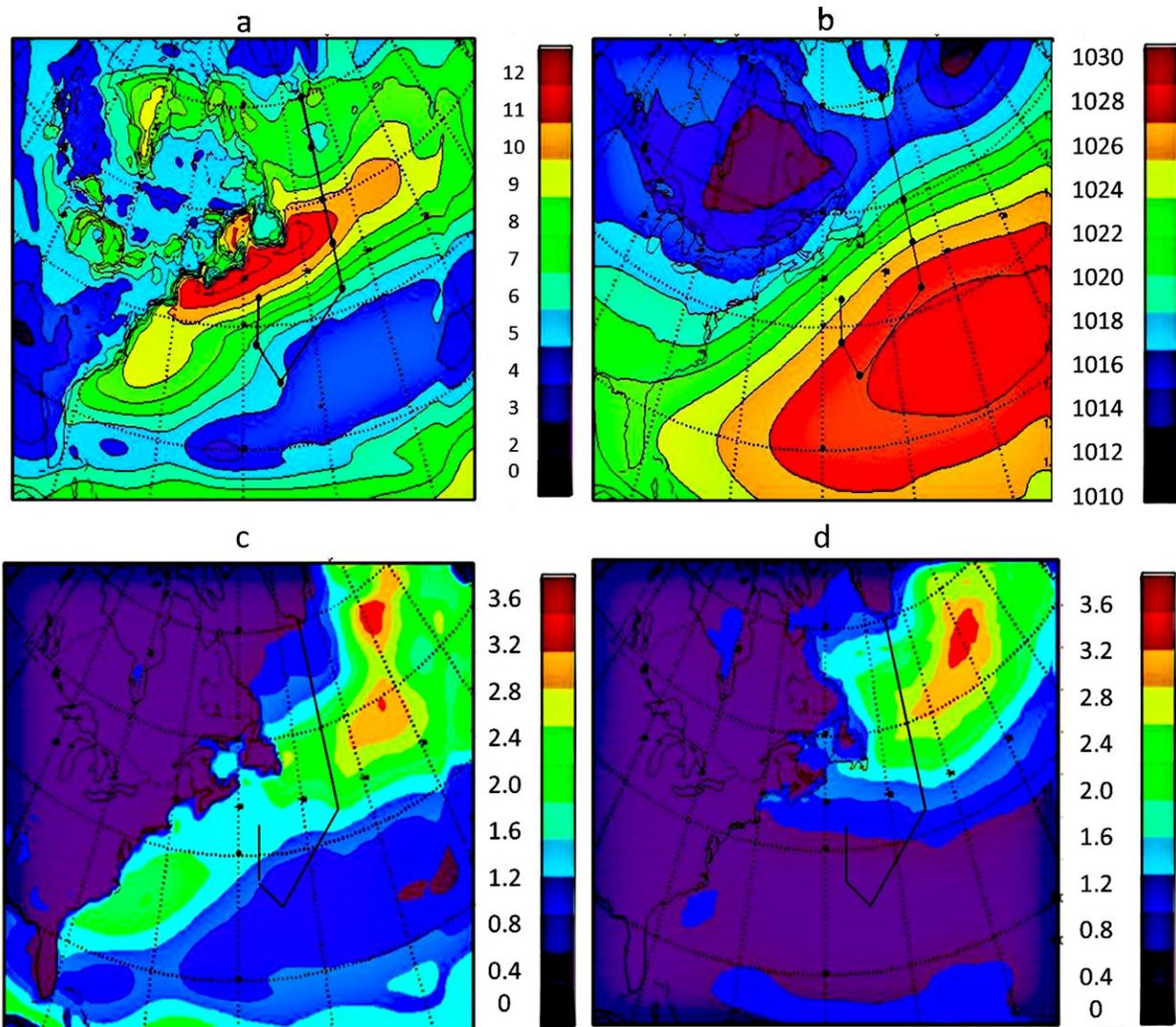


Figure 3-8 : Moyennes mensuelles du mois juillet 2003, pour : a) la vitesse du vent (m/s), b) la pression (hPa), c) le flux du DMS (ppbv) et d) le DMS atmosphérique (ppbv).

3.2.7 Vérification du DMS simulé

Comparons maintenant la concentration du DMS atmosphérique observé le long du parcours de SABINA avec celui simulé par NARCM et extrait du même parcours. La Figure 3.9 représente l'évolution de la concentration du DMS. On constate que la superposition de la simulation via NARCM et l'évolution des valeurs observées suivent les tendances générales observées de l'évolution du DMS atmosphérique, mais avec un biais de surestimation d'environ un facteur 2 en moyenne tout au long du parcours. Ce résultat est consistant avec la surestimation des émissions de la base de données de Kettle telle que présenté plus haut (Figure 3.7 et Tableau 3.1). On note

aussi que la variabilité observée est plus grande que celle simulée par le modèle. Ceci s'explique par un échantillonnage de la concentration du DMS à plus haute fréquence et à une échelle locale très fine, alors que la simulation représente des concentrations mensuelles sur des régions plus vastes correspondant à la résolution grossière du modèle (50 km). Comme dans le cas du vent, nous avons ici des différences d'échelles importantes pour lesquelles nous pouvons anticiper ces écarts de la variabilité entre les mesures et nos simulations.

Pour tenter de corriger ce biais systématique de la simulation, revenons à l'équation de l'émission du DMS (II.4) pour y appliquer une simple correction d'échelle par rapport aux données de Kettle, telle que

$$\Phi_{DMS} = K_w \times C_{DMSg}$$

où Φ_{DMS} est le flux de DMS, K_w la constante liée au vent et C_{DMSg} la concentration du DMS dans l'eau. L'influence de la concentration de DMS dans l'eau vient du fait que celui-ci est la seule variable indépendante dans l'équation ci-haut qui influence linéairement le flux de DMS. Ceci permet a priori d'ajuster la concentration de DMS océanique d'un facteur de correction correspondant à la surestimation moyenne de Kettle par un ajustement proportionnel sur la concentration du DMS atmosphérique. En somme, puisqu'il a eu une surestimation d'un facteur 2 dans le DMS océanique de Kettle, on applique aussi cette correction au DMS atmosphérique.

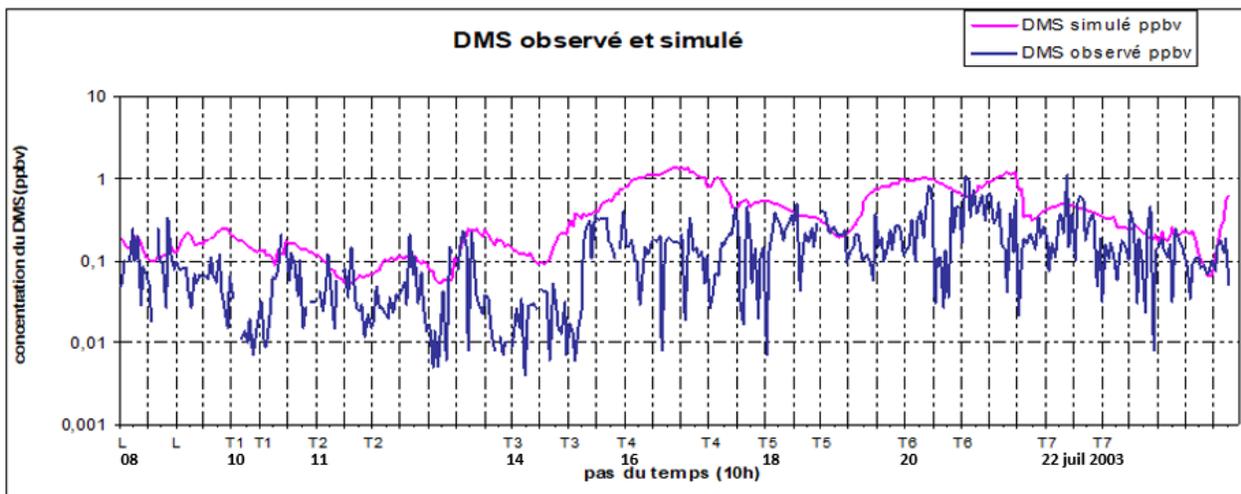


Figure 3-9 : Courbes de comparaison entre le DMS simulé et DMS observé le long du parcours de SABINA.

Donc, en supposant que ce biais systématique proviendrait essentiellement du flux d'émission et du biais des données de Kettle (Figure 3.7 et Tableau 3.1), pour les fins d'analyse, on applique une correction arbitraire de réduction de 51% (basé sur le Tableau 3.1) à la simulation. On prendra en compte cet ajustement arbitraire dans la discussion qui suit.

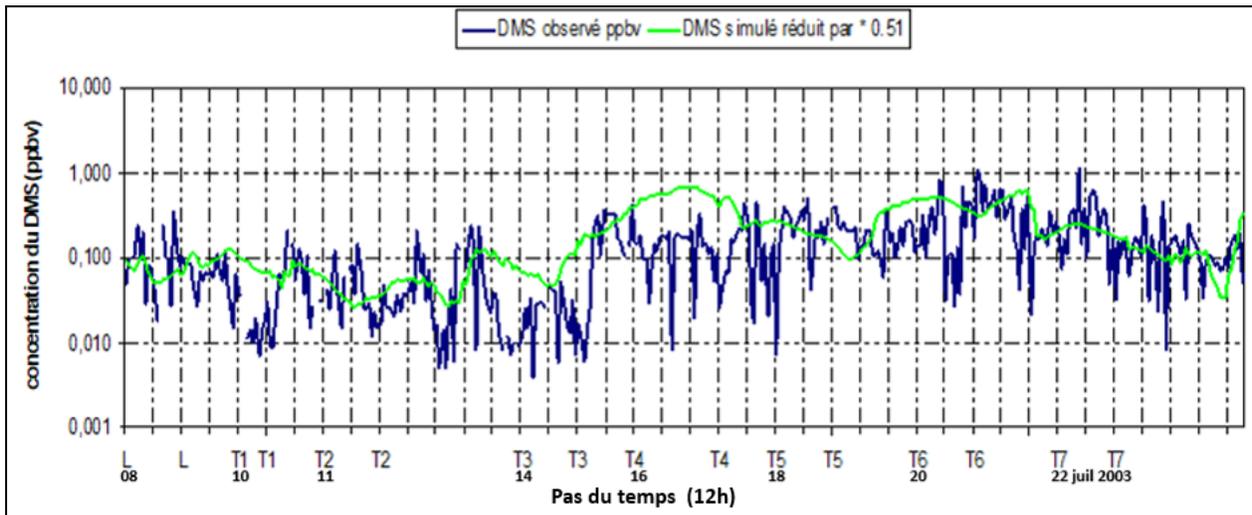


Figure 3-10 : Courbes des concentrations du DMS simulé réduit de 51% et du DMS observé durant le parcours de SABINA.

La figure 3.10 montre qu'une simple réduction proportionnelle aux concentrations de DMS océanique de Kettle et SABINA respectivement explique en grande partie la surestimation de la concentration de DMS du modèle NARCM. En comparant les trois cas (observations, simulation et simulation réduite) nous avons évalué l'effet de la concentration de DMS océanique sur la simulation de la concentration de DMS atmosphérique. Ce qui est confirmé aussi par La figure 3.11 qui illustre une comparaison des corrélations entre les concentrations du DMS observées et celles simulées pour les deux catégories originale et corrigée. On peut conclure qu'une partie importante du biais du modèle est attribuable aux données d'émission surestimées de Kettle. La correction par la réduction d'un facteur de 0.51 nous a révélé que NARCM est capable de simuler les concentrations moyennes du DMS dans la région du Nord Atlantique si on utilisait des données conforme aux observations sur tout le domaine océanique à la place des valeurs climatologiques. Or, on ne dispose pas de telles mesures d'émissions en temps réel et simultanées sur tout le domaine océanique, mais on a uniquement quelques mesures locales aux stations durant la campagne. De plus, rappelons que les processus de l'émission et de l'oxydation du DMS sont complexes et qu'ils

doivent être pris en considération en évolution spatiotemporelle dans toutes les étapes de la simulation.

