

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

**ANALYSE COMPARATIVE DES SIMULATIONS DU MODÈLE NARCM ET
DES OBSERVATIONS DE LA CAMPAGNE DE MESURES SERIES**

MÉMOIRE
PRÉSENTÉ
COMME EXIGENCE PARTIELLE
DE LA MAÎTRISE EN SCIENCES DE L'ATMOSPHÈRE

PAR
CALIN ZAGANESCU

AVRIL 2007

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.01-2006). 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 remercie mon directeur de projet, Jean-Pierre Blanchet, pour les horizons nouveaux qu'il m'a ouverts, pour son enthousiasme et son imagination. Je le remercie de m'avoir offert les occasions de présenter mon travail au cours d'importantes rencontres du monde scientifique, et de m'avoir offert le support financier sans lequel je n'aurais pas pu finir mon projet.

Je suis reconnaissant à Peter Zwack pour ses qualités de pédagogue qui m'ont aidé à pénétrer les subtilités de l'atmosphère. Hélas, il n'est plus parmi nous.

Je remercie René Laprise pour les connaissances profondes et la compréhension acquises durant ses cours, dont je me rappelle avec plaisir.

Je remercie Lubos Spaček et Rodrigo Muñoz-Alpizar pour leur patience face à mes premiers tâtonnements dans la modélisation.

Je remercie Sunling Gong pour son aide à distance, et Ann Lise Norman, Yvonnick Le Clainche, Nicole Shantz, Lisa Phinney, Julia Marshall pour m'avoir fourni leurs données d'observation SERIES.

Je remercie ma famille qui m'a appuyé et supporté durant mes études.

Finalement, je remercie tous ceux qui, à un moment ou à un autre, d'une manière ou d'une autre, m'ont aidé à réaliser ce projet.

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURES	v
LISTE DES TABLEAUX	vii
LISTE DES SIGLES ET ACRONYMES	viii
RÉSUMÉ	ix
CHAPITRE I	
INTRODUCTION	1
1.1 La Théorie Gaia : la science de la Terre vivante	1
1.2 Le diméthylsulfure	5
1.3 L'hypothèse CLAW	9
1.4 La limitation en fer	11
1.5 La campagne de mesures SERIES	13
1.6 But de cette recherche	15
CHAPITRE II	
MÉTHODOLOGIE	17
2.1 MRC - La météorologie	18
2.2 Le module CAM	19
2.2.1 Inventaires	20
2.3 Description des expériences	21
2.4 Analyse des résultats	25
CHAPITRE III	
RÉSULTATS	28
3.1 Situation météo générale	28
3.2 Aérosols	37
3.2.1. Flux de DMS	38
3.2.2. DMS dans l'atmosphère	47

	iv
3.2.2. DMS dans l'atmosphère	47
3.2.3. Sulfate	60
CONCLUSIONS	68
APPENDICE A LA CHIMIE ET LES PROCESSUS PHYSIQUES IMPLIQUANT LES AEROSOLS DANS LE MODULE CAM	73
APPENDICE B PRÉPARATION ET LANCEMENT DES SIMULATIONS	85
APPENDICE C EXEMPLE DE FICHER DE CONFIGURATION <i>PARAMETRES</i>	88
APPENDICE D PRÉPARATION DES RÉSULTATS POUR L'ANALYSE	98
BIBLIOGRAPHIE	100

LISTE DES FIGURES

Figure	Page
1.1 La rétroaction entre le phytoplancton et l'atmosphère (Lucinda Spokes-UEA).	10
1.2 Paléo-concentrations de Fe et de CO ₂ [Martin, 1990].	13
1.3 La région du Golfe de l'Alaska, 29 juillet 2002 (SeaWIFS).	14
2.1 Schéma de principe du modèle NARCM.	17
2.2 Les trois domaines utilisés : I, II et III.	22
2.3 Schéma de principe du pilotage des simulations en cascade.	23
3.1 Cartes des moyennes temporelles simulées NARCM, expérience II-E (à gauche) et NCEP (à droite).	29-30
3.2 Pression au niveau de la mer.	32
3.3 Module du vent en surface.	33
3.4 Température en surface.	34
3.5 Humidité relative en surface.	35
3.6 Distribution de la concentration de DMS dans l'eau de surface [$\mu\text{mol}/\text{m}^3$], moyenne mensuelle de Kettle pour juillet.	39
3.7 Flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] et module du vent en surface [m/s], moyennes de simulation durant SERIES.	39
3.8 Séries temporelles du flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] durant SERIES à la station PAPA.	41
3.9 Diagramme de dispersion flux DMS - vent en surface : a) simulation II-R , b) simulation II-E, c) analyse d'observations.	42
3.10 Variation temporelle du flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] et du vent en surface [m/s] : a) simulation II-E, b) analyse SERIES	43
3.11 Concentration simulée moyenne de DMS durant SERIES (simulation II-E).	48
3.12 Flux de DMS (colonne de gauche) et concentration de DMS en surface (colonne de droite) au cours de l'expérience SERIES.	48-50
3.13 Exemple de transport du DMS, 22 - 24 juillet.	51-52
3.14 Profils verticaux de la concentration moyenne de DMS durant SERIES à la station PAPA.	54

Figure	Page
3.15 Séries temporelles du flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$], de la concentration de DMS [kg/m^3] et du module du vent [m/s], à la station PAPA durant SERIES (simulation II-E).	58
3.16 Séries temporelles des composants u et v du vent [m/s] à 1000 hPa à la station PAPA (simulation II-E).	58
3.17 Séries temporelles de la concentration de DMS [kg/m^3] à 1000 hPa à la station PAPA.	59
3.18 Diagramme de dispersion flux [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] - concentration [kg/m^3] de DMS à 1000 hPa (simulation II-E).	59
3.19 Profils verticaux de la concentration moyenne de sulfate durant SERIES à la station PAPA.	61
3.20 Profils verticaux des contributions à la concentration moyenne totale de sulfate durant SERIES à la station PAPA.	66

LISTE DES TABLEAUX

Tableau		Page
2.1	Les catégories de taille des aérosols en CAM.	19
2.2	Les paramètres des simulations : R – référence, E – expérience, ANT – anthropique, NAT – naturel.	24
2.3	Les traceurs, leurs noms et leurs unités de mesure.	26
3.1	Valeurs maximum, moyenne, minimum, déviations standard et variances durant SERIES à la station PAPA.	36
3.2	Flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère à la station PAPA durant SERIES.	45
3.3	Valeurs maximum, minimum, déviations standard et variances pour le flux de DMS durant SERIES à la station PAPA.	46
3.4	Concentration moyenne de DMS en atmosphère à 1000 hPa, durant SERIES à la station PAPA.	55
3.5	Valeurs maximum, minimum, déviations standard et variances pour la concentration de DMS durant SERIES à 1000 hPa à la station PAPA.	56
3.6	Concentration moyenne de $[\text{SO}_4]^{-2}$ total en atmosphère à 1000 hPa durant SERIES à la station PAPA et contribution de chaque domaine.	62
3.7	Contribution anthropique, biogénique et volcanique à la concentration moyenne totale de $[\text{SO}_4]^{-2}$ en atmosphère à 1000 hPa durant SERIES à la station PAPA.	64
3.8	Contribution anthropique, biogénique et volcanique à la concentration moyenne totale de $[\text{SO}_4]^{-2}$ en atmosphère à 900 hPa durant SERIES à la station PAPA.	64
3.9	Contribution anthropique, biogénique et volcanique à la concentration moyenne totale de $[\text{SO}_4]^{-2}$ en atmosphère à 700 hPa durant SERIES à la station PAPA.	64
3.10	Contenu de sulfate dans la colonne à la station PAPA.	66

LISTE DES SIGLES ET 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	carbonylsulfure
CRCM	Canadian Regional Climate Model
C-SOLAS	Canadian - Surface Ocean Lower Atmosphere Study
DMS	dimethylsulfure
DMSP	dimethylsulfoniopropionate
GEIA	Global Emissions Inventory Activity
HNLC	High Nutrient Low Chlorophyll
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
MOZART	Model of Ozone And Related Tracers
MSA	methanesulfonic 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
SeaWiFS	Sea-viewing Wide Field-of-view Sensor
SERIES	Subarctic Ecosystem Response to Iron Enrichment Study
UEA	University of East Anglia

RESUMÉ

Comprendre le comportement et la conversion des composants sulfurés d'origine biogénique en sulfate, l'implication de ce dernier comme centre de condensation dans la formation des nuages, et finalement son effet sur le climat est un défi très important pour les recherches atmosphériques actuelles et un des objectifs de C-SOLAS.

Dans le Pacifique Nord-est, loin des régions industrialisées polluées, le DMS océanique représente la source principale de sulfate. Au cours de cette recherche, le modèle NARCM est utilisé pour étudier le flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère et l'évolution de la concentration de DMS atmosphérique dans la région de la campagne de mesures SERIES menée par C-SOLAS en juillet 2002 durant et après une fertilisation locale du phytoplancton aux environs de la Station Océanique PAPA. Les résultats des simulations sont comparés aux mesures atmosphériques prises en surface durant SERIES. L'évolution de la pression, de la température, des vents et de l'humidité est en accord avec les observations, ainsi que le flux de DMS et sa concentration en surface. Des modifications dans les sous-routines du modèle qui calculent le flux de DMS nous ont permis d'y utiliser les concentrations de DMS marin observées, ce qui rapproche les simulations de la situation du terrain. La réduction graduelle de l'étendue de la grille lors des simulations nous a permis de comprendre les patrons du flux et de la concentration de DMS ainsi que de la concentration du sulfate dans le Pacifique Nord-est et de prouver que la contribution du transport est plus importante que celle de la production locale, même après une fertilisation à petite échelle. La quantité de sulfate produit en surface dans la région située à moins de 450 km distance de la station PAPA est négligeable. 70.6 % de la concentration du sulfate simulé est d'origine naturelle, essentiellement biogénique et volcanique, et provient de la région comprise entre 450 et 3500 km distance de la station PAPA. 29.4 % du sulfate provient du domaine au-delà de 3500 km, et est d'origine anthropique et naturelle, produit en Asie et possiblement aussi en Amérique du Nord. Ces résultats démontrent une déconnexion spatiale importante entre la région d'émission de DMS et la région où l'effet du sulfate biogénique se manifeste, qui peut constituer une faiblesse majeure de l'hypothèse CLAW. La quantité totale de sulfate dans la colonne à la station PAPA est constituée de 51.3 % sulfate anthropique, 31 % sulfate biogénique et 17.2 % sulfate d'origine volcanique, provenant des distances au-delà de 450 km.

En dépit d'une quantité limitée de données d'observation en surface, du manque de mesures en altitude et des limitations du modèle, cette recherche indique que NARCM est capable de reproduire les aspects importants de la situation complexe de SERIES et nous encourage à continuer le développement de cette approche et à approfondir la recherche sur les aérosols d'origine océanique et leur impact sur le climat.

Mots clé : aérosols, DMS, sulfate, modèle NARCM, fertilisation avec fer.

CHAPITRE I

INTRODUCTION

Dans le contexte des inquiétudes liées au réchauffement global, de plus en plus de recherches sont menées aujourd'hui pour comprendre et évaluer le rôle que chaque composant atmosphérique y joue. Les recherches se penchent de plus en plus vers les composants existant en quantités infimes, moins connus, ou qui constituent des précurseurs pour les composants plus abondants et plus connus. Beaucoup de questions apparues pendant les recherches visant la composition de l'atmosphère et les changements climatiques ont pu trouver une réponse seulement en incluant les interactions biologique, chimique et géologique, impliquant l'océan, l'atmosphère et les couches superficielles de la Terre.

1.1 La Théorie Gaia : la science de la Terre vivante

Dans la mythologie grecque antique, Gaia est une Déesse Mère : la Déesse de la Terre. Elle est tout ce qui existe sur la planète et a le pouvoir d'y engendrer tout ce qui existe.

En 1972 Lovelock a proposé une théorie qui relie lithosphère, hydrosphère, atmosphère et biosphère pour expliquer l'évolution de la Terre pendant toute son histoire géologique. Cette théorie encore très controversée porte le nom de Gaia. Le concept est le suivant : la biosphère parvient à maintenir un équilibre de l'atmosphère propice à la vie.

L'atmosphère de la Terre primordiale était réductrice et constituée principalement de méthane (CH_4), ammoniac (NH_3), dioxyde de carbone (CO_2), azote (N), dioxyde de soufre (SO_2) et de vapeur d'eau (H_2O), pratiquement sans oxygène (O_2) libre. Cette atmosphère était plus dense et la surface de la planète était beaucoup plus chaude qu'aujourd'hui. Un environnement très hostile où la vie est apparue, dans la mer, il y a environ 3,8 milliards d'années. Quelque 1,3 milliards d'années plus tard, des bactéries capables de photosynthèse (cyanobactéries) avaient déjà commencé à consommer du CO_2 atmosphérique et à relâcher de l' O_2 comme produit métabolique résiduel. [Bourque, 2005]

Au cours d'une période d'environ 2 milliards d'années, dû à la prolifération massive des cyanobactéries, ce processus a changé la composition de l'atmosphère, rendant l' O_2 l'une des ses composantes majeures. Par conséquent sont apparues les organismes à métabolisme aérobie. Les processus biologiques, l'action cumulée d'innombrables organismes, contrôlaient l'atmosphère [Lovelock et Margulis, 1974]. L'atmosphère était devenue oxydante, la température en surface avait beaucoup diminué et la couche d'ozone formée constituait un écran contre les ultraviolettes.

Aujourd'hui, la Terre est loin d'être en équilibre chimique. Par exemple, le CH_4 et le O_2 entrent très facilement en réaction, pourtant les deux coexistent toujours dans l'atmosphère. Il est évident que les gaz sont en circulation constante. Est-ce que le facteur contrôlant cette circulation est la vie ?