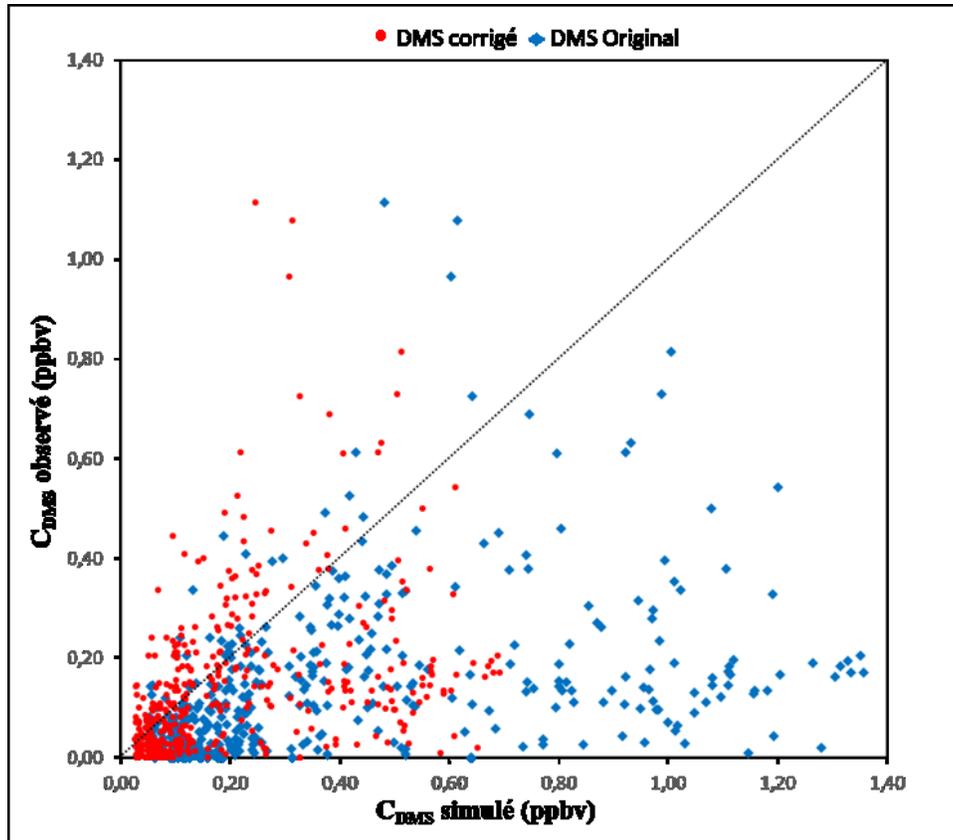


Figure 3-11 : Comparaison des 2 corrélations : les concentrations du DMS observées et simulées originales (points bleus) et les concentrations du DMS observées et simulées corrigé (points rouges).

3.2.8 Vent versus DMS

Pour investiguer les corrélations entre la vitesse du vent et les concentrations de DMS atmosphérique on a comparé l'évolution de ces deux composantes le long du parcours de la campagne SABINA. D'une part, la figure 3.12 représente la corrélation entre la vitesse du vent et les concentrations du DMS observés. D'autre part, la figure 3.13 représente les simulations de ces deux mêmes variables (la vitesse du vent et la concentration du DMS atmosphérique).

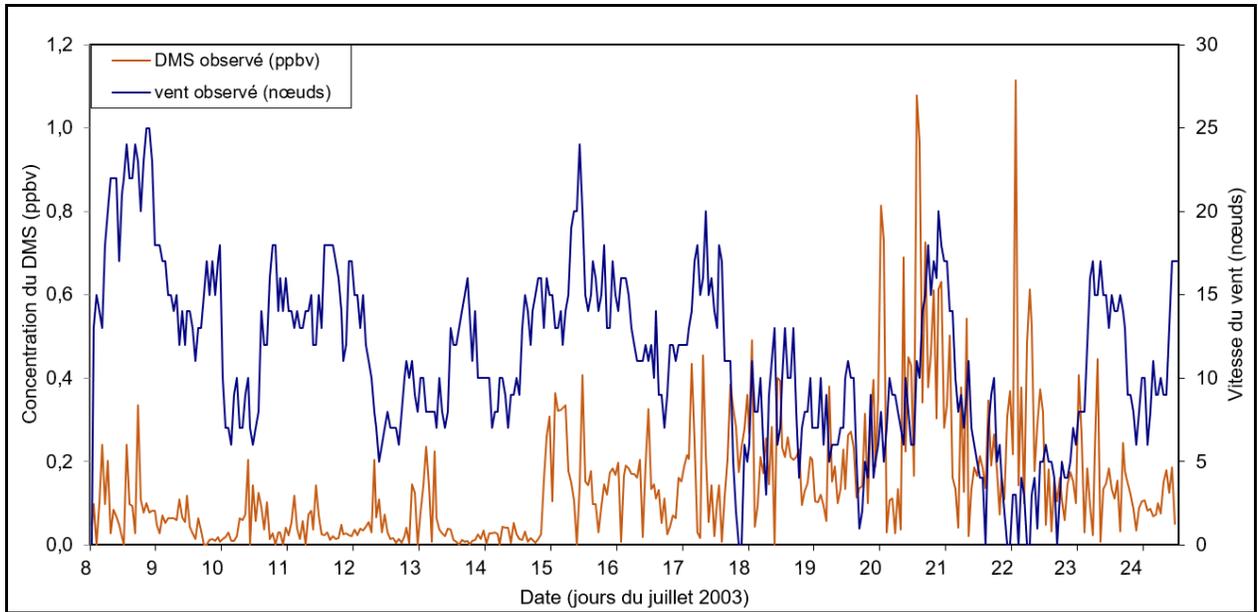


Figure 3-12 : L'évolution des résultats observés de la concentration du DMS atmosphérique (ppbv) et de la vitesse du vent (m/s) durant le parcours de SABINA.

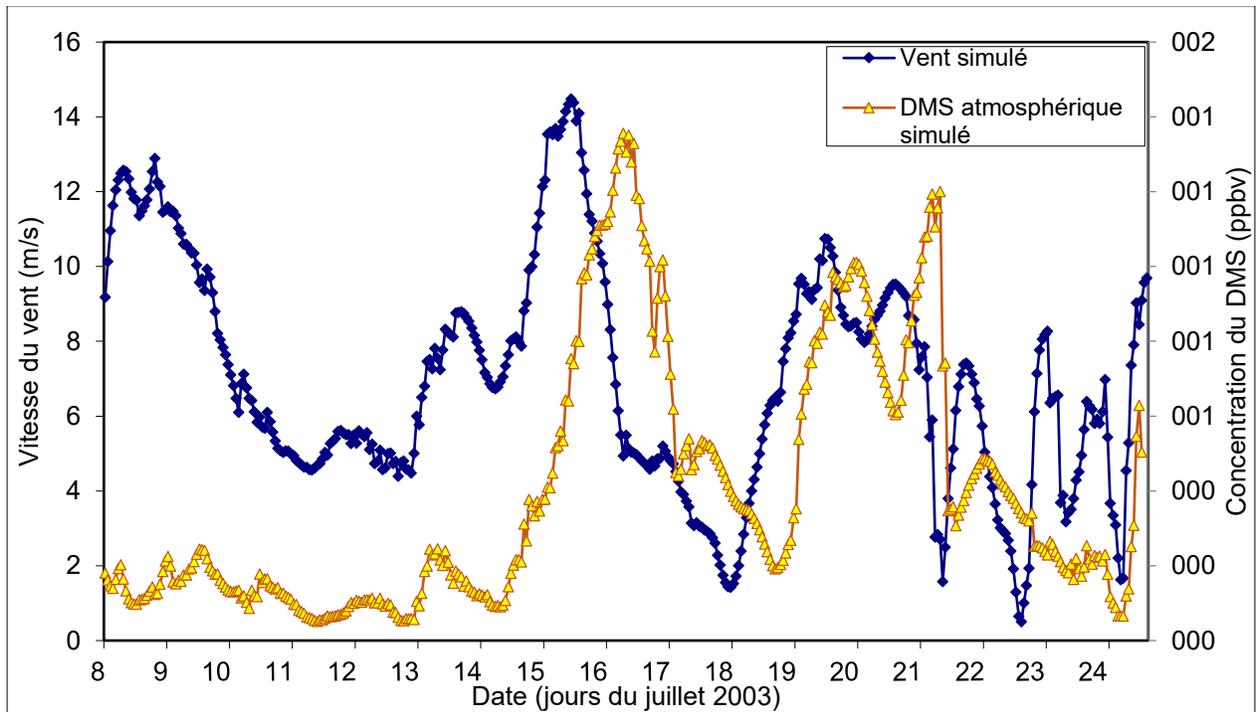


Figure 3-13 : Concentrations du DMS atmosphérique et la vitesse du vent simulées par NARCM durant le parcours de SABINA.

On note un fait intéressant pour la première moitié de la campagne, soit la période allant du 8 au 16 juillet 2003 (stations L, T1, T2 et T3). Tant dans l'observation que dans la simulation, les concentrations de DMS atmosphériques sont systématiquement plus faibles que durant la seconde moitié de la campagne. Ce détail intéressant suggère que l'efficacité d'émission de DMS n'est pas uniforme et qu'il pourrait y avoir des effets régionaux à investiguer davantage telle l'effet du continent ou du Golfe du Mexique. Ces considérations sont au-delà de nos objectifs, mais elles sont notables pour de futurs travaux de recherche.

En général, les deux analyses montrent que l'évolution et les variabilités des concentrations du DMS suivent celles des vitesses du vent. Elles montrent aussi que les simulations ressemblent aux observations, malgré quelques différences, si on tient compte du lissage du modèle dû à sa résolution (~50km entre deux points). Cela nous permet de conclure que, généralement, NARCM a bien simulé la production et l'émission du DMS en concordance avec le vent.

3.3 SO₂

Cette section, a pour objet la comparaison de l'évolution du dioxyde de soufre (SO₂) biogénique produit par DMS versus l'évolution du SO₂ total correspondant à la somme de la production d'origines biogéniques et anthropique. Deux comparaisons sont possibles. La première est la comparaison entre les moyennes mensuelles des simulations de SO₂ biogénique et SO₂ anthropique dans les deux dimensions, vertical et horizontal. La deuxième est entre le SO₂ simulé (anthropique et biogénique) et celles observées tout au long du trajet. Le but de ces comparaisons est de dégager l'influence de SO₂ anthropique sur la concentration totale observée tout en considérant les transports verticaux par la circulation et de déterminer dans quelle mesure le modèle permet de discriminer ces deux sources principales de SO₂, biogéniques et anthropiques.

Comme précédemment, voyons d'abord le comportement général de la concentration de SO₂ en moyenne mensuelle pour tout le domaine de l'expérience. La figure 3.14 est une comparaison entre les moyennes mensuelles des concentrations de SO₂ anthropique + biogénique versus SO₂ biogénique seul pour le mois juillet 2003. Les quantités les plus importantes de SO₂ anthropique se situent près des sources continentales dans les régions industrialisées au sud d'environ la latitude de 50°N, avec des pics de d'émissions au sud des Grands Lacs.

Le SO₂ anthropique est transporté selon la direction de la circulation générale, soit de ouest et sud-ouest vers l'est et le nord-est pour traverser la côte est et poursuivre son chemin sur l'océan Atlantique. La figure 3.14 montre clairement la dominance du SO₂ anthropique sur l'océan Atlantique plus près de la côte américaine, ainsi que l'effet des émissions de SO₂ à partir du continent vers l'océan et le rôle de la circulation atmosphérique dans le transport des gaz. Bien que la composante anthropique domine près de la côte continentale, on note que son effet s'atténue progressivement avec la distance de la côte et qu'en surface les composantes anthropiques et biogéniques se rapprochent considérablement en s'éloignant vers le milieu de l'Atlantique. Ceci permet d'expliquer la dominance du SO₂ biogénique loin du continent. Pour bien comprendre comment NARCM a simulé le transport dans le volume de l'atmosphère par le soulèvement du SO₂ dans les basses couches, on analysera son profil de concentration vertical à la station T4, suffisamment éloignée des côtes.

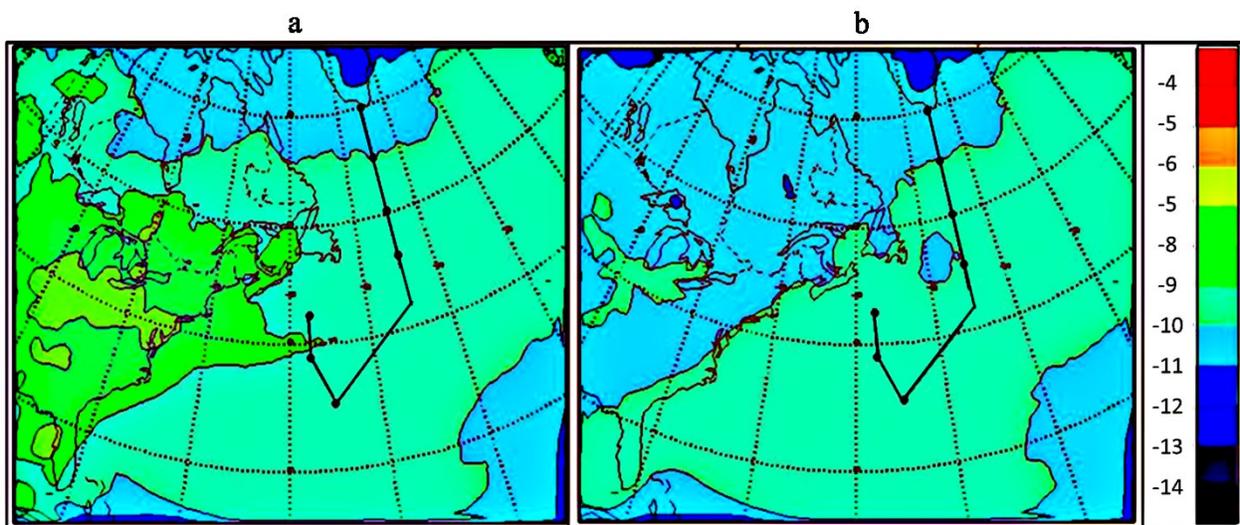


Figure 3-14 : Moyenne mensuelle (juillet 2003) de Log10 concentration de SO₂ simulée [ng/m³]

À titre de référence, la Figure 3.15 montre le profil vertical de la moyenne temporelle de la concentration de SO₂ total (anthropique + biogénique) et celui provenant uniquement du SO₂ biogénique pour la station T4. Ces profils simulés discriminants les composantes anthropiques et biogéniques nous montrent que le SO₂ d'origine anthropique est relativement plus abondant comparée à celle biogénique dans les niveaux au-dessus de la surface avec un maximum d'environ 4900 ng/m³ autour de 930 hPa ou environ 560 mètres d'altitude. La composante biogénique avec

un maximum de 1850 ng/m^3 demeure près de la surface de la mer, là où provient l'émission, alors que la composante anthropique dominante à la station T4, est soulevée par l'advection horizontale sur des surfaces isentropiques comme un traceur passif avec un peu plus du double (2,6 fois) de concentration en SO_2 . On note cependant, qu'en surface ces deux concentrations se rapprochent considérablement, soient 2300 ng/m^3 pour l'anthropique versus 1850 ng/m^3 pour le biogénique. Ce résultat nous permet de comparer les observations du SO_2 avec la simulation en surface et en altitude en support à l'interprétation des observations de SABINA.

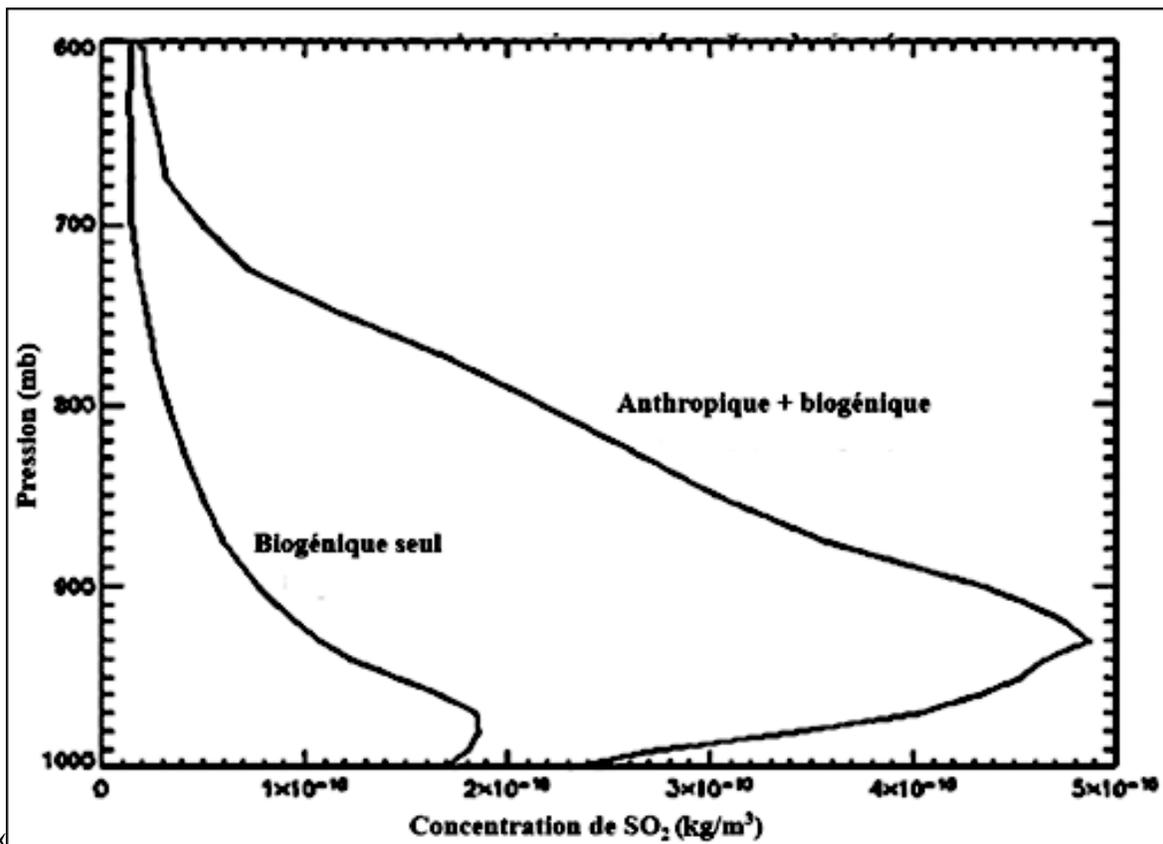


Figure 3-15 : Profil vertical de la moyenne mensuelle du juillet 2003 dans la station T4 du SO_2 (anthropique +biogénique) et du SO_2 biogénique.

En l'absence des mesures en altitude réalisées par SABINA du profil vertical de SO_2 et afin de vérifier si ce comportement de la simulation du SO_2 est en accord avec les observations de SABINA, on a effectué une comparaison des séries temporelles au niveau de la mer durant toute la campagne, là où les mesures d'observations et les calculs de simulations existent.

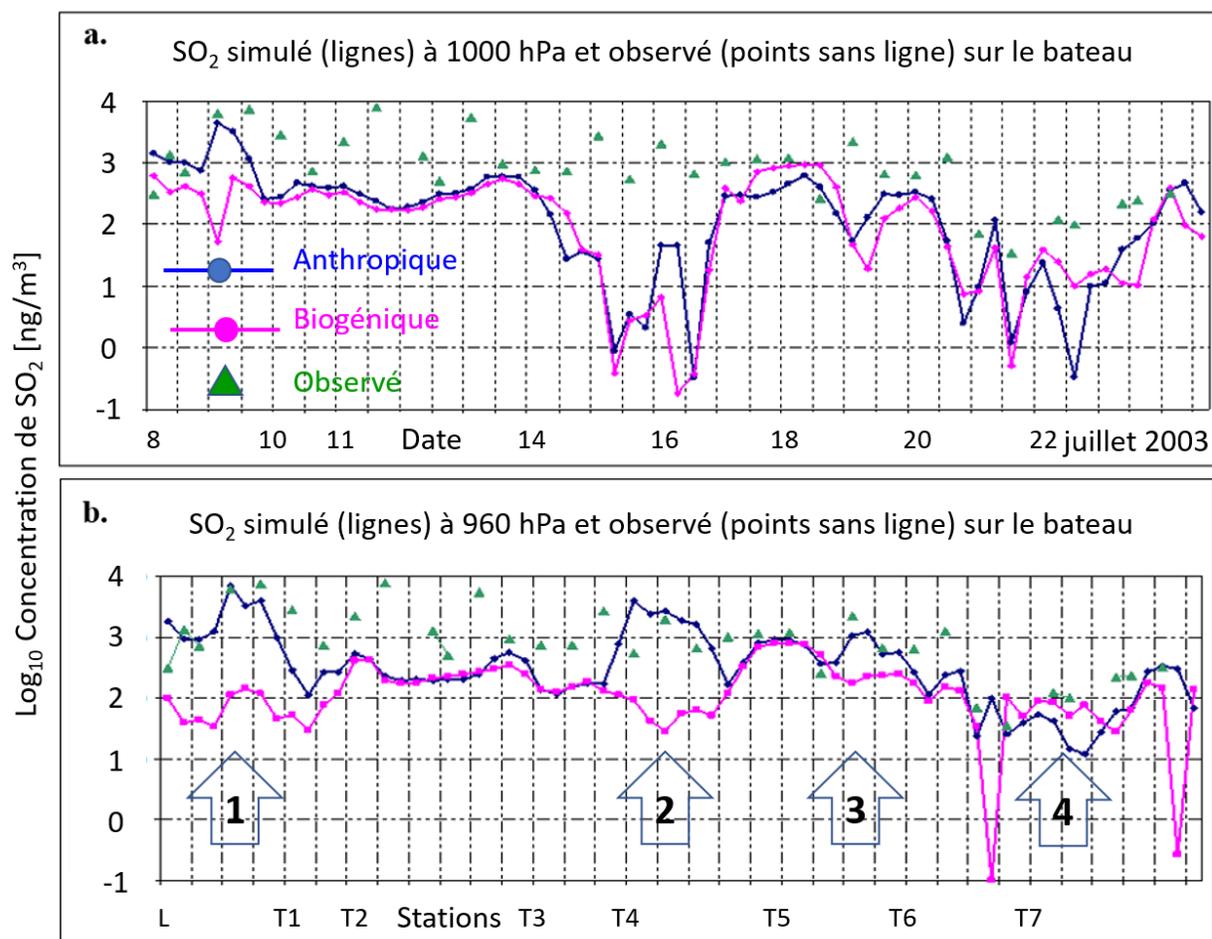


Figure 3-16 : Comparaison entre le SO₂ observé et simulé durant le parcours du SABINA : a) observations et simulations en surface (1000 hPa). b) observations en surface versus simulations au niveau 960hPa. Les flèches (1 à 4) indiquent des événements où la concentration simulée légèrement au-dessus de la surface (environ 400m) correspond mieux aux observations, indiquant la tendance du modèle à surélever le transport des aérosols anthropiques à partir du continent (Figure 3-15).