L'atmosphère de la Terre est un extraordinaire mélange instable de gaz, qui a eu une composition presque constante pendant des très longues périodes de temps. Il est plausible que la vie sur Terre n'ait pas seulement "créé" l'atmosphère actuelle, mais l'ait aussi maintenue à une composition constante favorable aux organismes [Lovelock, 1979]

Cela signifierait que la planète est auto régulatrice et que du point de vue de la composition de l'atmosphère, la physique et la biologie sont intimement liées. Un exemple est le cycle du CO_2 . Les volcans produisent constamment des quantités

massives de CO₂. Le CO₂ est un gaz à effet de serre tendant à réchauffer la surface de la planète. Si rien ne s'y oppose, la Terre deviendra trop chaude pour supporter la vie. Les plantes et les animaux consomment et libèrent du CO₂ au cours des processus comme la photosynthèse, la respiration et la décomposition, mais ces processus restent équilibrés et n'affectent pas la quantité nette de gaz. Il doit exister un autre mécanisme.

Un des processus par lequel le CO₂ est retiré de l'atmosphère est la modification de la roche due aux facteurs météo : l'eau de pluie et le CO₂ se combinent avec la roche pour former des carbonates. Ce processus est accéléré en présence des bactéries vivant dans le sol. Les carbonates sont transportés dans l'océan, où des algues microscopiques les utilisent pour construire de minuscules coquilles. Quand les algues meurent, leurs coquilles tombent au fond de l'océan, formant des sédiments calcaires. Par subduction des fonds marins, le calcaire peut glisser sous le manteau de la Terre, où il fond et subit des réactions chimiques qui dégagent du CO₂. Ce CO₂ va être retourné vers l'atmosphère par les volcans et ainsi se ferme le cycle.

Parce que les bactéries du sol sont plus actives aux températures élevées, l'enlèvement du CO₂ atmosphérique par modification de la roche est accéléré quand la planète est plus chaude. Cela a pour effet de refroidir la planète. Le cycle entier constitue une boucle de réponse. Une particularité intéressante de cette boucle est qu'elle associe les composantes vivantes et non-vivantes [Lovelock et Margulis, 1974; Lovelock et Watson, 1982].

La théorie Gaïa a eu un grand impact sur la pensée scientifique et a changé la façon de voir notre place dans le monde. On a estimé que dû à un effet d'hystérésis, les dommages une fois faits, il est très difficile de les réparer. Le réchauffement global ne pourra pas être arrêté quand ses effets se feront ressentis : c'est possible alors qu'il soit trop tard. Pour donner un exemple, la fonte des calottes glaciaires fera monter le niveau de la mer, ce qui inondera à très long terme d'importantes régions basses et entraînera une forte érosion côtière. Le niveau de la mer continuera d'augmenter

longtemps après la stabilisation des gaz à effet de serre, et ce à cause de la grande capacité thermique de l'océan et de la lente réponse des glaciers et des banquises au réchauffement. L'apport important d'eau douce modifiera la salinité de l'eau de mer et produira des changements importants dans le trajet et l'intensité des courants océaniques. Cela modifiera le climat de régions entières. Autre exemple, dans les régions arctiques le réchauffement permettra le dégel du pergélisol, ce qui produira un important apport de CH_4 et CO_2 naturels dans l'atmosphère, en renforçant encore l'effet de serre. D'un autre côté, les immenses étendues arctiques devenues instables subiront une subsidence et, donc, d'importants changements de nature hydrologique : les bassins des rivières changeront avec la pente et l'élévation du terrain, le sol devenu perméable favorisera la diminution et parfois la disparition du drainage de surface, d'où encore le changement du climat, voir la modification de l'abondance des espèces biologiques. Évidemment, tous les effets mentionnés affecteront le mode de vie de l'espèce humaine [IPCC, 2001]. Nous sommes seulement une partie d'un très grand système, et nous dépendons de ce système pour continuer à exister. Nous altérons ce système à notre péril.

Depuis environ 200 ans les activités humaines contribuent au changement rapide de la concentration et de la diversité des gaz en trace, ainsi que des aérosols dans l'atmosphère. Les aérosols sont des fines particules liquides ou solides (parfois un mélange), minérales ou organiques, en suspension dans l'atmosphère. Leur origine peut être anthropique ou naturelle. Quelques aérosols d'origine anthropique sont le sulfate et la suie (produits par la combustion des combustibles fossiles), le carbone organique (produit par la combustion des combustibles fossiles et de la biomasse) et les poussières de sol (produites par les changements et perturbations dans la couverture végétale des sols). Des aérosols d'origine naturelle sont le sel de mer, le sulfate (produit par l'oxydation du SO_2 volcanique et de certains gaz biogéniques), les poussières (soulevées par les vents). Certains gaz peuvent être précurseurs d'aérosols.

Les aérosols exercent des forçages radiatifs sur le climat : direct, dispersion et absorption de la radiation solaire et terrestre par eux-mêmes [Penner et al., 2001], ou indirect, en changeant la distribution de taille des gouttelettes, ils modifient l'albédo et la durée de vie des nuages, ainsi que les précipitations [idem; Twomey, 1974, 1977, 1991].

Il est généralement accepté que le forçage direct global moyen exercé par les aérosols anthropiques est d'environ -0.5 W/m^2 , alors que le forçage indirect est très incertain. Le forçage direct du aux sulfates est estimé entre -0.4 et -4.8 W/m^2 [IPCC, 2001].

Cependant, la quantification de l'influence des gaz et aérosols anthropiques requiert aussi l'étude des aérosols naturels.

1.2. Le diméthylsulfure

Une des plus importantes sources naturelles de gaz précurseurs d'aérosols est la multitude d'algues microscopiques qui vivent près de la surface de l'océan, connues sous la dénomination générique de phytoplancton.

Il y a des preuves que la fréquence et l'intensité des floraisons d'algues augmentent dans l'océan, Selon la théorie Gaia, ceci peut être la réponse du système au présent réchauffement global.

Un exemple de processus naturel complexe que Lovelock considère comme maintenant les conditions propices pour la vie sur Terre sont ceux impliquant les Coccolithophores [Lovelock et Margulis, 1974]. Celles-ci et d'autres algues océaniques sont des agents clé dans le grand cycle du carbone depuis son introduction dans l'atmosphère par les volcans jusqu'à sa séquestration dans les dépôts au fond de l'océan.

Les Coccolithophores et autres espèces de phytoplancton sont à l'origine d'un gaz important dans la formation de noyaux de condensation pour les nuages (CCN) : le diméthylsulfure (DMS : $\text{CH}_3\text{-S-CH}_3$).

Pour maintenir l'équilibre osmotique de chaque cellule, se protéger du froid et des bactéries, le phytoplancton produit du diméthylsulfoniopropionate (DMSP) qui est le précurseur du DMS. Quand le phytoplancton meurt, le DMSP est relâché dans l'eau ou une petite partie est convertie en DMS. Sa concentration dépend du rayonnement solaire, de la température et de l'ensemble des processus de surface de l'océan, parce que tous ces facteurs contrôlent la biologie marine et les processus chimiques. La plupart de ce DMS subit la photo-oxydation [Kieffer et al., 1996], l'absorption ou la consommation par des entités biologiques [Kiene et Bates, 1990] et seulement environ 10 % passe dans l'atmosphère. 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. La vitesse de transfert dépend de la température et de la vitesse du vent en surface.

Dans l'atmosphère, le DMS subit des processus d'oxydation par plusieurs composants atmosphériques en donnant naissance à trois types principaux de composés sulfatés : le dioxyde de soufre (SO_2), le sulfate (SO_4^{2-}) et l'acide méthanesulfonique (MSA ou $\text{CH}_3\text{-S-O}_3\text{H}$). Tous les mécanismes d'oxydation du DMS ne sont pas encore bien connus. On sait que le radical OH agit sur le DMS par addition et par soustraction de l'hydrogène, mais il y a des incertitudes concernant la contribution de chaque processus à la quantité totale de SO_2 produit. L'importance de l'action des nitrates (NO_3^-) et du monoxyde de brome (BrO) sur le DMS est encore moins connue. Le SO_2 formé peut aussi subir l'oxydation par le radical hydroxyle (OH), être retiré de l'atmosphère par déposition sèche ou encore entrer en réaction avec le sel de mer. A cause de ces incertitudes, du manque de données d'observations

et de la complexité des réactions chimiques en fonction des facteurs physiques, les modèles n'incluent pas tous les chemins 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 al., 2003].

On sait que la concentration de DMS augmente en été, qu'il y a des valeurs maximales et des grandes variations saisonnières (d'un facteur 50) aux hautes latitudes [Andrae, 1986 ; Bates et al., 1987], que la population de petits CCN des nuages stratiformes marins est due en partie au DMS émis de l'océan [Fitzgerald, 1991], que certaines floraisons du phytoplancton sont associées aux événements de transport des poussières par les vents.

Des mesures du MSA dans les carottes de glace prélevées en Arctique et en Antarctique suggèrent que les émissions de DMS (et les concentrations de DMS océanique présumées) ont fluctué d'un facteur 6 entre les périodes de glaciation (froid) et inter glaciation (chaud) [Legrand et al., 1991]. Il y a des preuves contradictoires tirées de ces carottes, qui montrent une concentration de MSA plus haute durant les glaciations que durant les inter glaciations. Celle-ci pourrait refléter des changements dans les patrons du transport atmosphérique aussi bien que des variations de la production du DMS [Andreae et Crutzen, 1997; Thomas et al., 2000].

Une base de données globale des concentrations de DMS dans les eaux de surface océanique a été proposée par Kettle et al. [1999]. Elle reflète les observations de croisières – la plupart en printemps et en été, suivant les régions de floraison ou d'autres phénomènes intéressants – avec beaucoup de mesures, mais réparties non-uniformément dans le temps et ne couvrant pas l'entière étendue des océans. C'est pourquoi les océans ont été divisés en 57 provinces biochimiques et pour chacune d'entre elles a été calculé le DMS moyen [idem]. Quelques provinces sont couvertes de façon satisfaisante à cause de la quantité de mesures disponibles (Atlantique Nord, Pacifique Equatorial), mais pour d'autres, principalement dans l'hémisphère sud, on a

eu si peu de mesures disponibles qu'on a dû utiliser les données des provinces voisines pour interpoler et ainsi compléter le set de données. Pour le Pacifique nord-est on a utilisé les données de l'Atlantique nord. Évidemment, il y a des changements considérables pour les valeurs des provinces non couvertes par des mesures, quand on ajoute des nouvelles données dans la base. Les données globales ainsi obtenues ont été utilisées pour calculer une climatologie mensuelle sur une grille de 1 x 1 degrés. Kettle et Andrae [2000] ont mis à jour la première version [1999] de la base de données en y incluant près de 17.000 mesures.

Il est extrêmement difficile de trouver une corrélation directe entre la biomasse de phytoplancton et la quantité de DMS produit. En partie cela est dû à la production de DMSP, précurseur du DMS, qui est spécifique à chaque espèce de phytoplancton. En plus, les cellules en développement relâchent peu de DMSP et de DMS. Beaucoup plus de DMS est produit par les cellules mourantes, consommées par des organismes marins ou victimes des virus et bactéries, les deux dernières étant influencées par la dynamique des populations de phytoplancton [Kiene and Bates, 1990; NOAA PMEL, 2005].

On a essayé par différentes approches de relier le DMS aux variables qui peuvent être cartographiées. La variable commune dans toutes ces approches est la concentration de chlorophylle (Chl *a*) mesurée par satellite (SeaWiFS) à l'aide de senseurs de couleur de l'océan.

Anderson et al. [2001] ont établi des index de taux de croissance du phytoplancton, calculés à partir de la concentration de chlorophylle, de l'irradiance et d'un indice de concentration en nutriments, mais les résultats ont été satisfaisants seulement pour les régions caractérisées par une forte production de DMS. Cependant, des régions importantes des océans sont caractérisées par une faible production de DMS.

Une autre méthode, proposée par Aumont et al. [2002], est basée sur la concentration de chlorophylle et sur un indice de structure communautaire spécifique à chaque

population de phytoplancton. Cette méthode donne des résultats plus réalistes, mais la difficulté d'utilisation se trouve dans le fait que l'index n'est pas mesuré de façon régulière à l'échelle globale.

Belviso et Moulin [2002] ont modifié la méthode d'Aumont et al. [2002], en estimant l'index de structure communautaire directement à partir de la concentration de chlorophylle dans l'eau de mer. Cette approche donne des résultats satisfaisants seulement en ce qui concerne le DMS produit par certaines espèces de phytoplancton, et n'explique pas la variation du DMS produit dans des régions équatoriales.

Il y a beaucoup d'incertitude sur la quantité de DMS relâchée en atmosphère par l'océan. Il y a aussi beaucoup d'incertitude concernant le sulfate d'origine anthropique. Toutefois, des quantités annuelles moyennes entre 10 et 40 Tg S provenant du DMS et entre 60 et 110 Tg S d'origine anthropique sont généralement acceptées.

1.3. L'hypothèse CLAW

Depuis les années '80 on remarque une préoccupation accrue face à l'augmentation du SO_2 dans l'atmosphère. Celui-ci peut être converti par une série de processus chimiques en acide sulfurique (H_2SO_4), molécule hygroscopique qui peut servir de CCN. L'augmentation de la couverture nuageuse produit l'augmentation de l'albédo des nuages, donc la diminution de la quantité de radiation solaire qui atteint la surface. C'est un effet indirect des aérosols sur le climat. On ne sait pas encore et il semble difficile à quantifier quelles seraient les conséquences d'un changement dans cette chaîne, parce qu'il y a des incertitudes importantes concernant les émissions anthropogéniques ($\pm 20\text{-}30\%$), la conversion du SO_2 en SO_4^{-2} (facteur 2) et la relation entre la concentration de SO_4^{-2} et le nombre de CCN. Tout cela implique des incertitudes concernant le forçage indirect du climat. Pour les régions marines le forçage indirect généralement accepté est de $-1.4 \pm 1.4 \text{ W/m}^2$ [IPCC, 2001].

Charlson et al. [1987] suggèrent qu'il existe une rétroaction entre le phytoplancton et le bilan radiatif de l'atmosphère. C'est l'hypothèse CLAW (Charlson, Lovelock, Andrae, Warren)

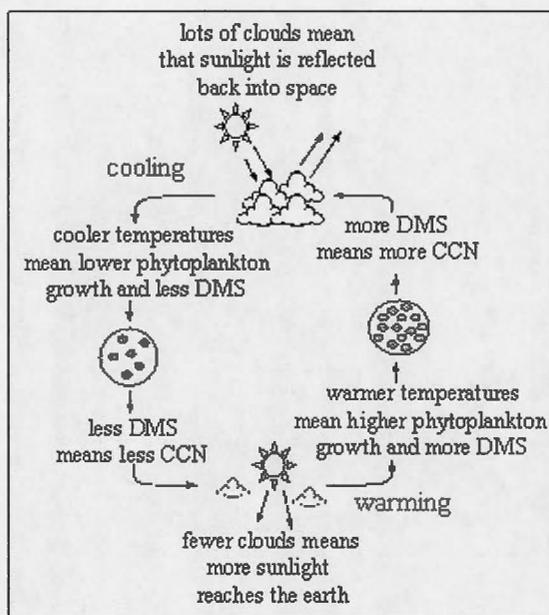


Figure 1.1. La rétroaction entre phytoplancton et atmosphère (source : Lucinda Spokes - UEA)

L'idée originale était que si la température de l'eau océanique augmente, la floraison du phytoplancton sera plus intense, ce qui produira plus de DMS et celui-ci engendrera finalement plus d'aérosols de sulfate (fig 1.1). Il y aura ainsi plus de CCN. Les aérosols agiront directement et indirectement à la réduction du rayonnement solaire incident en surface, menant donc au refroidissement de celle-ci. Ce serait une rétroaction négative, parce que l'effet tendrait de diminuer la cause qui l'aurait produit. En réalité on n'en connaît pas l'intensité ni même si la rétroaction est négative ou positive, cependant un bon nombre de chercheurs sont d'accord qu'il existe une rétroaction. Il faut se souvenir que dans l'hypothèse CLAW c'est le

nombre de CCN plutôt que la masse totale d'aérosol sulfaté qui est important pour le forçage du climat.

Si on parle de rétroaction négative, les principaux effets possibles sont : la réduction de la radiation solaire en surface (due à l'augmentation de l'albédo des nuages), les changements dans la circulation océanique (dus à la réduction de la température de surface de l'océan), les deux pouvant causer une modification de la distribution d'espèces productrices de DMS. Tout cela est extrêmement difficile à simuler.

Il y a des failles importantes dans notre compréhension des interactions biosphère-climat, en particulier : les processus bio-chimiques et physiques qui régularisent la concentration du DMS dans l'océan et le taux de transfert vers l'atmosphère, les mécanismes et le taux de production des CCN à partir de l'oxydation du DMS, l'effet du climat sur la production du DMS dans l'océan. Le résultat de ces incertitudes est qu'on ne peut pas utiliser CLAW avec un niveau de confiance adéquat pour l'appliquer dans les modèles quantitatifs et prédictifs du climat [Andreae et Crutzen, 1997].

1.4. La limitation en fer

La lumière du soleil et les nutriments adéquats sont les facteurs majeurs qui régularisent les floraisons du phytoplancton. Les nutriments nécessaires sont les nitrates, les phosphates et les silicates qui normalement subissent un cycle les rendant plus ou moins disponibles dans l'eau de surface. Il existe de vastes étendues de l'océan où ces nutriments existent dans des concentrations suffisantes pour nourrir le phytoplancton. Cependant, on n'enregistre pas des floraisons spontanées notables dans ces régions, d'où le nom qu'on leur a donné : HNLC (High Nutrient Low Chlorophylle). L'hypothèse la plus plausible pour expliquer ce phénomène est qu'il existe un déficit de fer (Fe) soluble dans l'eau de ces régions [Martin et al., 1988,

1994]. Les algues utilisent le fer dans le processus de synthèse des enzymes nécessaires à la photosynthèse, à la respiration et à l'assimilation de l'azote dans les cellules. Une concentration insuffisante de fer peut empêcher la croissance des cellules, et donc la floraison [Martin et al., 1989]. La source primaire de fer dans l'eau de surface est le transport atmosphérique pour les régions en haute mer, ou la déposition directe pour les régions côtières. Une autre source est le brassage vertical de l'océan.

On sait que certaines floraisons du phytoplancton peuvent être dues aux poussières transportées par les vents, dans le Pacifique-Nord à partir des déserts asiatiques (en avril 2001, par exemple) [Zhao et al., 2003] et dans l'Atlantique Nord à partir du Sahara [Andrae et al., 2003]. Les poussières sont constituées de particules minérales fines parmi lesquelles des composés de fer. La quantité globale annuelle de fer déposée de l'atmosphère en océan est estimée à 96×10^9 mol Fe, dont entre 1 et 10 % constitue la fraction soluble. La quantité globale annuelle de fer assimilée par le phytoplancton est estimée à 12×10^9 mol Fe [Fung et al., 2000].

L'étude des carottes de glace montre que dans le passé géologique de la Terre, plus de fer coïncide à moins de CO_2 . La figure 1.2 montre les paléo-concentrations de Fe et de CO_2 mesurées dans une carotte extraite de la calotte glaciaire dans la région du Lac Vostok en Antarctique [Martin, 1990].

Le phytoplancton est important dans le cycle du carbone (la séquestration du CO_2 dans l'océan, donc la diminution de l'effet de serre) et dans la création de CCN (la formation de nuages, donc la diminution de la radiation solaire en surface). Il est plausible qu'on puisse utiliser ce phytoplancton comme moyen de réduction du réchauffement global.

Depuis quelques années on essaye de vérifier cette hypothèse, à travers des campagnes de fertilisation avec Fe, dans différentes régions HNLC de l'océan planétaire. Jusqu'à maintenant on dénombre huit expériences à la méso échelle. Notre étude portera sur une de ces campagnes, effectuée sous l'égide du projet SOLAS

Canada et connue sous le nom SERIES (Subarctic Ecosystem Response to Iron Enrichment Study).

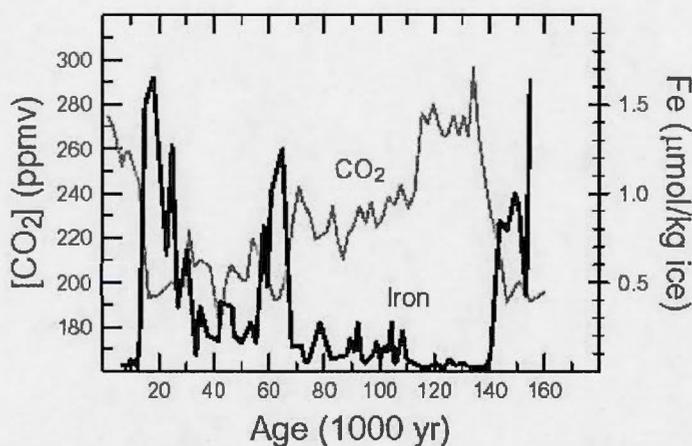


Figure 1.2 Paléo-concentrations de Fe et de CO₂ [Martin, 1990]

1.5. La campagne de mesures SERIES

La campagne s'est déroulée durant juillet et août 2002 et son but était de vérifier l'hypothèse du déficit en Fe comme inhibant de l'activité biologique du phytoplancton; d'évaluer la portée de la réponse du phytoplancton sur le zooplancton et les bactéries; de quantifier l'influence de l'addition de Fe sur les cycles bio-géochimiques des gaz actifs dans la régulation du climat, avec une focalisation sur le CO₂ et le DMS; d'étudier le sulfate atmosphérique, les aérosols sulfatés et leur influence sur les CCN.

Y ont participé 45 scientifiques provenant de 20 institutions, à bord de trois navires. Le site de l'expérience se trouvait au nord-est du Pacifique, en proximité de la Station Océanique PAPA, située à 50° lat. N et 145° long. W, à environ 1500 km ouest de la côte canadienne.

Du point de vue de la circulation océanique de surface, la région de la station PAPA est influencée par le courant chaud du Pacifique Nord et le courant de l'Alaska. L'environnement marin local est caractérisé en été par des eaux de type HNLC. Du point de vue atmosphérique, la région se trouve au nord de la haute pression subtropicale permanente du Pacifique et à l'est de la dépression cvasi-permanente des Aléoutiennes.

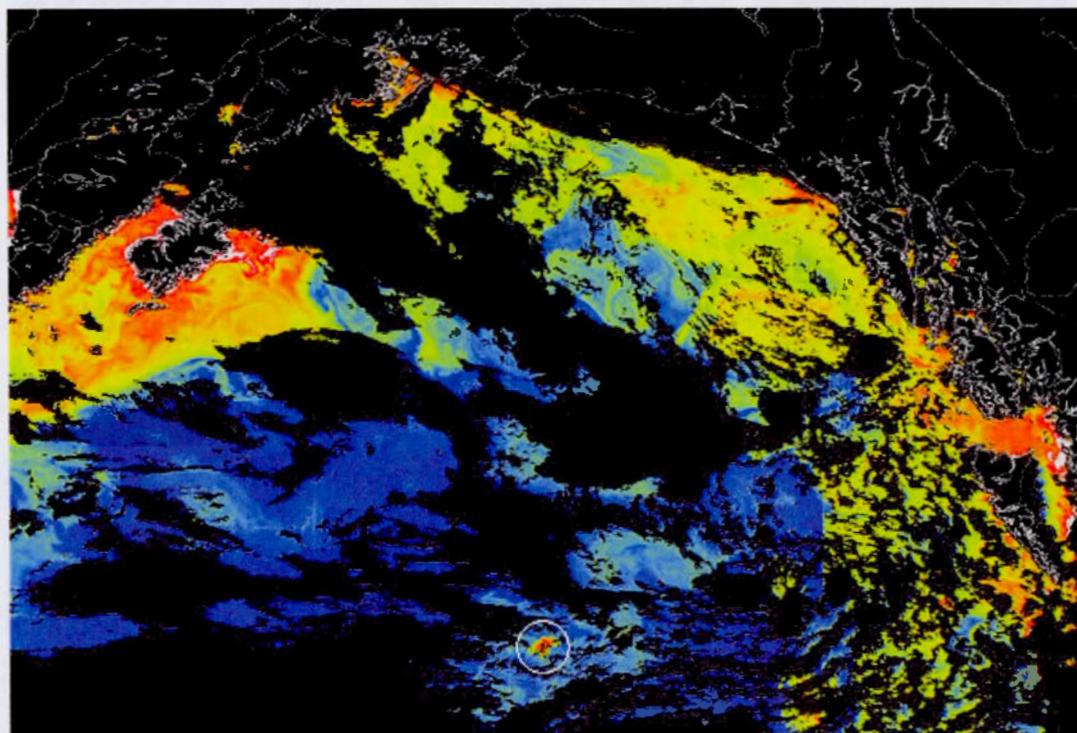


Figure 1.3 La région du Golfe d'Alaska, 29 juillet 2002 (source : SeaWiFS).

Une première injection de Fe dissout a eu lieu le 9 juillet sur une aire initiale d'environ 77 km², jusqu'à 30 m de profondeur, et une deuxième le 16 juillet. Pour pouvoir suivre l'évolution du volume fertilisé, le traceur hexafluorure de soufre (SF₆) a été ajouté au Fe pendant la première injection. La figure 1.3 montre les régions d'activité biologique marine grâce aux couleurs de synthèse dérivées des mesures de

la couleur de l'océan par satellite (SeaWiFS). L'aire fertilisée apparaît dans le cercle blanc.

Les équipes embarquées ont effectué de nombreuses mesures océanographiques, biologiques et atmosphériques, et on a prélevé des échantillons d'eau et d'air pour des analyses subséquentes en laboratoire. Les résultats montrent l'augmentation de la concentration de DMS dans les premières 14 jours de la campagne, tant dans l'eau du volume fertilisé (22 nmol/l) qu'à l'extérieur de celui-ci (19 nmol/l), sans un effet marqué de l'addition du Fe. Puis, la concentration de DMS à l'intérieur du volume fertilisé diminue brusquement pour devenir six fois inférieure à la concentration dans les eaux environnantes. Cette différence suggère que l'addition du Fe a produit une modification du métabolisme des bactéries menant à une consommation accrue du DMSP, précurseur du DMS [Le Clainche et al., 2006].

1.6. But de cette recherche

Dans le présent travail nous nous sommes concentrés sur l'étude de simulations numériques du DMS biogénique comme précurseur des composants sulfatés dans l'atmosphère, sur la période et la région couvertes par SERIES. Un modèle climatique très sophistiqué dans le traitement explicite des aérosols a été utilisé : le modèle NARCM (Northern Aerosol Regional Climate Model).

Le but principal de cette recherche est de simuler la distribution 3D des aérosols à l'échelle synoptique et à méso-échelle dans le Pacifique nord, et de compléter par modélisation numérique les observations SERIES en ce qui concerne l'étude de l'émission et du transport du DMS à l'échelle locale et régionale. Pour y arriver nous étudions :

- les paramètres météo simulés (pression, température, vent, humidité) et les comparons avec les paramètres observés;
- la distribution géographique des régions de forte émission de DMS dans le Pacifique nord;
- le flux simulé de DMS océan-atmosphère, en fonction de la concentration du DMS marin, et le comparons avec le flux provenant des analyses d'observations SERIES;
- les directions de transport et le profil vertical des concentrations de DMS à la station PAPA;
- le profil vertical des concentrations de $[\text{SO}_4]^{-2}$ à la station PAPA;

Les autres objectifs sont :

- de discuter les conclusions de l'équipe SERIES du point de vue de nos simulations;
- d'identifier des manières d'augmenter la précision du calcul du DMS dans le modèle;
- d'ouvrir de nouvelles perspectives pour continuer et approfondir cette étude.