La figure 3.16 (a) compare tout au long du parcours de la campagne SABINA les mesures observées des concentrations de SO₂ prises en surface et celles correspondantes simulées par NARCM au même niveau. Les concentrations simulées varient en corrélation générale avec les valeurs observées, mais elles leur sont systématiquement inférieures.

L'examen de ces résultats en comparaison avec la figure 3.14 suggère que le SO₂ observé aux stations plus près du continent, de L à T4, durant la campagne SABINA est dominé par les effets anthropiques transportés par la circulation atmosphérique vers cette région. La deuxième constatation est que NARCM a sous-estimé le SO₂ total observé à la surface et en particulier dans la période du 14 au 17 juillet autour de la station T4 où on remarque des écarts d'environ 2700

ng/m³. Il apparaît donc qu'en particulier aux alentours de la station T4, le modèle a eu tendance à surestimer le soulèvement du SO₂ anthropique présenté à la Figure 3.15. Cette disparité est probablement reliée à des variations de l'état synoptique de l'atmosphère.

Deux cas se distinguent particulièrement, soient aux stations T2 et T4 (les 11 et 16 juillet 2003). En examinant les situations synoptiques correspondantes à la figure 3.1, on note que ces événements se produisent sous l'influence d'un système de haute pression avec un front stationnaire tout près, juste au nord des stations. Dans ces conditions, le modèle semble avoir favorisé un effet de subsidence associé à l'anticyclone qui domine la région, causant une augmentation de la stabilité statique de l'air près de la surface. Ceci a pour effet de limiter les mélanges verticaux de l'air et de maintenir les concentrations de SO₂ à plus basses altitude et de les associer principalement aux émissions locales, en surface de la mer. D'autre part, à T4 le profil de SO₂ total (biogénique et anthropogénique) à la figure 3.15 montre un maximum surélevé autour de 930 hPa, dominé par la composante anthropique, et une inversion du profil de concentration prononcé jusqu'en surface. Ce résultat est consistant avec la domination de la zone de haute pression intense dont le centre atteint 1031 hPa au sud-ouest de la station T4.

Pour vérifier cet effet de stabilité, on utilise les concentrations simulées en altitudes. En se basant sur les conclusions de l'analyse du profile vertical de la distribution du SO₂ on a réalisé une deuxième comparaison montrée à la figure 3.16(b). On y compare les observations des concentrations de SO₂ en surface aux simulations obtenues en altitude, au niveau 960 hPa. On constate que la simulation autour de 960 hPa sur l'ensemble de la période expérimentale correspond mieux aux observations en surface. C'est particulièrement le cas à la station T4 où la composante anthropique augmente de 2 à 3 ordres de grandeur pour donner un résultat très proche des valeurs observées. De plus, on note un écart résiduel important, de plus d'un ordre de grandeurs, entre les composantes biogéniques et anthropiques.

Il apparaît donc, ici, que le modèle surestime l'effet de la stabilité statique de couche limite atmosphérique et durant son transport à grande distance, il a surestimé le soulèvement des panaches d'émissions de SO₂ continentaux. Ceci est corroboré par l'étude des rétrotrajectoires. À la figure 3.2 pour la station T4 montre l'effet de la subsidence dans les premiers 500 mètres au-dessus de la surface. La tendance de soulèvement du panache continental de SO₂ est observée aussi dans les

secteurs marqués par des flèches 1, 2, 3 et 4 sur la figure 3.16(b) où la simulation du modèle en altitudes à 960 hPa est beaucoup plus proche des valeurs observées sur le bateau.

Il semble donc que l'écart entre la simulation et l'observation soit en partie expliqué par un excès de soulèvement des émissions anthropiques et un déficit du mélange vertical de SO₂ associé à la composante anthropique en altitude, causant des écarts substantiels par rapport aux observations. Ayant déterminé que le modèle a tendance à trop maintenir le SO₂ en altitude, on constate que la concentration totale de SO₂ (biogénique + anthropique) simulée à 960 hPa est plus représentative des valeurs observées durant la campagne. Ce résultat nous a permis de partiellement réconcilier les simulations et les observations le long du parcours de la campagne SABINA. Malgré la tendance de soulèvement et le déficit dans le mélange vertical du modèle, notre étude suggère d'inclure la contribution des transports de SO₂ anthropique du continent vers le nord-est de l'océan Atlantique afin d'expliquer les observations durant SABINA. On conclut ainsi que la composante anthropique est importante pour l'interprétation des résultats de la campagne.

3.4 Les particules du sulfate

3.4.1 Comparaison entre NARCM et SABINA

Le traitement des particules du sulfate est beaucoup plus complexe que celui des gaz comme le SO₂, car il implique une physique des aérosols très élaborée et traité approximativement par le module CAM (Gong et al, 2003) dans NARCM. Dans ce modèle, on ne traite pas uniquement la concentration totale de matière aérosol, mais également la distribution de tailles des particules, les distributions verticales et régionales ainsi que leur origine, soit biogénique et anthropique. Les mesures effectuées durant SABINA nous permettent d'investiguer plusieurs aspects de ces propriétés.

La comparaison effectuée, à la Figure 3.17, entre le sulfate total (toutes les tailles) simulé (anthropique et biogénique) par NARCM et celui observé par SABINA montre que la simulation est conforme aux observations sauf pour la station T2 où, comme on l'a montré précédemment, NARCM sous-estime les concentrations avec un écart qui peut atteindre 2750 ng/m³. On peut expliquer en partie cette écart par la sous-estimation de la variabilité de la vitesse du vent et l'absence des rafales dans NARCM, un déficit particulièrement marqué aux alentours de la station

T2 (figure 3.4). On rappelle que le vent influence fortement l'émission, le mélange turbulent verticale et le transport du sulfate sur l'océan.

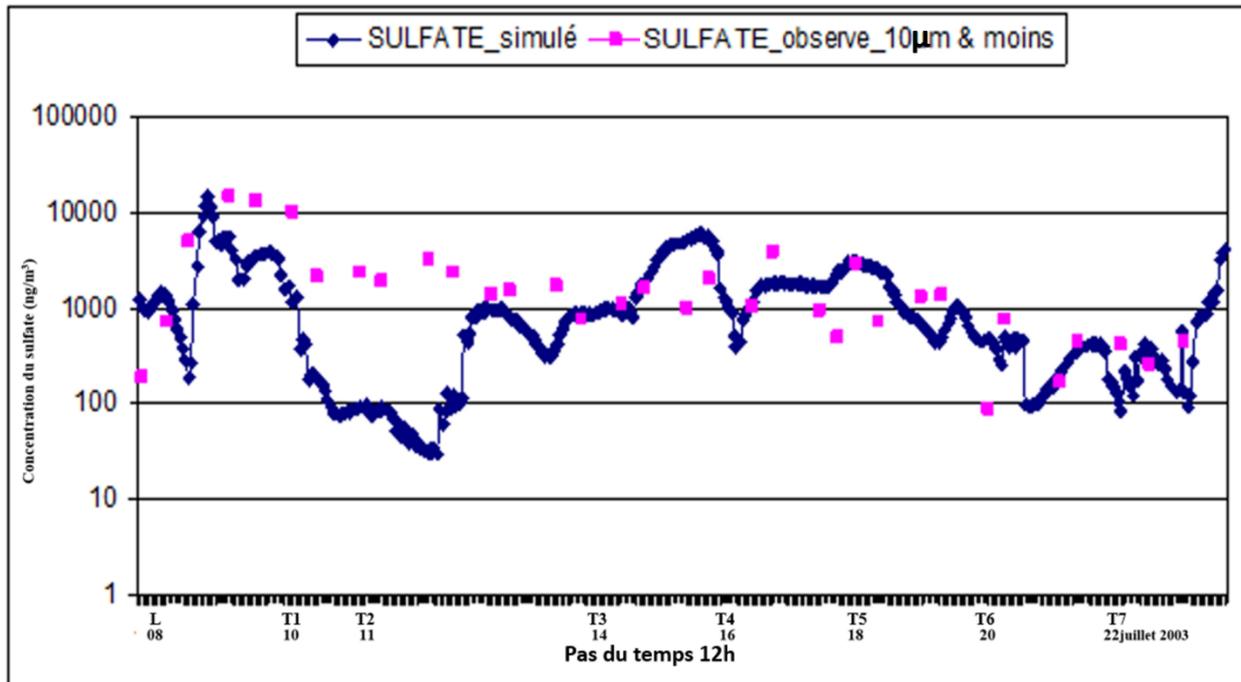


Figure 3-17 : Comparaison entre le sulfate total (anthropique + biogénique) simulé (bleu) et celui observé (magenta).

Puisque la simulation coïncide en général avec les observations on utilise NARCM pour examiner plus en détail la répartition régionale du sulfate sur l'Océan Atlantique. On peut ainsi comparer les concentrations respectives des particules de sulfate d'origine biogénique au sulfate anthropique. Puis on compare les tailles des particules de sulfate pour identifier les composantes dominantes. Enfin, on évaluera la capacité du modèle NARCM à bien simuler la répartition des tailles des particules de sulfate sur le parcours de SABINA en le comparant aux mesures.

Pour ce faire, nous procéderons par étapes successives. Premièrement, on compare les moyennes mensuelles du mois juillet du sulfate biogénique avec celles de la concentration totale (anthropique + biogénique). Deuxièmement on analyse la distribution et le profil verticale du sulfate à une station témoin (station T3). Troisièmement, on examine l'évolution du sulfate par des séquences de données prises tout au long du parcours durant la période allant du 09 au 12 juillet 2003. Quatrièmement, on évalue les distributions des tailles du sulfate à travers le parcours en comparant

la simulation NARCM aux données de SABINA. Finalement, on compare la distribution des tailles du sulfate sur le parcours simulé par NARCM pour interpréter l'évolution des processus liés aux particules aérosol, soient de l'émission du sulfate anthropique, son transport, sa transformation jusqu'à sa déposition l'éliminant de l'atmosphère.

3.4.2 Moyenne temporelle régionale du sulfate en surface

D'après la figure 3.18, on remarque que les particules de sulfate anthropique sont transportées du continent vers l'est de l'océan en suivant la circulation atmosphérique dominante d'ouest en est, tout en recoupant le trajet de SABINA. On note également que selon NARCM, la station T2 est hors du maximum de concentration associé au transport d'aérosols qui peut influencer les comparaisons entre les stations plus au nord, dont L, T1 et T3 qui se trouve plus près du maximum de transport des aérosols continentaux et au cœurs de la zone de production biogénique.

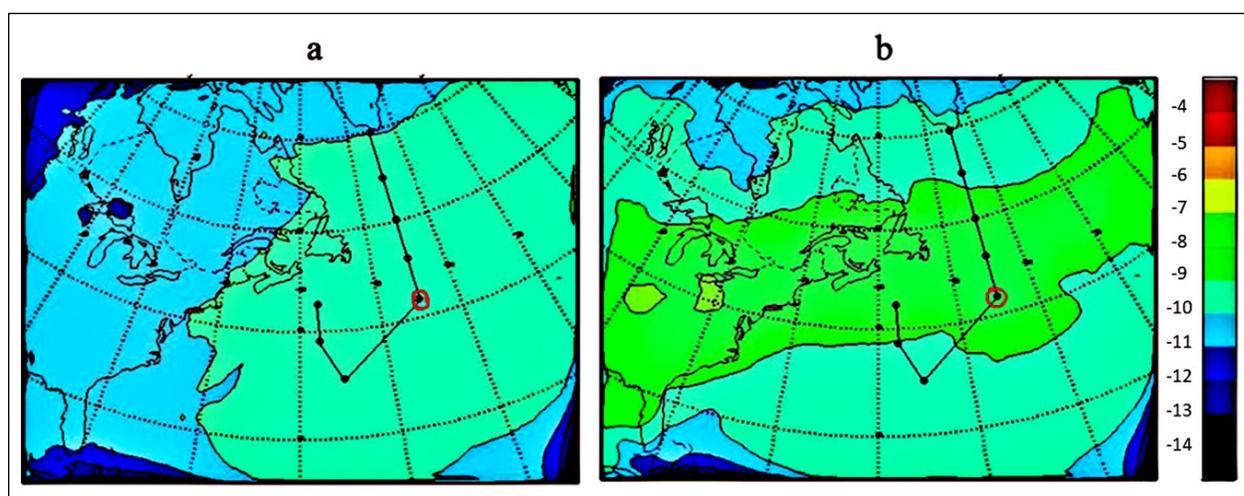


Figure 3-18 : Moyenne mensuelle (juillet 2003) du Log10 concentration [ng/m3] du sulfate total simulée par NARCM : a) Sulfate anthropique + biogénique b) Sulfate biogénique seulement.