Le présent chapitre nous a offert les informations globales du point de vue conceptuel et historique, dont nous avons besoin pour comprendre la complexité du sujet et la portée des phénomènes qui y sont reliés.

Le Chapitre II fournit la description du modèle NARCM avec emphase sur les aspects physiques et chimiques concernant les aérosols sulfatés, et la description des expériences effectuées. La succession pas-à-pas des étapes à suivre ainsi que des exemples de fichiers de configuration d'expériences seront fournis dans les Annexes.

Les résultats obtenus seront discutés de manière détaillée dans le Chapitre III. On y retrouvera la situation météo régionale durant SERIES et la présentation de plusieurs aspects intéressants sur le DMS et le sulfate.

Finalement, nous présenterons les conclusions de l'étude ainsi que des recommandations et des perspectives pour la suite de la recherche.

CHAPITRE II

MÉTHODOLOGIE

Toutes les simulations dans la présente étude ont été effectuées en utilisant le modèle NARCM – Northern Aerosol Regional Climate Model. Un modèle régional offre des résolutions spatiale et temporelle plus élevées qu'un modèle global, permettant l'étude plus détaillée des phénomènes locaux. NARCM a été développé comme outil d'évaluation de l'influence des aérosols sur l'atmosphère aux latitudes moyennes et hautes, en Hémisphère Nord. Déjà plusieurs études réussies ont démontré les possibilités de NARCM [Spacek et al., soumis; von Salzen et al., 2000; Munoz-Alpizar et al., 2003].

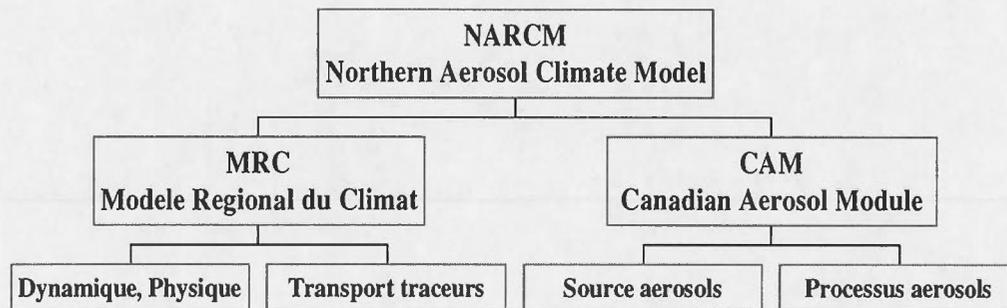


Figure 2.1 Schéma de principe du modèle NARCM

La figure 2.1 montre le schéma de principe du modèle, qui repose sur les 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.

2.1 MRC - La météorologie

La partie météorologique de NARCM comprend la dynamique et la physique.

NARCM [Spacek et al., soumis] est un modèle à aire limitée qui utilise le kernel dynamique de MRCC – Modèle Régional Canadien de Climat [Laprise et al., 1997; Caya et Laprise, 1999]. Il est basé sur les équations euleriennes 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 type Arakawa C et la coordonnée verticale utilise une échelle de hauteur Gal-Chen suivant la topographie. Sur les bords de la grille on peut définir une zone éponge pour la transition entre les données de pilotage et la zone libre du modèle.

Le pilotage (conditions initiales et aux frontières) peut être effectué avec les résultats de simulation de CGCM ou d'autres modèles (NCEP), ou encore avec des données d'analyse d'observations. Le format de fichiers d'entrée / sortie est CCCma.

Les paramétrages physiques sont réalisés avec CGCM - Canadian General Circulation Model [McFarlane et al., 1992]. Y sont considérés les paramétrages pour radiation terrestre et solaire, nuages convectifs, processus de surface, diffusion turbulente, ondes de gravité, ainsi que le module CLASS (Canadian Land Surface Scheme) [Verseghy, 1991; Verseghy et al., 1993]. Les flux turbulents verticaux (mouvement, humidité, chaleur, aérosols) sont calculés à l'aide de la théorie de similarité 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 detraînement sur les flux convectifs de masse [Zhang et McFarlane, 1995].

2.2 Le module CAM

La partie chimique est assurée par CAM (Canadian Aerosol Module) [Gong et al., 2003]. NARCM traite les aérosols de façon prédictive explicite à l'aide du module CAM. Le modèle prend en considération les caractéristiques intrinsèques des aérosols, leurs transformations et leurs interactions avec d'autres composants de l'atmosphère.

La version la plus récente du CAM inclut cinq espèces d'aérosols: 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 (Tab. 2.1). Tous les processus physiques et chimiques sont définis en fonction du rayon des particules, y compris la nucléation, la condensation, la coagulation, l'accrétion, les interactions aérosol-nuage, les dépositions sèche et humide.

Tableau 2.1 Les catégories de taille des aérosols en CAM

Groupe	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII	IX	X	XI	XII
dimensions	0.005	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64	1.28	2.56	5.12	10.24
(μm)	0.01	0.02	0.04	0.08	0.16	0.32	0.64	1.28	2.56	5.12	10.24	20.48

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.

Dans cette présentation du modèle nous décrivons seulement le traitement des aérosols sulfatés, puisque ceux-ci sont l'objet de la présente étude. Les 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 des précurseurs peut être anthropique (SO_2 et $[\text{SO}_4]^{-2}$) ou naturelle (DMS et H_2S), océanique ou terrestre. Le DMS et le SO_2 sont soumis à l'oxydation en ciel clair et dans les nuages. L'Annexe A présente les processus chimiques et microphysiques inclus dans CAM.

2.2.1 Inventaires

Les émissions de différentes espèces de gaz et d'aérosols à base de soufre ont fait l'objet de nombreuses campagnes de mesures dont les résultats ont été consolidés dans des inventaires. CAM utilise ces inventaires.

Le H_2S et le DMS biogéniques continentaux proviennent d'un inventaire de flux moyens saisonniers de surface à résolution de $1^\circ \times 1^\circ$ [Bates et al., 1992]. Le précurseur gazeux SO_2 et le $[\text{SO}_4]^{-2}$ primaire, les deux d'origine anthropique, proviennent 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].

Le DMS océanique provient d'une base de données globale de concentrations moyennes mensuelles dans l'eau de surface, à résolution de $1^\circ \times 1^\circ$, obtenues par interpolation heuristique à partir d'environ 16000 valeurs d'observation [Kettle et al., 1999]. Par conséquent, si la moyenne globale est assez robuste due au nombre élevé de valeurs utilisées, la concentration estimée reste très incertaine pour des régions ou mois pour lesquelles il n'y a pas de mesures. Nous avons décrit plus en détail cette base de données dans le chapitre Introduction. Dans le modèle le flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère est calculé en utilisant un schéma de transfert de masse.

La concentration des oxydants (NO_3 , OH, O_3 , H_2O_2) provient d'une moyenne journalière sur une maille 3D globale, calculée par le modèle MOZART (NCAR) [Brasseur et al., 1998] pour une année entière et est importée en CAM. Les concentrations du OH et du NO_3 en atmosphère dépendent de la radiation solaire. Pour simuler cette dépendance dans CAM, il faut leur imposer une forte variation diurne, synchronisée avec le cosinus de l'angle zénithal solaire et en gardant les moyennes journalières égales aux valeurs importées de MOZART. Ainsi on obtient le maximum d'importance du OH pendant le jour, et du NO_3 pendant la nuit.

L'utilisation des valeurs importées pour les oxydants, non-calculés à chaque pas de temps, et donc non-synchronisés avec la météorologie (précipitations, nuages, radiation) affecte la distribution spatiale et la disponibilité des oxydants, et par la suite affecte aussi la distribution des précurseurs et la chimie du soufre en ciel clair et dans les nuages.

2.3 Description des expériences

NARCM est un modèle sophistiqué qui simule un grand nombre de paramètres météorologiques et d'aérosols. Cela signifie qu'une intégration est fortement consommatrice de ressources en calcul numérique. Il faut donc préparer soigneusement chaque simulation, pour optimiser l'utilisation des ressources et réduire ainsi la durée de chaque intégration. Premièrement, nous avons choisi la résolution, le domaine vertical et l'étendue horizontale des grilles qui seront utilisées (fig. 2.2). Une première simulation initiale a été nécessaire à titre exploratoire, pour nous familiariser avec les patrons synoptiques et le comportement des aérosols en fonction de la géographie dans la grande région du Pacifique du Nord. Cette simulation (I), sur une grille à résolution horizontale de 100 km à 60° latitude N, sur 22 niveaux verticaux et à résolution temporelle de 20 minutes (tab. 2.3), couvre une aire très étendue en incluant l'est de l'Asie, tout le Pacifique du Nord et l'ouest de

l'Amérique du Nord. Une deuxième simulation (II), sur une grille à résolution horizontale de 50 km à 60° latitude N, sur 29 niveaux verticaux et à résolution temporelle de 15 minutes, était destinée à nous montrer plus de détail sur la région du Pacifique du Nord-est et du Golfe d'Alaska. Elle inclue la côte ouest de l'Amérique du Nord, y compris le sud de l'Alaska et les Iles Aléoutiennes. Finalement, une troisième simulation (III), à méso-échelle sur une grille à résolution horizontale de 10 km à 60° latitude N, sur 29 niveaux verticaux et à résolution temporelle de 3 minutes, couvre seulement la zone océanique autour de la station PAPA.

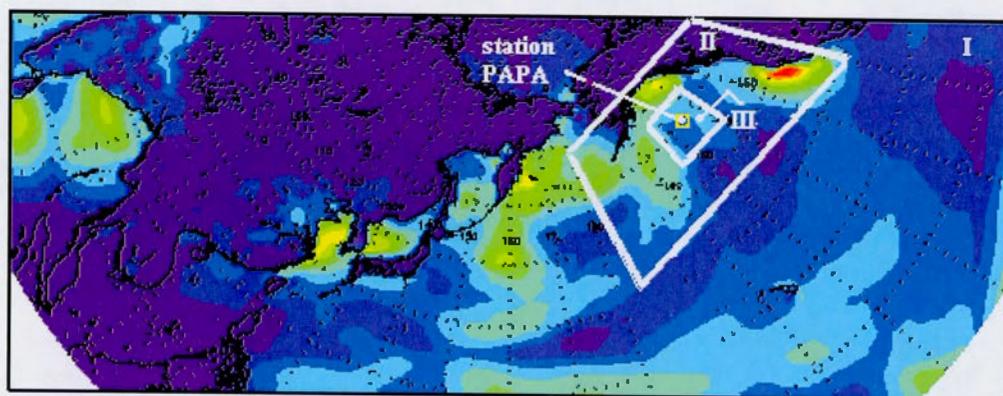


Figure 2.2 Les trois domaines utilisés : I, II et III

Le domaine d'intégration est rectangulaire sur une grille stéréographique polaire. Pour passer de la résolution la plus grossière à la résolution la plus fine nous avons utilisé la technique des simulations « en cascade ». Cela signifie que pour la première simulation le pilotage aux frontières du domaine, en surface et en altitude, était réalisé avec des données météorologiques provenant de réanalyses. Les deux simulations subséquentes utilisaient chacune les paramètres météorologiques obtenus de la simulation à l'échelle précédente pour le pilotage (fig. 2.3).

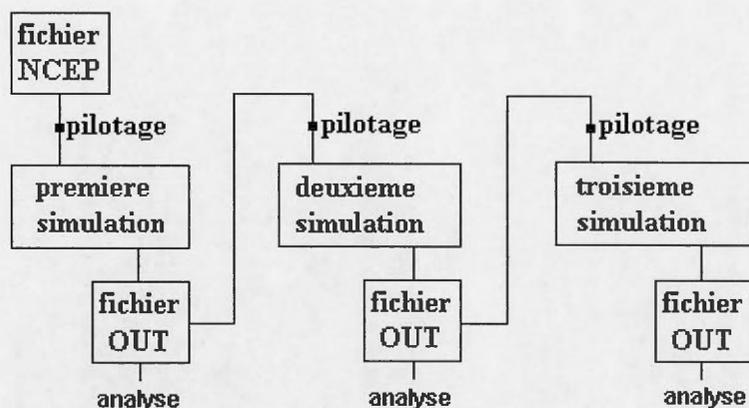


Figure 2.3 Schéma de principe du pilotage des simulations en cascade

La première simulation utilisait pour le pilotage des données de réanalyse NCEP à résolution horizontale de $2,5^\circ \times 2,5^\circ$ et résolution temporelle de 6 heures, sur 22 niveaux verticaux. Le fichier de pilotage était en format standard CCCma et contenait les champs suivants pour chaque niveau vertical: température (TEMP), tourbillon absolu (VORT), géopotential (PHI), humidité relative (RHUM), vent meridional (U), vent zonal (V) et mouvement vertical (OMEG), les champs suivants pour le niveau sigma 0.995 : vent meridional (SU), vent zonal (SV), humidité relative (SR) et température (ST), ainsi que les champs : précipitation totale (PW), pression en surface (PS), pression moyenne au niveau de la mer (PMSL). Pour séparer la contribution anthropique au sulfate total de la contribution biogénique (en vue de mettre en évidence l'importance du transport), la simulation I a été réalisée en trois versions: I-R, simulation de reference comprenant toutes les sources de sulfate disponibles, I-ANT, prenant en charge seulement le SO_2 et le SO_4 primaires (anthropiques) sans les précurseurs DMS et H_2S du sulfate biogénique, et I-NAT, prenant en charge seulement les précurseurs produisant du sulfate biogénique. Cela a été obtenu en réduisant par un facteur $\epsilon = 10^{-30}$, les valeurs lues dans les inventaires que nous ne désirions pas considérer. Nous avons obtenu la concentration de fond du

sulfate d'origine volcanique en soustrayant les concentrations de sulfate anthropique et biogénique (ANT + NAT) de la concentration totale (R). Il faut souligner que nous avons présumé que ces trois simulations sont identiques et que seules les sources de sulfate changent.

Tableau 2.2. Les paramètres des simulations : R – référence, E – expérience, ANT – anthropique, NAT – naturel.

Paramètre	I (R,ANT,NAT)	II (R et E)	III (R et E)
Fichiers pilotage (et leur résolution temporelle)	réanalyses NCEP juin - juillet 2002 (à chaque 6 h)	sortie du modèle (à chaque 6 h)	sortie du modèle (à chaque 1 h)
Résolution horizontale à 60° N [km]	100	50	10
Latitude centre grille	50 N	50 N	50 N
Longitude centre grille	160 E	150 W	145 W
Nombre points en X	211	141	91
Nombre points en Y	81	71	71
Échelle [km]	~ 10.500	~ 3.500	~ 450
Nombre niveaux verticaux	22	29	29
Toit du modèle [m]	34.120	29.042	29.042
Période totale	21 juin-31 juillet	06-30 juillet	09-30 juillet
Spinup [jours]	15	5	3
Pas de temps de l'intégration [s]	1200	900	180
Période analysée	12-30 juillet	12-30 juillet	12-30 juillet

Les deux simulations suivantes utilisent chacune des fichiers OUT contenant : température (TEMP), tourbillon absolu (VORT), géopotential (PHI), humidité relative (RHUM), vent meridional (U), vent zonal (V) et pression moyenne au niveau de la mer (PMSL), paramètres issus de la simulation précédente, conformément à la figure 2.3. Deux ensembles de simulations en cascade ont été effectués. Un premier ensemble (R) avait le rôle de référence et utilisait seulement la base de données de Kettle pour le DMS contenu dans l'eau de surface. Le deuxième (E) prenait en considération la perturbation locale engendrée par la fertilisation. Pour simuler l'effet de la fertilisation nous avons modifié la sous-routine de NARCM responsable du calcul du flux de DMS océan-atmosphère. Nous avons ainsi imposé au modèle les

valeurs de concentration de DMS mesurées dans l'eau de surface, pour les points de grille correspondants à la position géographique de la région fertilisée. Pour les autres points de grille les valeurs de la concentration du DMS sont celles de la base de données de Kettle. Ceci nous a permis de créer une anomalie dans le champ de référence, que nous analyserons par la suite.

La manière pratique de préparer et lancer une simulation est décrite dans les Annexes B et C. Les paramètres de toutes les simulations sont précisés dans le tableau 2.2

Pour nous assurer que le modèle a atteint son régime de fonctionnement d'équilibre nous l'avons laissé tourner pour 1440 pas de temps, période qu'on appelle « spin-up », dont la durée en unités de temps varie en fonction de la résolution temporelle de chaque simulation.

2.4 Analyse des résultats

Le fichier de sortie du modèle, de format CCCma, est trop gros pour être utilisé pratiquement tel quel pour l'analyse des résultats : il contient tous les champs météorologiques et les aérosols sauvegardés durant la simulation et ses dimensions sont de plus de 4 Gb, en fonction de la résolution de la grille et du nombre de niveaux verticaux utilisés. Il faut extraire chacun des paramètres et le placer dans un fichier individuel adapté à l'analyse et à la représentation graphique. Nous nous sommes servis pour cela de programmes et sous-routines spécialisés qui font partie de la plateforme de travail du MRCC et de NARCM (Annexe D). Nous avons enlevé une bordure contenant neuf points de chaque côté de la grille (zone « éponge ») afin d'éviter la prise en considération des données de transition entre pilote et grille du modèle. Pour sélectionner seulement les données correspondant à la période d'intérêt (12-30 juillet 2002) nous avons enlevé la période de spin-up correspondante aux 1440 premiers pas de temps.

NARCM calcule les concentrations de cinq espèces d'aérosols particulés repartis sur douze catégories de taille. Ce sont les champs 05 à 64 dans le tableau 2.3. Les champs 65 à 68, représentant les concentrations des espèces H_2S , DMS, SO_2 , H_2SO_4 en phase gazeuse, sont utilisés comme variables pronostiques.

Tableau 2.3. Les traceurs, leurs noms et leurs unités de mesure.

Traceur	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	kg / m ³
53 - 64	Carbone organique	kg / m ³
65	H_2S	kg / m ³
66	DMS	kg / m ³
67	SO_2	kg / m ³
68	SO_4	kg / m ³
69	H_2O_2	kg / m ³

Pour visualiser, analyser et interpréter les résultats nous avons utilisé les logiciels d'analyse graphique IDPro [IDPro, 2003] et XREC [XREC, 2000]. Les deux sont capables 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. Une conversion de format, de CCCma en RPN, a été effectuée afin de rendre les fichiers accessibles à XREC.

Les données météo d'observation nous ont été utiles aux fins de l'étude des phénomènes en surface seulement. Les équipes SERIES n'avaient pas effectué des mesures en altitude. Les mesures météo de surface habituelles (température, pression, humidité et vitesse / direction du vent) étaient nombreuses, régulières, mais suivaient la trajectoire du bateau. Pour bien caractériser la région du point de vue atmosphérique et capturer l'effet de la fertilisation sur les concentrations de DMS et de sulfate, il aurait été nécessaire d'effectuer des observations sur une aire plus étendue en surface et en altitude, sous le vent par rapport à la zone fertilisée. Pourtant, la plupart des mesures prises durant SERIES étaient destinées aux études océanologiques et biologiques, lesquelles nécessitaient des mouillages prolongés en vue d'observations aux différents paliers de profondeur et de prélèvement d'échantillons.

Le conflit entre le besoin de stationnarité pour les mesures océanographiques (à la verticale, en profondeur) et le besoin de déplacement sous le vent pour les mesures atmosphériques des aérosols (à l'horizontale, en surface), a contraint sévèrement l'étendue géographique décrite par les mesures de DMS marin et atmosphérique.

Les mesures de concentration du SO_2 atmosphérique étaient influencées par la fumée émise par les moteurs Diesel du bateau, et ont été corrigées et calibrées par les équipes respectives pour les rendre utilisables aux recherches. En plus, l'instrument utilisé avait un temps de réponse plus long que les autres instruments, ce qui rendait difficile la vérification de ces mesures par corroboration avec les autres mesures. Les mesures de SO_2 corrigées ne sont donc pas très fiables et la recommandation de les considérer avec prudence avait été émise par les équipes respectives [communication verbale avec N.Shantz, Environnement Canada, 2005]

Le chapitre suivant présentera la discussion détaillée des résultats obtenus avec les simulations NARCM.

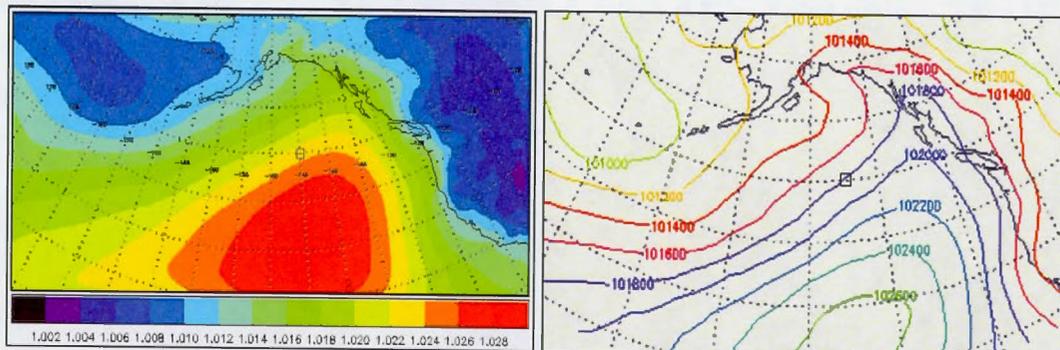
CHAPITRE III

RESULTATS

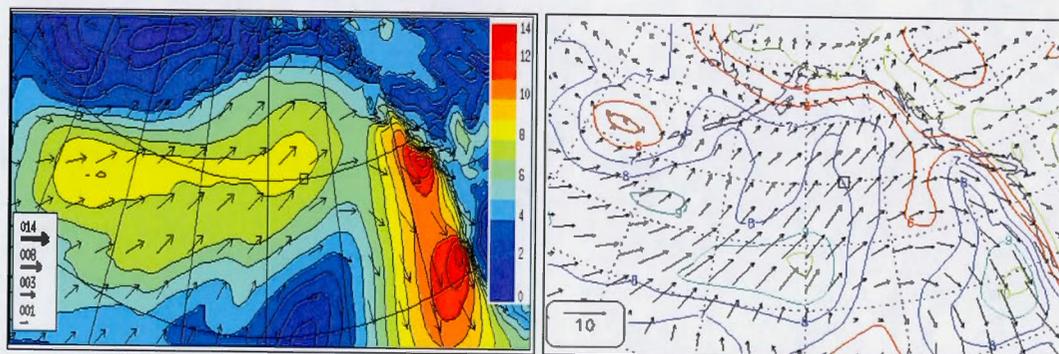
3.1 Situation météo générale

Pour comprendre les échanges océan-atmosphère et les distributions horizontale et verticale des aérosols il faut bien connaître les patrons synoptiques dans la région. La vitesse des vents a une grande importance sur la production, le transport et la déposition des aérosols, tandis que la direction des vents détermine les trajectoires de transport et les régions d'accumulation. Les quantités de sel de mer et de DMS en atmosphère en dépendent directement. L'humidité atmosphérique a une grande importance en ce qui concerne les réactions chimiques et la durée de vie des aérosols dans atmosphère. La plupart des réactions chimiques ont lieu en solution aqueuse ou impliquent des composants qui ont à l'origine la molécule d'eau (H_2O_2 , OH). La pression atmosphérique, par les mouvements verticaux qui y sont associés, présente une grande importance pour le transport vertical des aérosols et le mélange. Le mouvement ascendant déterminé par la convergence dans les régions de basses pressions peut transporter les aérosols à des altitudes considérables. Par contre, le mouvement descendant caractéristique aux régions de haute pression peut maintenir les aérosols confinés dans une couche près de la surface.

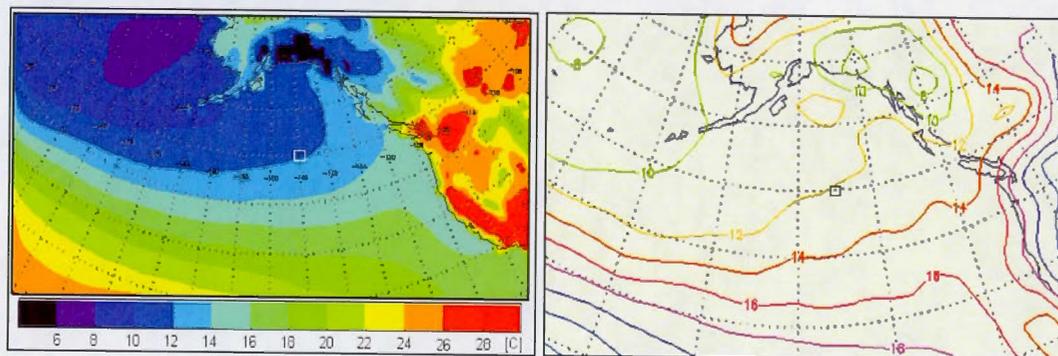
Les Figures 3.1 montrent les cartes de surface des valeurs moyennes de simulation NARCM (figures de gauche) par rapport à celles de NCEP (figures de droite) pour la pression au niveau de la mer (a), le vent (b), la température (c) et l'humidité relative (d). La station PAPA est représentée par le petit carré près du centre de chaque image.



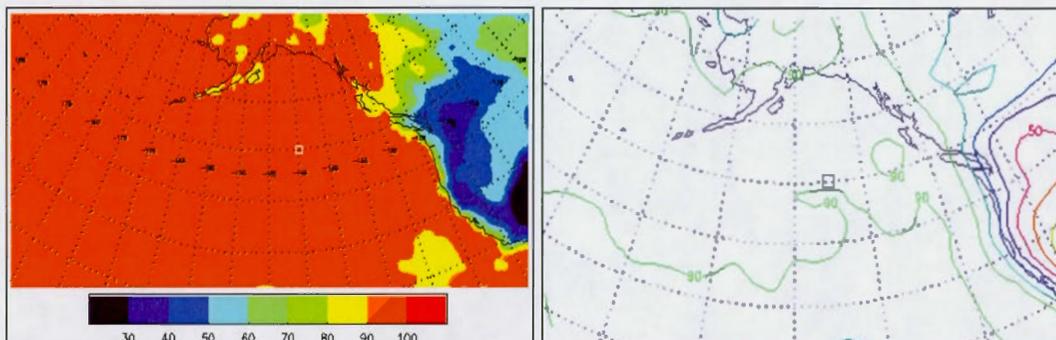
a) pression au niveau de la mer



b) module et direction du vent en surface



c) température en surface



d) humidité relative en surface

Figure 3.1 Cartes des moyennes temporelles simulées : NARCM, expérience II-E (à gauche) et NCEP (à droite)

Les Figures 3.2 a), 3.3 a), 3.4 a) et 3.5 a) fournissent une comparaison entre les séries temporelles de simulations NARCM, de réanalyses NCEP et d'observation SERIES pour chacun des paramètres à la station PAPA (50 N, 145 W)

Dans les figures 3.2 b), 3.3 b), 3.4 b) et 3.5 b) chaque graphique présente les séries temporelles d'observation et de simulation, les moyennes d'observation et de simulation et les lignes correspondant à la moyenne d'observation \pm l'écart type. Nous remarquons que dans tous les graphiques la plupart des valeurs de simulation et toutes leurs moyennes sont à l'intérieur des limites définies par l'écart type de la mesure. Les figures 3.2 c), 3.3 c), 3.4 c) et 3.5 c) montrent les diagrammes de dispersion des observations vis-à-vis les simulations pour chacun des paramètres analysés. L'humidité relative, la vitesse du vent et la température présentent une grande dispersion. La dispersion est réduite pour la pression au niveau de la mer. Le tableau 3.1 montre les maximums, les minimums, les moyennes, les déviations standard et les variances pour chacun des paramètres.