3.4.3 Profil vertical à la station T3

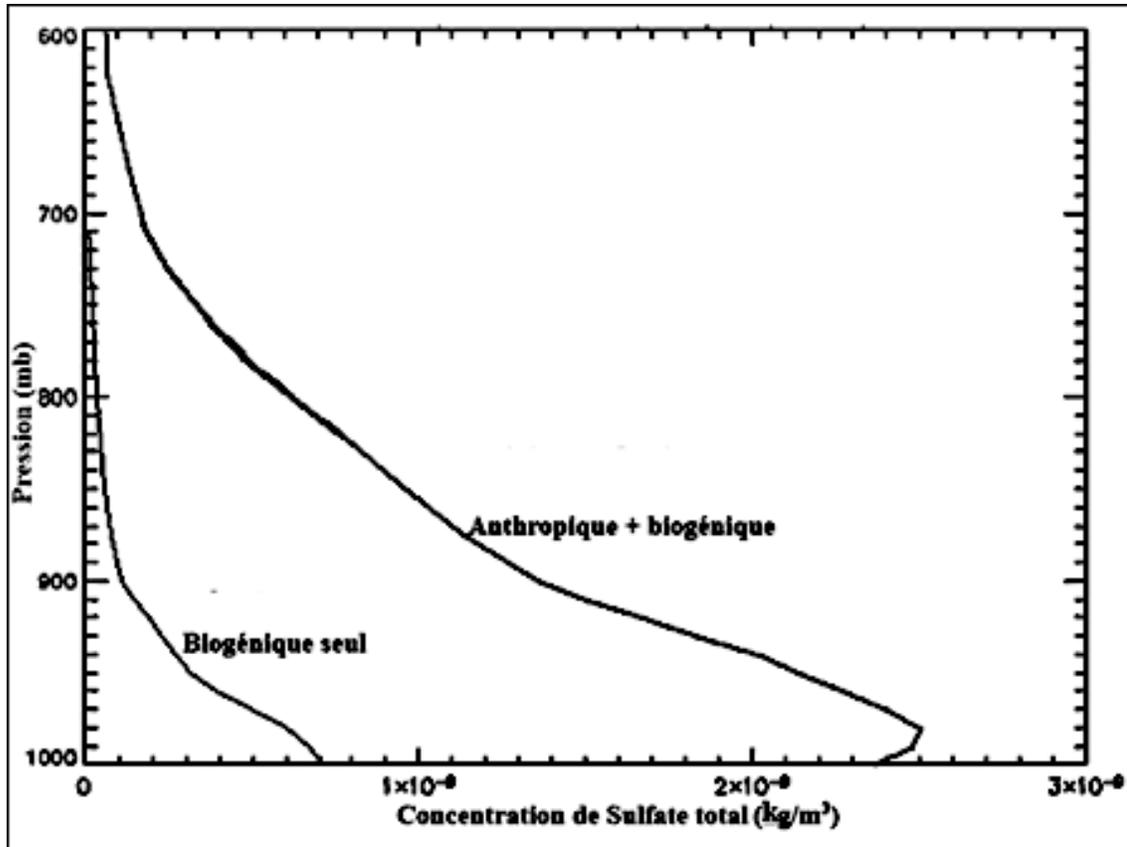


Figure 3-19 : Profil vertical moyen du Sulfate pour la station T3 : biogénique et anthropique + biogénique.

En comparant les profils verticaux du sulfate total (anthropique + biogénique) et celui du biogénique seul, à la figure 3.19, on constate la dominance du sulfate total d'origine anthropique et biogénique de 2400 ng/m^3 sur le biogénique seul au niveau de la surface (1000 mb) avec une valeur de 700 ng/m^3 , et une augmentation jusqu'à 2500 ng/m^3 en altitude, au niveau de pression 980 mb (environ 300m). En s'éloignant de la surface, la composante biogénique atteint approximativement 100 ng/m^3 alors que la somme des 2 composantes est de 1300 ng/m^3 au niveau de 900 mb (environ 780 m d'altitude).

En somme, comme dans le cas du SO_2 , on a une forte contribution de la composante anthropique aux particules de sulfate provenant du continent de plus d'un facteur 3, soit encore plus important que l'écart des contributions respectives en phase gazeuse.

3.4.4 Distribution de tailles de particules

Pour bien représenter les aérosols et leurs transformations chimiques, dont l'oxydation du SO₂, et physiques, dont les transports, le soulèvement et la déposition, NARCM utilise 12 catégories de tailles de particules aérosol tandis que SABINA n'en utilise que 6 catégories pour la mesure. Et cette répartition-classification des tailles est différente entre NARCM et SABINA comme le montre le tableau 2.7. Donc, pour comparer nos résultats issus de la simulation aux observations, nous avons dû effectuer une interpolation linéaire des concentrations de particules sur distributions de tailles de NARCM pour qu'elles puissent coïncider avec celles de SABINA.

Ainsi, et comme expliqué au paragraphe 2.6.3 nous avons cumulé, pour le sulfate seulement, les trois intervalles de tailles correspondants aux 3 modes de distributions standard qui sont $D < 0.49 \mu\text{m}$, $0.49 < D < 0.95 \mu\text{m}$ et $D > 0.95 \mu\text{m}$ pour établir une base de comparaison uniforme entre les simulations de NARCM et les observations en surface de SABINA.

Les simulations NARCM (voir figure 3.20-a) suivent relativement bien l'évolution des observations SABINA pour les petites tailles où le sulfate marin est généralement dominant. On note pour ces particules fines, les concentrations de sulfate total (anthropique + biogénique) et le biogénique près du continent des stations L à T3, la contribution anthropique domine et qu'elle est essentielle pour expliquer les observations. C'est particulièrement le cas aux alentours de la station L, plus près du continent et où l'on trouve que le sulfate anthropique dépasse la partie biogénique d'environ un ordre de grandeur. Cette constatation nous permet de conclure que pour les petites tailles de particules de sulfate la distance au continent est importante. En effet, en s'éloignant du continent on observe progressivement une domination de la composante de sulfate biogénique émise par l'océan. En particulier, pour les stations T3 à T7, la composante biogénique des particules d'Aitken explique mieux les observations dans cette catégorie de tailles. Puisque les particules fines sont reconnues pour leur courte durée de vie dans l'atmosphère en migrant par coalescence et par condensation de gaz à particules vers un mode d'accumulation autour de $0.2 \mu\text{m}$, les particules fines ont tendance à s'adapter rapidement aux conditions locales d'émission. Ainsi, la discrimination entre les types anthropiques et biogéniques est bien marquée dans ce régime de

particules fines. Ici, le modèle et l'observation concordent bien avec la théorie dynamique des particules aérosols.

Pour la partie (b), les tailles (0.49-0.95 μm) plutôt sujettes à une production mécanique associée localement au vent et aux vagues sur la mer. En comparant ces courbes à la figure 3.20b) on constate que le sulfate total (anthropique + biogénique) simulé suit en général mieux la tendance des observations, bien qu'il sous-estime généralement leur concentration, particulièrement aux stations T2 et T7 où le modèle produit très peu de sulfate en surface, en partie associé à un déficit du vent et de son interaction avec les vagues en surface. Clairement, la composante biogénique n'explique aucunement les concentrations observées dans ce mode de grosses particules. En effet, théoriquement, la production de particules par conversion du DMS en phase gazeuse aux particules aérosol prend sa source que dans les particules fines examinées précédemment (figure 3.20a). Ces résultats sont donc consistant avec l'interprétation physique de la dynamique des particules aérosol.

On constate encore que la composante biogénique est loin d'être comparable aux observations suggérant que la composante du sulfate anthropique est essentielle pour interpréter les mesures de SABINA. C'est surtout le cas des particules fines aux stations proches du continent (L, T1, T3 et T4). Ces constatations nous indiquent que ces particules de tailles [0.49-0.95] (μm) sont aussi transporter sur de longues distances du continent vers le milieu et l'est de l'océan, le long du parcours du bateau. En dépit de l'augmentation importante associée à la composante anthropique, on note tout de même une sous-estimation systématique des concentrations d'environ un ordre de grandeur de 10 sur la majeure partie de la trajectoire pour les particules de tailles moyennes. Il est possible que les particules observées au-delà de 0.49 μm soient associées à d'autres composantes, dont le sel de mer ce qui aurait pour effet d'augmenter la masse totale et pourrait expliquer les écarts entre la simulation et l'observation. Une étude plus approfondie de la composition des grosses particules observées serait nécessaire.

Cet écart est encore plus marqué pour la catégorie des particules ($D > 0.95 \mu\text{m}$), comme on voit dans la partie (c) de la Figure 3.20. Ce comportement est associé à la production essentiellement mécanique, par le vent et l'écume de mer, produisant de grosses particules de sel de mer auquel une composante de sulfate marin serait associée par mélange interne. La majorité des ions de sel de mer se trouvent dans la catégorie de plus grande taille ($D > 0,95 \text{ mm}$) (Seguin et al 2011). Cette

gamme de taille correspond aux aérosols grossiers primaires produits localement à partir de l'interaction du « stress » du vent avec la surface de l'océan (Lewis et Schwartz, 2004). La figure 3.20c) permet d'évaluer d'une manière approximative la concentration du sulfate lié au sel de mer « SS sulfate » (en anglais, *sea salt sulfate*) pour les très grosses tailles de particules. Dans ce panneau la concentration des grosses particules anthropiques commence par 100 ng/m^3 pour atteindre 1000 ng/m^3 à côté du continent pour descendre vers des valeurs presque négligeables en s'éloignant de la cote. Par contre les concentrations observées restent aux alentours de 1000 ng/m^3 le long du parcours, sauf à la station T7 où elle diminue vers les 100 ng/m^3 . Ici la très grande différence entre nos simulations et l'observations par environ 2 ordres de grandeurs, n'est pas expliquée. En effet, généralement les concentrations de particules de ($D > 0,95 \text{ mm}$) chutent rapidement avec l'augmentation des tailles, sauf dans des cas particuliers de vents très intenses. Un doute persiste donc dans ce cas particulier tant pour l'interprétations des mesures que pour leurs simulations par le modèle. Quoi qu'il en soit, puisque la majeure partie des particules de sulfate proviennent de conversions des gaz (SO_2 et DMS) à particules essentiellement dans les régimes de petites particules, la conclusion principale de notre étude montrant l'importance relative de la contribution anthropique aux observations durant la campagne SABINA demeure inchangée.

3.4.5 Évolution du spectre de tailles des particules de sulfate

Afin de compléter notre analyse de l'évolution spectrale de tailles des particules et pour conclure notre étude sur la simulation du sulfate avec NARCM, à la figure 3.21, on a réalisé une comparaison détaillée de la distribution simulée pour toutes les catégories de tailles inférieures à $0.49 \text{ }\mu\text{m}$ du sulfate anthropique (a) et biogénique (b) le long du parcours SABINA et près de la surface. Les particules ($D > 0.49 \text{ }\mu\text{m}$) sont ignorées ici puisqu'elles ne sont pas représentatives de la formation d'aérosol à partir des gaz précurseurs (DMS et SO_2). De plus, on a constaté à la section précédente que ce régime de particules ($D > 0.49 \text{ }\mu\text{m}$) avait des problèmes associés tant au modèle qu'aux observations. Pour cette raison on ne considère que le domaine des plus petites tailles. Il est représentatif de la production d'aérosols marins à partir du DMS biogénique et du SO_2 anthropique, car les courts temps caractéristiques pour la formation et la coagulation allant de l'ordre de la seconde à quelques jours dominant la composition du sulfate non liée au sel de mer.