La situation météo dans le Pacifique Nord est dominée par la forte dépression subarctique des Aléoutiennes, très persistante, et par la haute pression subtropicale du Pacifique qui remonte lentement vers le nord durant la période de l'étude. Cette

configuration est à l'origine d'une circulation horizontale de ouest-sud-ouest la plupart du temps, parfois de sud-sud-ouest, en surface et en altitude. La pression au niveau de la mer est la plupart du temps au-dessus de 1013 hPa (Figure 3.2 a), avec une moyenne de simulation de 1021 hPa, légèrement plus haute que la moyenne de réanalyse NCEP (1018.9 hPa) et la moyenne d'observation (1017.6 hPa).

La vitesse du vent se situe le plus souvent au-dessus de 6 m/s pendant la période de l'étude. La direction oscille entre ouest, sud-ouest et sud. Les séries temporelles gardent la même forme générale et la valeur moyenne de simulation (7.3 m/s) est plus proche de la valeur moyenne d'observation (7.5 m/s) que la valeur moyenne de réanalyse NCEP (8.1 m/s).

La température se situe entre 10 et 15° C. La moyenne de simulation (11.7° C) est pratiquement la même que la moyenne d'observation (11.6° C), les deux étant inférieures à la moyenne de réanalyse NCEP (12.6° C).

En ce qui concerne l'humidité relative, la moyenne de simulation est de 97 %, la moyenne de réanalyse de 89 % et la moyenne d'observation de 85 %. Les valeurs maximums dans les trois cas sont 100 % (NARCM), 100 % (NCEP) et 99 % (SERIES).

La couverture nuageuse est presque 100 % en tout temps, avec des nuages bas. Le taux de précipitation est très réduit.

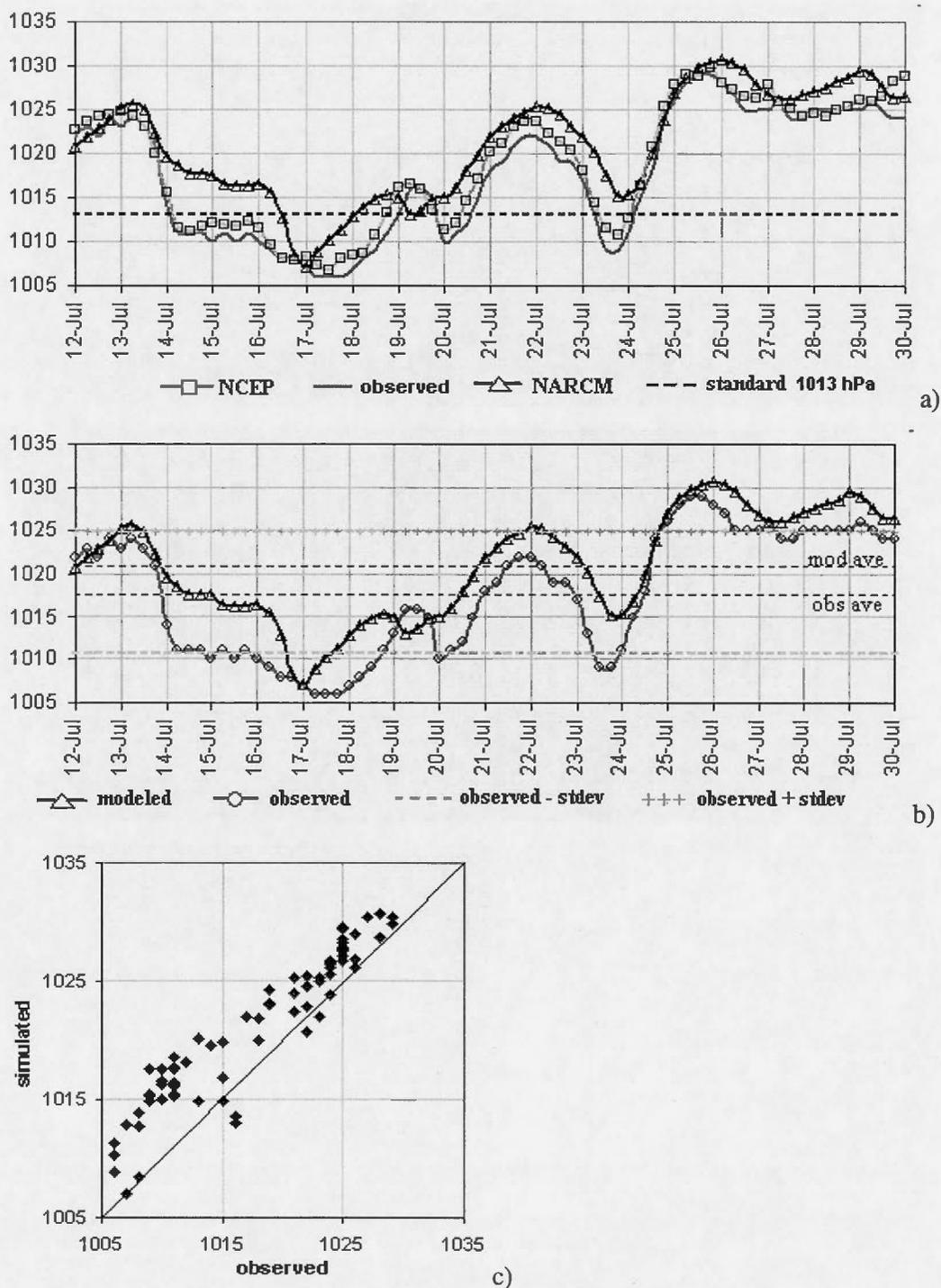


Figure 3.2 Pression au niveau de la mer.

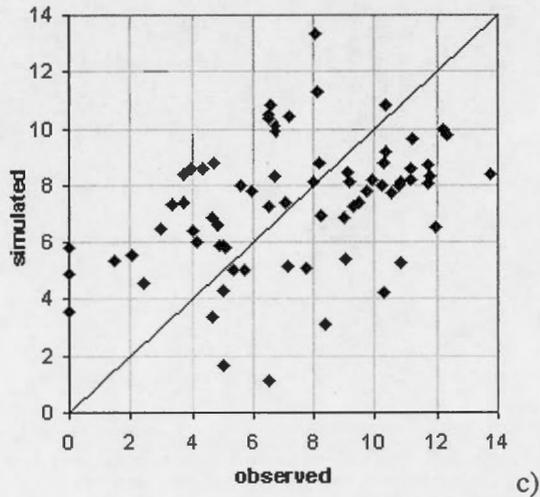
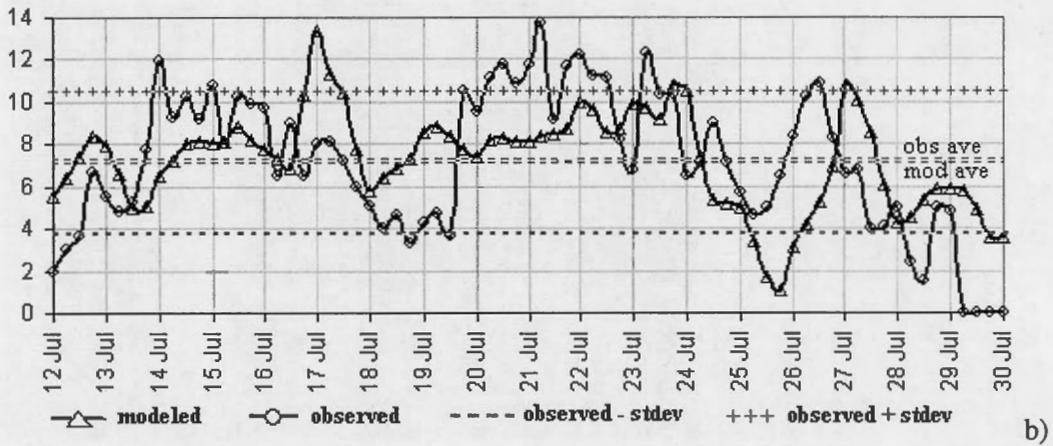
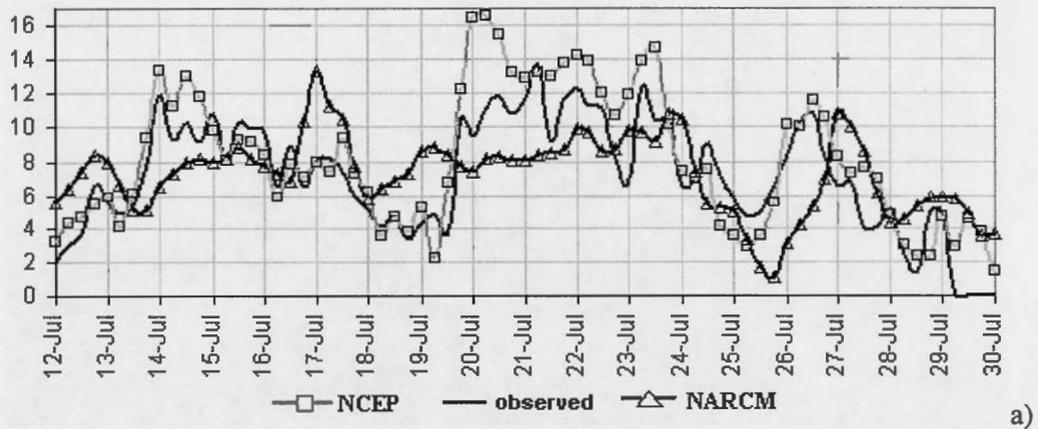


Figure 3.3 Module du vent en surface.

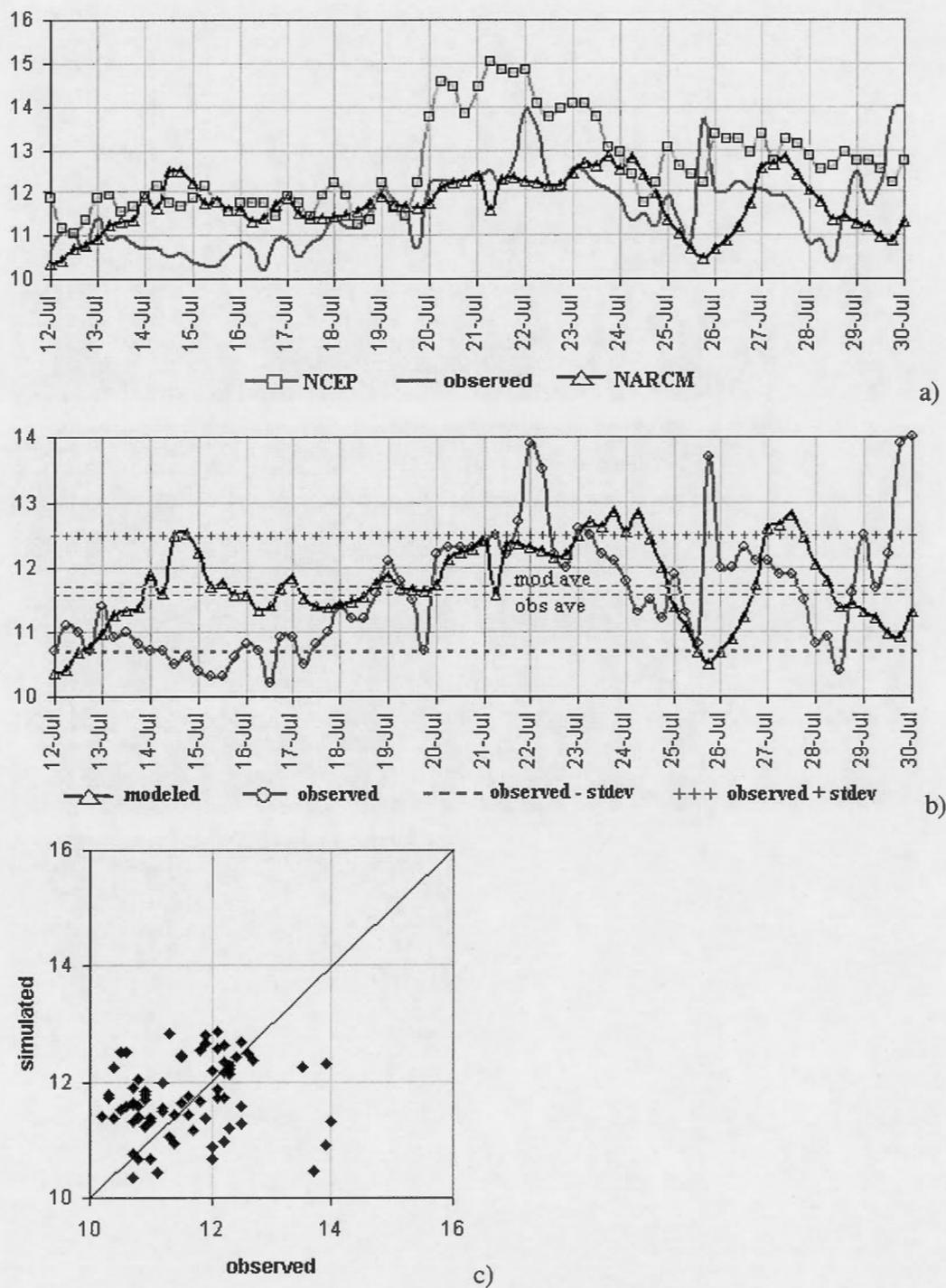


Figure 3.4 Température de l'air en surface.