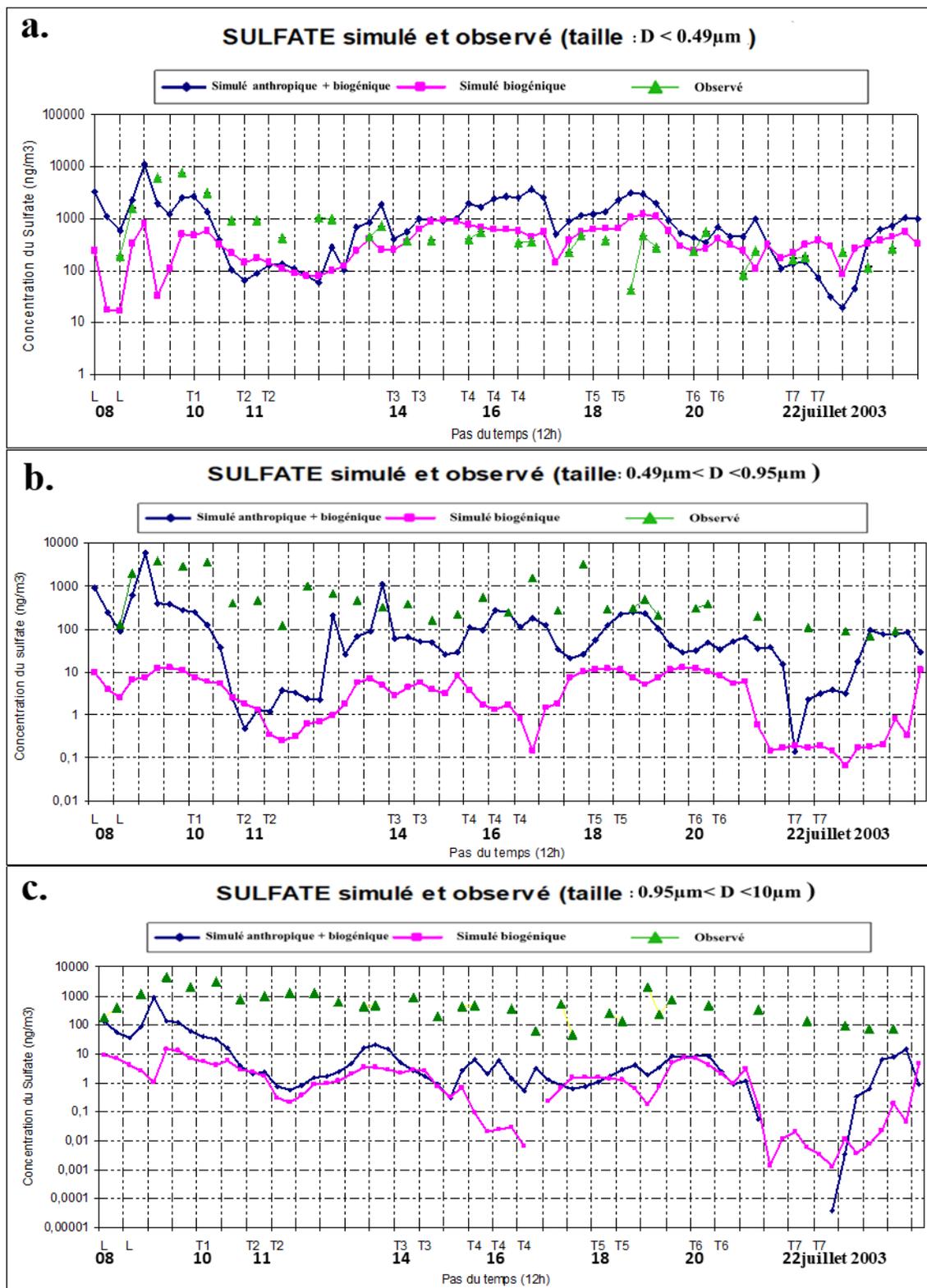


Figure 3-20 : Comparaison entre les concentrations de sulfate simulées par NARCM et celles observées durant la campagne SABINA au niveau de la surface pour les intervalles de tailles : a) $D < 0.49$, b) $0.49-0.95$ et c) $0.95-10 \mu\text{m}$.

Ces courbes représentent la concentration partielle et totale de chaque catégorie de taille des particules de sulfate anthropique et biogénique le long du parcours de la campagne SABINA tel que calculé par le modèle. Elles nous donnent une représentation comparative détaillée sur l'origine, l'évolution et la formation des aérosols biogéniques et anthropiques le long du parcours. Elles portent la signature du cycle de vie des particules de leur formation à l'accumulation vers les particules de tailles moyennes et de longues périodes temporelles, en limitant les processus de sédimentation et de déposition des particules géantes.

En comparant les spectres selon l'origine, nous constatons la domination des particules dont la taille est centrée sur le mode d'accumulation ($D \sim 0.1$ à $0.3 \mu\text{m}$) et portée principalement par les traceurs 20 et 21. Le domaine des particules fines ($D < 0.08$; traceurs 17, 18 et 19) là où les particules issues des gaz précurseurs à l'échelle moléculaire ($D < 0.01 \mu\text{m}$) subissent une croissance rapide (de quelques minutes à quelques heures) par condensation et coagulation vers le mode d'accumulation ($D > 0.08 \mu\text{m}$) où elles perdurent pour plusieurs journées, voir plus d'une semaine. En conséquence, celles-ci sont ainsi transportées sur de très grandes distances et dominent la concentration du spectre de tailles des aérosols. Conformément à la théorie de la dynamique des aérosols (Friedlander, 2000) le modèle NARCM reproduit bien l'évolution temporelle de particules, tant pour les composantes anthropiques que biogéniques.

On note également, que près de cote américaine, aux stations L et T1, les concentrations dans le mode d'accumulation provenant de la composante anthropique dominant sur celle d'origine biogénique par un ordre de grandeur, conformément à notre conclusion précédente à partir des concentrations totales (Séguin et al., 2010; Seguin et al., 2011). Ici on confirme que ce comportement est essentiellement causé par la catégorie de tailles dans le mode d'accumulation à longue portée temporelle. Par ailleurs, aux stations à plus grandes distances (T2 à T6) les concentrations du mode d'accumulation des deux sources se rapprochent, voir même que la composante biogénique domine occasionnellement (T7). À l'échelle de l'océan, les particules fines ($D < 0.08 \mu\text{m}$) sont pratiquement négligeables. Enfin, la station T7, le 22 juillet, près du Groenland s'avère être l'endroit où la production de sulfate biogénique a été la plus intense, dominant largement celle d'origine anthropique. Ceci met encore en évidence l'importance d'inclure l'apport des sources anthropiques dans l'analyse des résultats de SABINA.

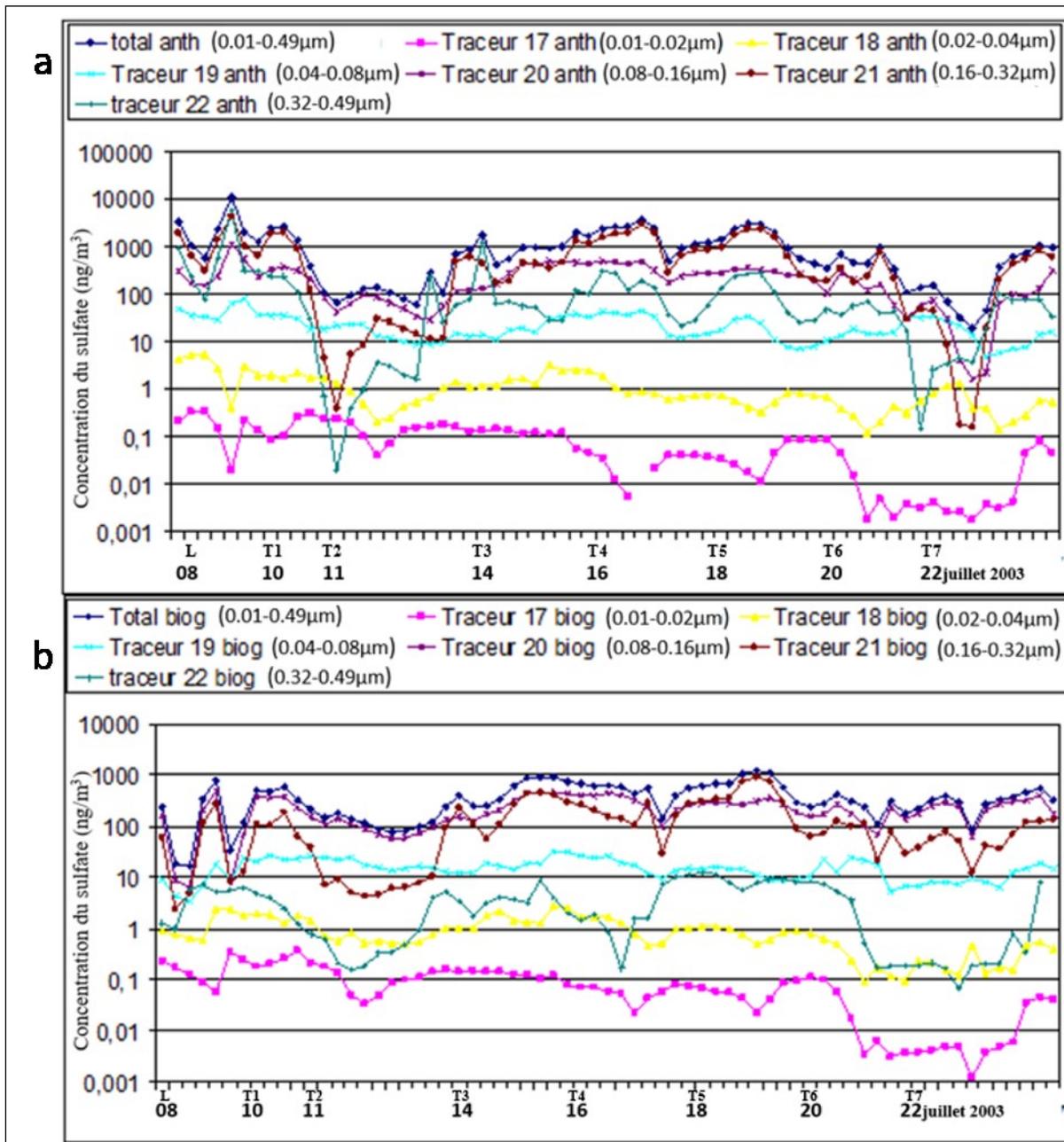


Figure 3-21 : Spectres de tailles du sulfate (traceurs 17 à 22) le long du parcours de SABINA : a) le sulfate anthropique + biogénique (anth) et b) le sulfate biogénique (biog).

La similitude des deux figures dans la limite des particules fines indique que la production de particules d'Aitken, très petites ($D < 0.49 \mu\text{m}$) à des temps caractéristiques courts de l'ordre de minutes, est principalement associé au sulfate de DMS marin. On note également aussi que la concentration au centre du mode d'accumulation (la courbe brune du Traceur 21 (0.16-0.32 μm))

augmente graduellement entre les stations L et T4. Ceci est conforme avec le vieillissement normal du spectre de taille où les particules fines ont tendance à migrer vers le mode d'accumulation, là où le temps caractéristique d'existence des particules devient de l'ordre de la semaine.