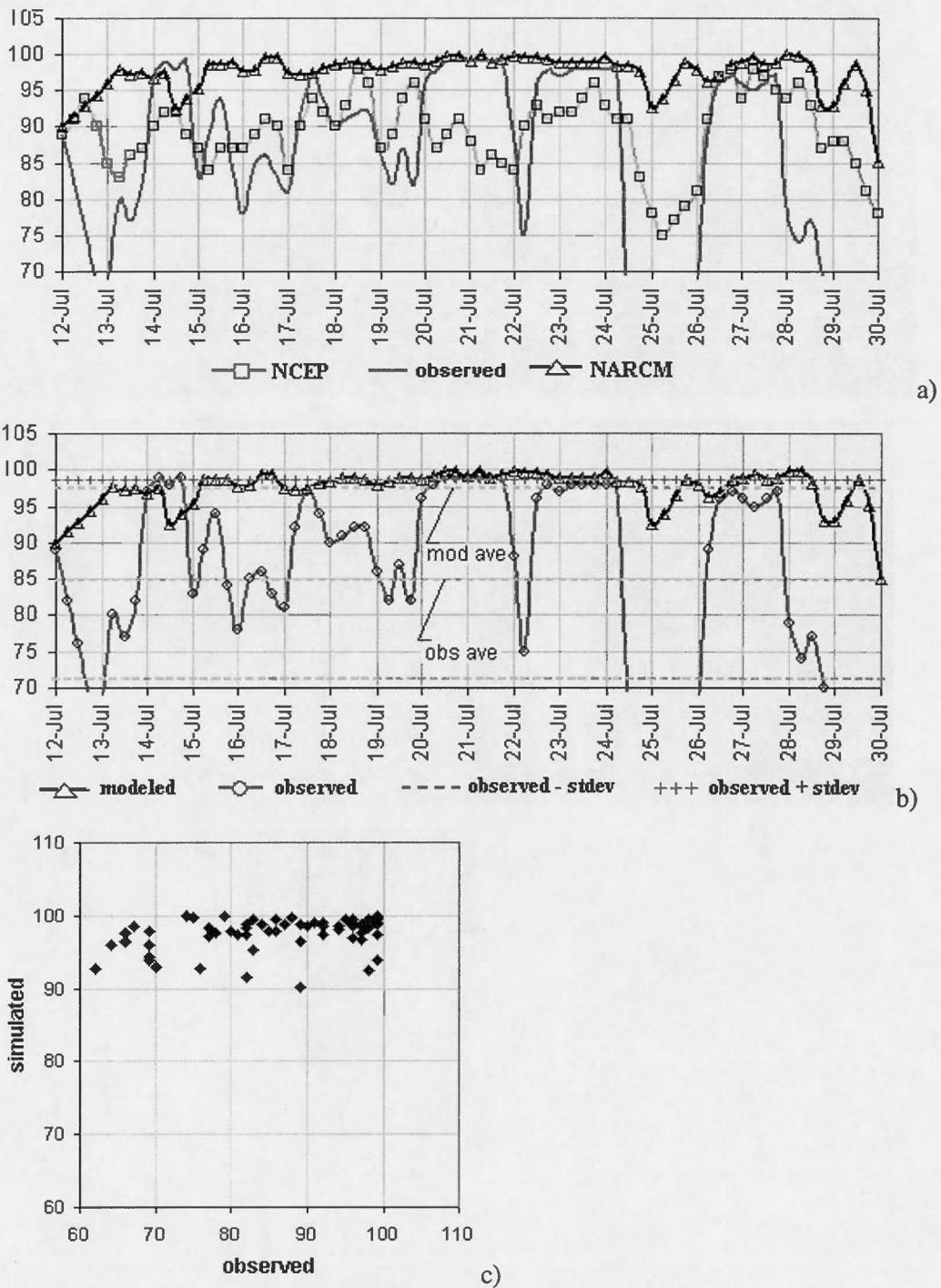


Figure 3.5 Humidité relative en surface.

Tableau 3.1 Valeurs maximums, moyennes, minimums, déviations standard et variances durant SERIES à la station PAPA

a)

pression au niveau de la mer	NARCM	NCEP	Obs.
maximum [hPa]	1030.7	1029.8	1029.0
moyenne [hPa]	1021.0	1018.9	1017.6
minimum [hPa]	1007.0	1006.7	1006.0
déviati on standard [hPa]	6.2	7.1	7.1
variance	38.2	49.9	50.7

b)

module du vent	NARCM	NCEP	Obs.
maximum [m/s]	13.3	16.8	13.7
moyenne [m/s]	7.3	8.1	7.5
minimum [m/s]	1.1	2.0	1.5
déviati on standard [m/s]	2.3	4.0	3.4
variance	5.3	16.1	11.4

c)

température en surface	NARCM	NCEP	Obs.
maximum [°C]	12.9	15.0	14.0
moyenne [°C]	11.7	12.6	11.6
minimum [°C]	10.4	11.0	10.2
déviati on standard [°C]	0.6	1.0	0.9
variance	0.4	1.1	0.8

d)

humidité relative	NARCM	NCEP	Obs.
maximum [%]	100	100	99
moyenne [%]	97	89	85
minimum [%]	85	85	47
déviati on standard [%]	2.7	5	13.8
variance	7.2	27	190

Dans tous les cas, la plupart du temps le calcul de NARCM se trouve à l'intérieur du domaine de précision de mesure estimée en utilisant l'écart type. Ces comparaisons nous permettent de conclure que le modèle reproduit de manière raisonnable la situation météorologique dans la région d'intérêt.

3.2 Aérosols

L'air de la région SERIES est de type marin non-pollué. La production locale d'aérosols est presque exclusivement naturelle. Il est possible que de la suie, du SO_2 et d'autres aérosols ou précurseurs d'origine anthropique soient produits occasionnellement par des bateaux passant dans la région.

Les sources naturelles d'aérosols ou de leurs précurseurs y sont l'eau salée et les organismes. Cela fait que les deux types d'aérosols naturels produits localement soient le sel de mer et le sulfate. La partie anthropique du SO_2 et du $[\text{SO}_4]^{-2}$ et toute la suie, ainsi que plusieurs aérosols organiques et la poussière sont dues au transport atmosphérique à partir des régions lointaines, principalement de l'Asie. Dans cette étude nous nous attarderons au DMS comme unique précurseur biogénique local du sulfate et tenterons de déterminer la contribution locale, régionale et d'origine lointaine au sulfate existant à la station PAPA.

La version de NARCM utilisée ne permet pas le pilotage des aérosols aux frontières du domaine de simulation. La seule manière de considérer les régions d'émissions importantes d'aérosols est donc d'inclure ces régions sélectivement dans la grille de calcul. Notre choix des frontières permet au modèle de prendre en charge uniquement les aérosols produits et transportés à l'intérieur du domaine. De cette manière, dans nos expériences, nous avons simulé l'émission de DMS, l'émission / production de SO_2 et $[\text{SO}_4]^{-2}$ et leur transport, à l'intérieur du domaine seulement, en excluant

explicitement les contributions dues au transport des aérosols provenant de l'extérieur du domaine.

3.2.1. Flux de DMS

Le flux de DMS océan-atmosphère est fortement lié au DMS disponible dans l'eau de surface et à la vitesse du vent (section II.2.2). Par la suite, les régions de l'océan fortement émettrices de DMS sont les régions où il y a une intense activité biologique productrice de DMS et qui sont balayées par des vents forts. Les plus importantes régions productrices de DMS dans le Pacifique Nord, presque permanentes, sont l'ouest de la Mer de Béring et les eaux autour des Iles Aléoutiennes. Par moments, la côte ouest de l'Amérique du Nord, du Golfe d'Alaska jusqu'en Californie est parsemée de régions de forte émission. Pour notre étude les régions de la Mer de Béring et des Aléoutiennes présentent une importance capitale à cause de la quasi-permanence des émissions intenses de DMS et de la direction du vent qui détermine le transport du DMS émis et des produits de son oxydation vers l'est, soit vers le site de l'expérience SERIES.

La base de données de Kettle fournit au modèle une moyenne mensuelle de la concentration de DMS dans l'eau de surface (Figure 3.6). Cela veut dire que la version de base du modèle (simulations de référence) ne contient pas les variations à court terme ni les anomalies de la concentration de DMS dans l'eau, correspondant aux variations de l'activité biologique du phytoplancton. Le flux de DMS y est calculé en utilisant la moyenne mensuelle de Kettle (c-à-d, une seule valeur par mois à chaque point de grille), la température de l'eau et la vitesse du vent en surface. Dans la simulation II-E nous avons introduit l'effet de l'activité biologique du phytoplancton. Dans cette simulation la variation du flux est calculée en utilisant la température de l'eau et la vitesse du vent en surface et en tenant compte de la

variation journalière de la concentration de DMS dans l'eau au point de grille correspondant à la région SERIES (une valeur moyenne par jour).

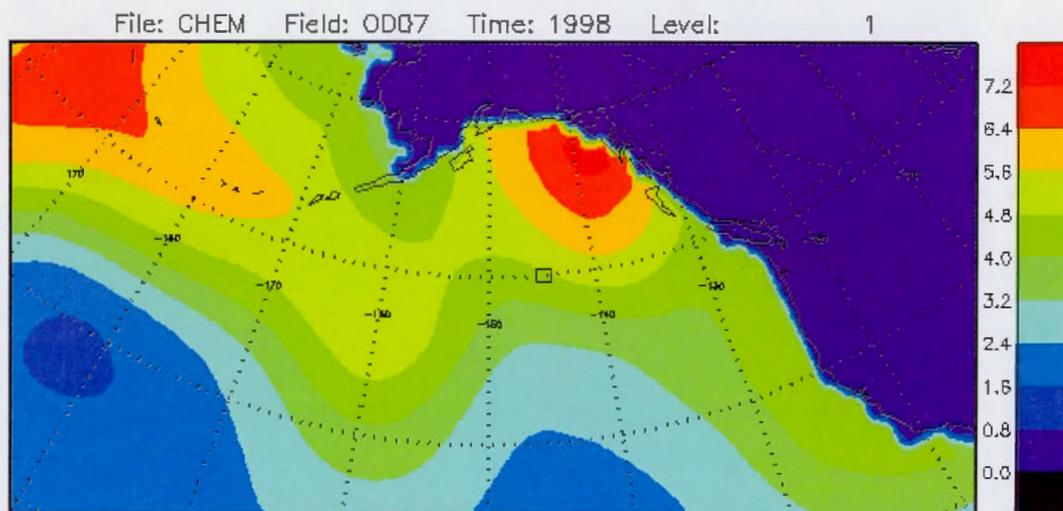


Figure 3.6 Distribution de la concentration de DMS dans l'eau de surface [$\mu\text{mol}/\text{m}^3$], moyenne mensuelle de Kettle pour juillet.

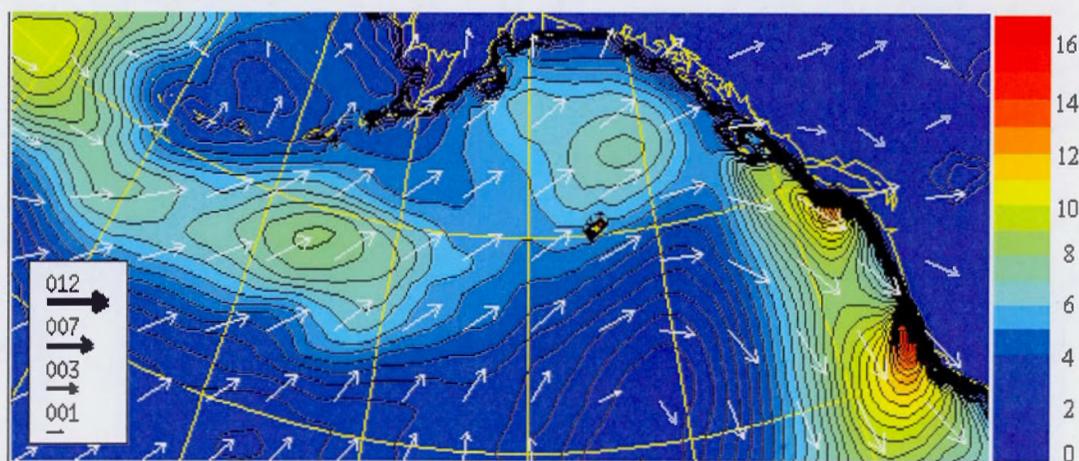


Figure 3.7 Flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$] et module du vent en surface [m/s], moyennes de simulation durant SERIES

La figure 3.7 montre sur la même carte les moyennes temporelles de simulation du flux de DMS et du vecteur vent, issues de la simulation II-E. Les deux points de grille

près du centre de la carte représentent une anomalie d'émission de DMS et correspondent à la zone de la campagne SERIES. Cette anomalie est causée par la différence entre les observations et les approximations de la base de données de Kettle. Elle ne représente donc pas un contraste réel produit par l'expérience SERIES. D'autre part, nous voyons clairement les régions d'émissions importantes de DMS, soit à l'ouest et au sud des Aléoutiennes, dans le Golfe d'Alaska, près de l'île de Vancouver et en proximité de la partie nord de la côte californienne. Par contre, et cela est tout aussi important pour nos simulations, la région au sud de la station PAPA est caractérisée par une beaucoup plus faible émission de DMS.