C'est aussi ce type de spectre de taille qu'on trouve dans les régions isolées des sources et dominées par des transports d'aérosols sur de longues distances. On retrouve ces conditions particulièrement dans l'Arctique et dans la basse stratosphère dominée par des spectres étroits d'aérosols âgés. Enfin, un autre élément intéressant de la Figure 3.21 supportant cette hypothèse est l'augmentation progressive de l'écart des courbes de concentrations entre les petites (0.01-0.02 μm) et les grandes particules (0.32-0.49 μm). Effectivement, la baisse de concentration des particules d'Aitken montre un rétrécissement des distributions de tailles en même temps que le mode d'accumulation se consolide.

Ces résultats montrent que la signature spectrale de l'évolution des particules de sulfate est conforme aux attentes théoriques de la transformation et de l'historique des aérosols de sulfates en milieu marin. Ils permettent de mieux interpréter les observations réalisées durant la campagne SABINA. L'analyse de tous les résultats qu'on a obtenus nous confirme ainsi l'avantage d'utiliser des simulations par des modèles (de Leeuw et al., 2011 et références à l'intérieur) pour mieux comprendre les détails des étapes que l'aérosol a suivi dès son émission et sa nucléation jusqu'à son accumulation de particules moyennes (0.16-0.32 μm) vers leur disparition par nucléation de gouttelettes et de cristaux de glace dans les nuages et leur précipitation.

CONCLUSION

Ce mémoire présente une étude d'évaluation des propriétés des sulfates atmosphériques formés et transportés sur l'océan Atlantique telle qu'observée durant une campagne de mesures intensive. L'étude vise d'une part à vérifier la fiabilité et la capacité du modèle NARCM à simuler les concentrations des substances DMS, SO₂ et de sulfate par rapport à celle mesurée lors de la campagne SABINA en fonction des conditions météorologiques dans la région Nord-Atlantique durant le mois juillet 2003. D'autre part, notre étude a pour objectif d'approfondir l'analyse des données à l'aide de la théorie soutenue par le modèle atmosphérique. Cette étude a donc été faite à l'aide d'une analyse comparative entre les résultats observés et ceux simulés.

Les résultats comparés ont montré que dans l'ensemble les simulations ont suivi les mesures des observations aux stations et durant le parcours de la campagne malgré qu'il y a eu de nombreux biais dans le modèle qui ne parvient pas à capturer quelques observations, en particulier les particules les plus grandes et qui sont sous-estimées. Cette validation est conditionnée par des ajustements raisonnables à apporter au modèle pour chaque substance. Les résultats montrent que pour le DMS atmosphérique, la surestimation totale des quantités simulées est principalement dû à la surestimation des données climatiques du DMS océanique de Kettle (1999) qui ont été approximées par des moyennes mensuelles sur une base climatologique distincte de la situation en juillet 2003. Pour le SO₂, le modèle NARCM a sous-estimé les concentrations comparées à celles des observations en surface, mais ses données ont été plus réalistes ont été obtenues à une altitude de pression de 960 mb. La cause probable est la surestimation du soulèvement du SO₂ et le mélange déficient de cette substance dans la couche limite par le modèle associé potentiellement à la difficulté de bien traiter la stabilité statique de la couche limite planétaire. Toutefois, ce résultat demeure très encourageant, car il indique une concordance en termes de la concentration dans la basse troposphère. Quant au sulfate, globalement les quantités de petite taille avec $D < 0.95 \mu\text{m}$ ont été bien simulées par notre modèle contrairement à celles de grandes tailles avec $D > 0.95 \mu\text{m}$ qui ont été sous-estimées puisque le modèle NARCM n'a pas pris en considération les particules des sulfates de sel marin (SS Sulfate) à cause de leur taille et aussi de la résolution relativement petite du modèle pour bien capter l'émission et la déposition de ces grosses particules. Des sources d'erreurs sont aussi possibles dans ces mesures qui nous semblent très élevées. D'autre part, en termes de comparaison des particules selon leurs origines anthropiques ou biogéniques, le modèle

NARCM a montré la dominance des particules anthropique pour le sulfate pour un facteur de 3,5. La contribution anthropique du sulfate continental est particulièrement marquée aux stations plus rapprochées du continent. L'étude nous a permis aussi de mieux expliquer l'évolution et la distribution de spectre de tailles des sulfates observées le long du parcours de SABINA que ce soit pour celles d'origine anthropique ou pour celles d'origine biogénique.

L'analyse comparative entre les résultats observés et ceux simulés nous a permis de distinguer le sulfate d'origine du sel marin de celui qui n'en est pas. Elle nous a permis également d'identifier l'origine de sulfate à sel non marin et du SO₂ avec des valeurs approximatives le long du parcours de la campagne. En termes quantitatifs, le sulfate et le SO₂ d'origine anthropique dominant dans les régions proches de la côte de l'Amérique du Nord cependant les substances d'origine biogénique dominant dans les régions qui sont loin de la côte de l'Amérique du Nord et celles qui sont proches de Groenland.

Pour conclure, il est important de noter que les simulations réalisées par le modèle ce sont des explications simplifiées de la réalité et qu'elles ne reproduisent pas exactement les résultats observés. Cependant, NARCM a montré sa capacité d'analyser les propriétés des aérosols de sulfate et de mieux expliquer leurs comportements à partir des observations limitées à quelques stations de la campagne SABINA. Ce travail renforce les résultats des autres analyses, chimiques (ioniques) déjà réalisées par (Séguin et al., 2010; Seguin et al., 2011) sur la même campagne SABINA pour détecter le « SS sulfate », l'analyse isotopique et préciser l'évolution et les sources d'origine anthropique des particules de sulfate.

Pour les recherches futures, afin d'obtenir des résultats de simulation à haute résolution et avec plus de fiabilité lors des prochaines campagnes, on recommande une amélioration de la qualité des mesures tout en augmentant l'échantillonnage durant la période de la campagne. Cette amélioration peut être réalisée d'une part, par l'établissement des profils verticaux du DMS, du SO₂ et du sulfate. Et d'autre part, par la prise de nouvelles mesures plus complètes de la distribution océanique du DMS, des espèces chimiques associées, des concentrations observées d'aérosols et des paramètres météorologiques en surface et en altitude. De plus, il faut réviser et mettre à jour la base des données des concentrations climatologiques du DMS marin qui s'adapte à un grand nombre de régions biogéochimiques pour prendre en considération les changements climatiques et leurs influences sur l'océan et éventuellement, le climat.

ANNEXE A : Analyse du géopotentiel

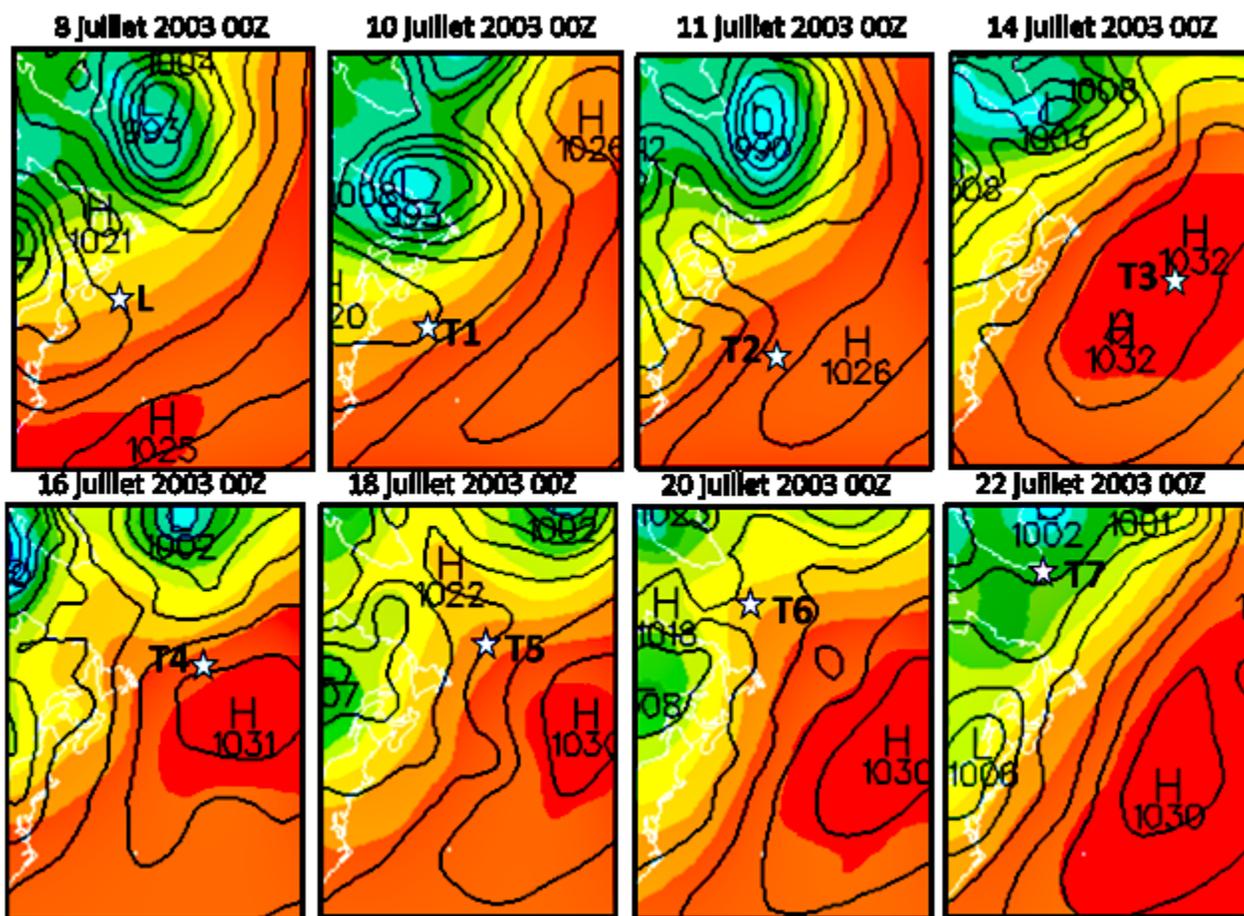


Figure 0-1 : Réanalyses de la région du parcours de SABINA été 2003 : épaisseurs géopotentielle de 500mb en couleur. La pression de la surface en lignes noires.

ANNEXE B : Analyse du Sulfate

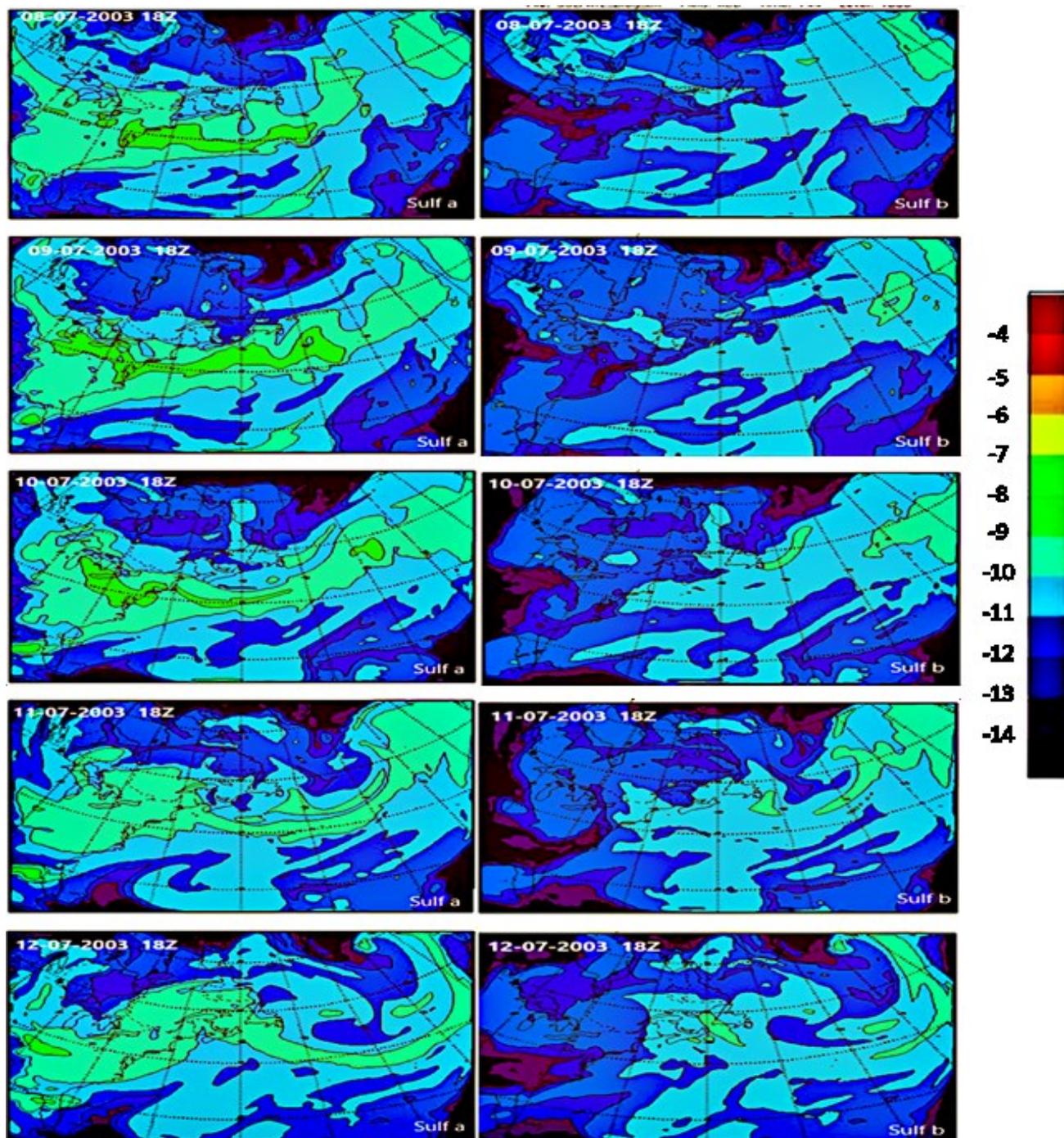


Figure 0-2 : Séquence temporelle du Sulfate total simulé (biogénique à droite et anthropique + biogénique à gauche) à 18 Z pour chaque jour de la séquence du 8 au 12 juillet 2003.

BIBLIOGRAPHIE

- Renoult et D. Boulaud. (1998). *Les aérosols: Physique et métrologie*. Lavoisier, Tec & Doc.10). Elevated biogenic sulphur dioxide concentrations over the North Atlantic. *Atmospheric Environment*, 44, 1139-1144.
- Andreae. (1986). Thiel: Marine sulfur cycling and the atmospheric aerosol over the springtime North Atlantic. *Chemosphere*, 52, 1321-1343.
- Atmospheric Environment Service, E. C. (2003). IDPro : Interactive Data Processor, v5.5.
- Bates et al. (1992). Sulfur Emissions to the Atmosphere from Natural Sources. *J. Atmos. Chem.*, 14, 315-337.
- Bates, T. J.-H. (1987). Regional and seasonal variations in the flux of oceanic dimethylsulfide to the atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 92, 2930-2938.
- Benkovitz, C., Scholtz, M., Pacyna, J., Tarrason, L., Dignon, J., Voldner, E., Spiro, P., & Graedel, J. L. and T. (1996). Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen anthropogenic emissions qualitative uncertainty. *J. Geophys. Res.*, 101(96), 29239–29253.
- Boucher et al. (2003). DMS atmospheric concentrations and sulphate aerosol indirect radiative forcing : a sensitivity study to the DMS source representation and oxydation. *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 49-65.
- Caya et Laprise. (1999). Semi-implicit semi-lagrangian regional climate mode!: the Canadian RCM. *Mon. Wea. Rev.*, 127(3), 341-362.
- Caya, D. R.-P. (1995). Description of the Canadian Regional Model. *Water Air Soil Pollut.*, 82, 477-482.
- Charlson, R. J. (1987). Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate. *Nature*, 326, 655-661.
- Draxler, R. R., & Rolph, G. D. (2003). *HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory)*. Access via NOAA ARL READY Website ([http://www. Arl. Noaa. Gov/Ready/Hysplit4. Html](http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html)). NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring.
- De Leeuw, G., E. L. Andreas, M. D. Anguelova, C. W. Fairall, E. R. Lewis, C. O'Dowd, M. Schulz, and S. E. Schwartz (2011), Production flux of sea spray aerosol, *Rev. Geophys.*, 49, RG2001, doi:10.1029/2010RG000349.
- Finlayson-Pitts, B. a. (2000). Physical chemistry of airborne sea salt particles and their components. *The journal of Physical Chemistry A*, 104(49), 11463-11477.
- Fitzgerald, J. .. (1991). Marine Aerosols: A Review. *Atmos. Environ*, 25A, 533-545.
- Gong et al. (2003). Canadian Aerosol Module: A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models 1. Module development. *J. Geophys. Res.*, 108(D1), 1-16.
- IDPro. (2003). Interactive Data Processor, v5.5, Atmospheric Environment Service, Environment Canada.
- Jackson, S. Sathyendranath, F. Mélin. An improved optical classification scheme for the ocean colour essential climate variable and its applications. *Remote Sens. Environ.*, 203 (2017), pp. 152-161, [10.1016/j.rse.2017.03.036](https://doi.org/10.1016/j.rse.2017.03.036).
- Jones, A., D. L. Roberts, and J. Slingo, A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulphate aerosols, *Nature*, 370, 450– 453, 1994.

- Kettle, A. a. (2000). Flux of dimethylsulfide from the oceans: A comparison of updated data sets and flux models. *J. Geophys. Res.*, 105(D22), 26793-26808.
- Kettle, A. M. (1999). A global database of sea surface dimethylsulfide (DMS) measurements and a procedure to predict sea surface DMS as a fonction of latitude, longitude and month. *Global Biochem. Cycles*, 13, 399-444.
- Kieber et al. (1996). Impact of dimethylsulfide photochemistry on methyl sulfur cycling in the equatorial Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, C(101), 3715-3722.
- Kiene, R.P. and T.S . Bates. (1990). Biological removal of dimethylsulfide from sea water,. *Nature*, 345, 702-705.
- Laprise et al. (1997). The formulation of Andre' Robert MC2 (Mesoscale Compressible Community)model. *The Andre'J. Robert Memorial, Volume C.Lin,R. Laprise, and H. Ritchie, Eds., NRC Research Press*, 195-220. Récupéré sur [Printed as a companion volume to Atmos.–Ocean, 35 (1).]
- Lohmann, U. and Roeckner, E. (1996). Design and performance of a new cloud microphysics scheme developed for the ECHAM general circulation model. *Clim.Dyn.*, 12, 557-572.
- Lohmann, U., Russell, L. M., and Pöschl, U. (2006). Critical assessment of the current state of scientific knowledge, terminology, and research needs concerning the role of organic aerosols in the atmosphere, climate, and global change. *aTMOS*, 56-98.
- Lurmann, F. W. (1997). Modeling urban and regional aerosols-II. Application to California's south coast air basin. *31(17)*, 2695-2715.
- MA, X. V. (2008). . Modelling sea salt aerosol and its direct and indirect effects on climate. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(5), 1311-1327.
- Madelaine, G. (1975). Formation and evolution of atmospheric aerosol. *In J. Phys.(Paris), Colloq* (pp.C8-1).
- Manu Anna Thomas et al. (2022). Manu Anna Thomas et al. Marine aerosol properties over the Southern Ocean in relation to the wintertime meteorological conditions. *Atmos. Chem. Phys.*, 22(1), 119–137.
- McFarlane, N. G. (1992). The Canadian Climate Centre second generation model and its equilibrium climate. *J. Clim.*, 5, 1013-1044.
- Munoz-Alpizar, R. J. (2003). Application of the NARCM model to high-resolution aerosol simulations: Case study of Mexico City basin during the Investigacion sobre Materia Particulada y Deterioro Atmosférico-Aerosol and Visibility Research measurements campaign. *J.Geophys. Res.*, 108(D15), AAC 7.1-7.14.
- Nightingale, P. L. (2000). Measurements of air-sea gas transfer during an open ocean algal bloom. *Geophys. Res. Lett.*, 27, 2117-2120.
- Norman, A. a. (2004). Dimethyl sulphide (DMS) and its oxidation to sulphur dioxide downwind of an ocean iron fertilization study, SERIES: a model for DMS flux. *27th NATO International Technical Meeting on Air Pollution Modeling and its Application*, (pp. 25-29). Banff.
- R., S. (2001, June). Production of atmospheric sulfur by oceanic plankton: biogeochemical, ecological and evolutionary links. *TRENDS in Ecology et Evolution*, 16(6).
- Rempillo, O. e. (2011). DMS air-sea fluxes and biogenic sulfur as a source of new aerosols in the Arctic fall. *J. Geophys.Res.*, 116.
- Saltzman E.S., D. K. (1993). Experimental determination of the diffusion coefficient of dimethylsulfide in water. *Geophys. Res.*, 98, 16481-16486.
- Salzen, K. v.-P. (2000). The sensitivity of sulphate aerosol size distributions and CCN concentrations over North America to SOx emissions and H2O2 concentrations. *J.Geophys.Res.*, 105(D8), 9741-9765.

- Sathyendranath, S. L. Prieur & A. Morel (1989). A three-component model of ocean colour and its application to remote sensing of phytoplankton pigments in coastal waters, *International Journal of Remote. Sensing*, 10:8, 1373-1394, DOI: [10.1080/01431168908903974](https://doi.org/10.1080/01431168908903974).
- Sathyendranath, S., Longhurst, A., Caverhill, CM. (1995). Regionally and seasonally differentiated primary production in the North Atlantic. *Deep Sea Research Part I : Oceanographic Research papers, Volume 42*(Issue 10). Récupéré sur Elsevier
- Seguin, A. (2007). *Inherences from Atmospheric Sulphur using Stable Isotopes over the NW Atlantic*. Degree of Master, Department of Chemistry. University of Calgary.
- Seguin AM, A.-L. N. (2010). Elevated biogenic sulphur dioxide concentrations over the North Atlantic. *Atmospheric Environment*, 44, 1139-1144.
- Seguin, A., Norman, A.-L., Eaton, S., & Wadleigh, and M. (2011). Seasonality in size segregated biogenic, anthropogenic and sea salt sulfate aerosols over the North Atlantic. *Atmos. Environ.*, 45, 6947–6954.
- Sharma, S. A.-S. (1999). Sources of aerosol sulphate at Alert: apportionment using stable isotopes. *J. Geophys. Res.*, 104, 11619-11631.
- Spacek, L. S.-U. (1999). The NARCM aerosol model applied to eastern North America LITE shuttle measurement period. *J. Geophys. Res.* doi:submitted
- Twomey, S. (1977). The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds. *J. Atmos. Sei.*, 1149-1152.
- Verseghy, D. (1991). CLASS-A Canadian land surface scheme for GCMs, I. Soil model. *Int. J. Climatol.*, 11, 111-133.
- Verseghy, D. N. (1993). CLASS-A Canadian land surface scheme for GCMs, II. Vegetation model and coupled runs. *Int. J. Climatol*, 13, 347-340.
- Zaganescu, C. (2007). *Analyse comparative des simulations du modèle NARCM et des observations de la campagne de mesures series. Mémoire. Montréal (Québec, Canada), Université du Québec à Montréal, Maîtrise en sciences de l'atmosphère.*
- Zhang, G. a. (1995). Sensitivity of climate simulations to the parametrization of cumulu convection in the Canadian Climate Centre General Circulation Model. *Atmos. Ocean.*, 33, 407-446.