La figure 3.8 montre une comparaison entre les séries temporelles du flux de DMS obtenues des simulations II-R et II-E et de l'analyse des mesures SERIES. Nous remarquons que les variations des flux des simulations II-R et II-E ont presque le même profil. L'utilisation de la moyenne journalière de la concentration de DMS marin mesurée pour le calcul du flux de DMS dans la simulation II-E, par rapport à l'utilisation de la moyenne mensuelle de Kettle (interpolée) dans la simulation II-R, produit une différence jusqu'à un ordre de grandeur entre les valeurs des deux flux de simulation. Nous remarquons aussi une différence d'allure, le 15 juillet et notamment entre le 25 et le 28 juillet, quand l'ajustement par rapport à la moyenne mensuelle de Kettle a produit une diminution très significative du flux dans la simulation II-E. Les séries temporelles de la simulation II-E et l'analyse des observations montrent une meilleure correspondance en modulation et en amplitude. Cela nous prouve que la base de données de Kettle présente un biais systématique important dans cette région. Il y a aussi une différence de calcul entre le flux de simulation II-E et le flux d'analyse SERIES. Le flux de simulation est calculé par le modèle en fonction du vent à chaque pas de temps et d'une seule valeur journalière (moyenne) de la concentration de DMS dans l'eau. Le flux d'analyse est calculé en utilisant le vent mesuré et des valeurs de la concentration interpolées, les deux à chaque heure. Le

modèle capture donc essentiellement la contribution du vent aux variations du flux de DMS, le long d'un jour.

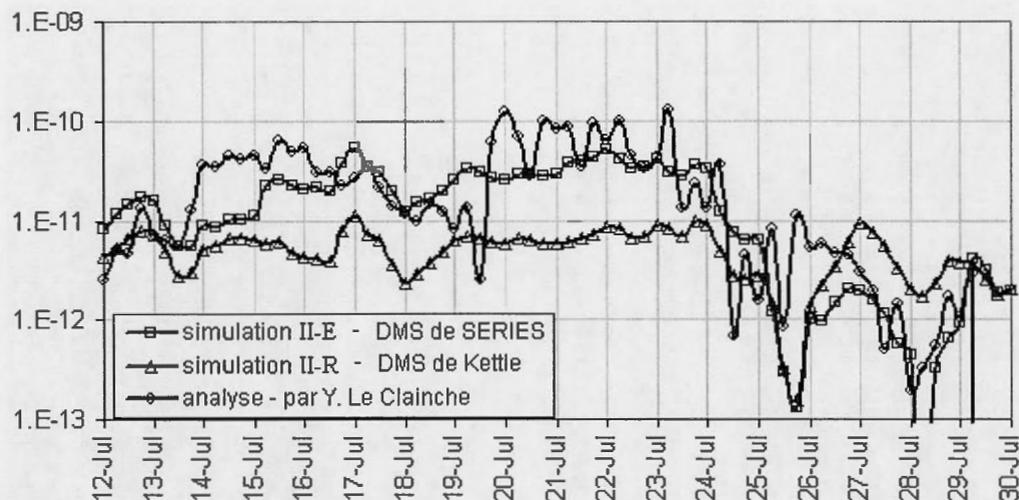


Figure 3.8 Series temporelles du flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$], durant SERIES à la station PAPA.

La figure 3.9 montre les diagrammes de dispersion flux de DMS—module du vent en surface. Le flux de la simulation II-R (3.9.a)) présente moins de dispersion que le flux de la simulation II-E (3.9.b)). Le flux de la simulation II-R est calculé en fonction d'une seule valeur de la concentration de DMS marin (moyenne mensuelle de Kettle) et varie seulement en fonction du vent. Le flux de la simulation II-E est calculé avec des valeurs de la concentration de DMS marin différentes à chaque jour (moyennes journalières d'observation) et donc varie en fonction du vent et de la disponibilité de DMS dans l'eau. Le flux d'observation (3.9.c)) présente plus de dispersion que celui des simulations.

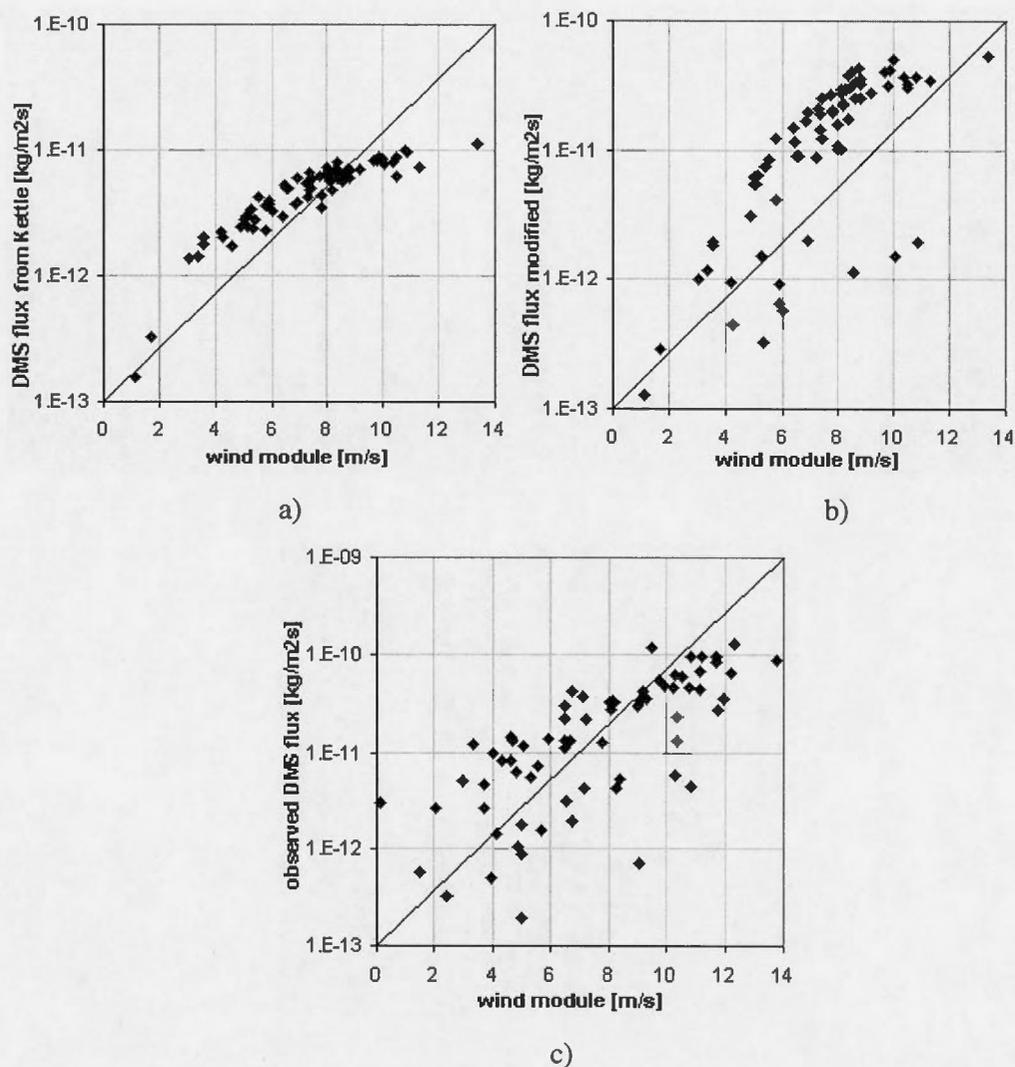
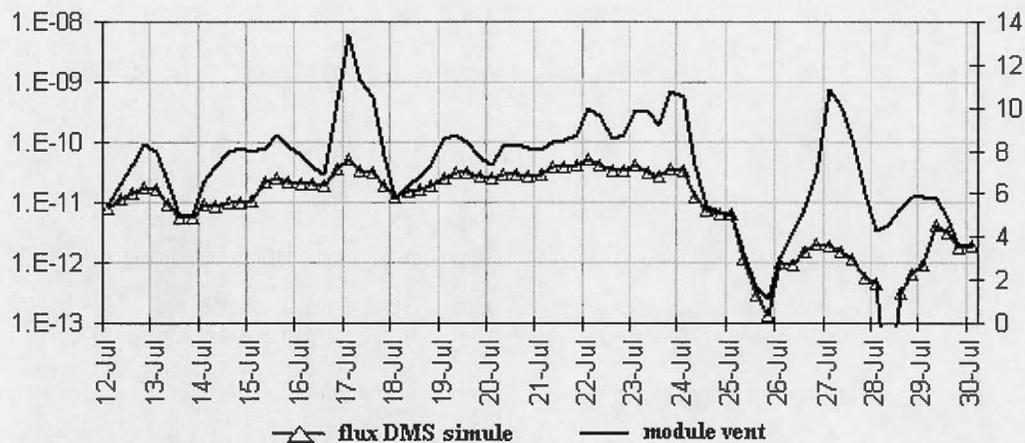


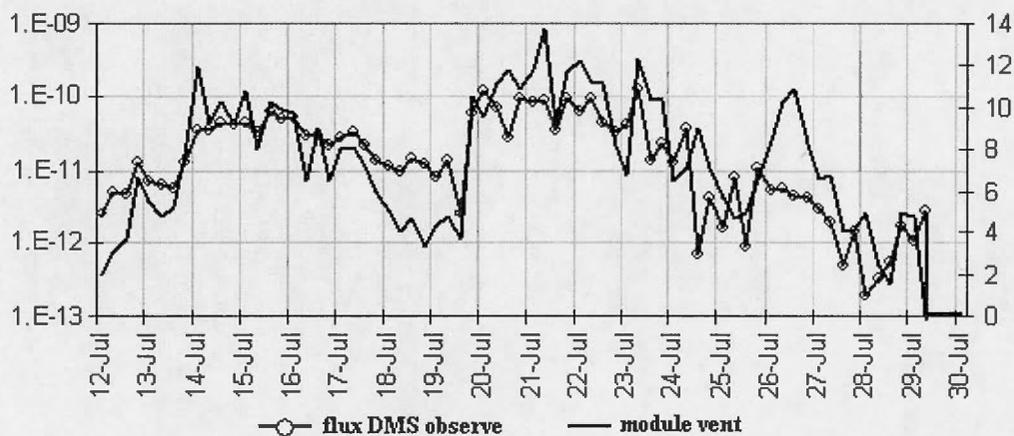
Figure 3.9 Diagramme de dispersion flux DMS – module du vent en surface : a) simulation II-R , b) simulation II-E, c) analyse d'observations

Dans la figure 3.10 a), les séries temporelles obtenues à partir de la simulation II-E montrent que les variations du flux de DMS sont en étroite corrélation avec la vitesse du vent. Conformément à l'équation (II.2) du chapitre sur la méthodologie, le flux de DMS est le produit entre le coefficient de ventilation et la concentration de DMS dans

l'eau. Or, le coefficient de ventilation dépend du carré de la vitesse du vent en surface.



a)



b)

Figure 3.10 Variation temporelle du flux de DMS [$\text{kg/m}^2\text{s}$] et du vent en surface [m/s] : a) simulation II-E, b) analyse SERIES

La variation du flux de DMS suit la variation du module du vent. Le minimum profond ($1.3 \times 10^{-13} \text{ kg/m}^2\text{s}$) du 25 juillet à 18 Z dans la courbe du flux correspond à une vitesse très réduite du vent (1.1 m/s) et à une concentration de DMS dans l'eau de

4.28 nmol/l, comparable à la moyenne mensuelle de Kettle pour cette région (4.80 nmol/l), d'où la bonne concordance entre la simulation et l'observation. Le pic (2.2×10^{-12} kg/m²s) du 27 juillet à 00 Z représente l'effet d'un vent fort (10.8 m/s) même si la disponibilité de DMS dans l'eau est très réduite (1.10 nmol/l). La figure 3.10 b) montre la corrélation entre le flux de DMS et la vitesse du vent pour les données d'analyse SERIES.

Le flux de DMS augmente entre le 19 et le 24 juillet (correspondant aux jours suivant la deuxième fertilisation SERIES) dans les deux simulations (R et E), comme dans les analyses des observations. Le fait que le flux de la simulation R présente une variation semblable à celle de la simulation E, durant la période où le flux provenant d'analyses SERIES augmente, nous confirme que le facteur déterminant pour l'intensité du flux est le module du vent, la concentration de DMS dans l'eau agissant dans une moindre mesure. Les analyses des mesures sur le terrain, qui montrent une mince différence entre les flux de DMS à l'intérieur et à l'extérieur du volume fertilisé [Le Clainche et al., 2005, 2006], viennent appuyer notre conclusion. D'un autre côté, nos résultats raffermissent la conclusion de l'équipe SERIES : il y a eu une augmentation naturelle du flux de DMS sur laquelle la fertilisation est venue se superposer avec un impact limité [Wadleigh et al., 2004; Levasseur et al., 2004]. Cette augmentation naturelle entre le 19 et le 24 juillet était due certainement aux conditions favorables de vents forts, et à l'intensification de l'activité biologique du phytoplancton à l'échelle de la région [Le Clainche et al., 2006, Merzouk et al. 2006].

Tableau 3.2 Flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère à la station PAPA durant SERIES

Flux DMS	Simulations		Observations
	II R (Kettle seulement)	II E (Kettle + SERIES)	Analyse SERIES
Moyen [$\text{kg/m}^2\text{s}$]	5.2×10^{-12}	17.5×10^{-12}	26.7×10^{-12}
Total [kg/m^2]	378×10^{-12}	1270×10^{-12}	1950×10^{-12}

Le tableau 3.2 présente une comparaison entre les flux moyens et les flux totaux correspondant aux simulations II-R et II-E et aux analyses d'observations, pour la période SERIES. Le flux total de DMS émis à la station PAPA entre 12 juillet 00 Z et 30 juillet 00 Z est de $378 \times 10^{-12} \text{ kg/m}^2$ dans la simulation de référence II-E, de $1270 \times 10^{-12} \text{ kg/m}^2$ dans la simulation II-E et de $1950 \times 10^{-12} \text{ kg/m}^2$ dans l'analyse SERIES. En remplaçant la valeur de Kettle de la concentration de DMS dans l'eau par les valeurs d'analyse d'observations à la station PAPA, les flux moyen et total obtenus augmentent de 236 %, un résultat plus réaliste. Ceci confirme les déficiences de la base de données de Kettle pour cette région : les valeurs de la concentration de DMS dans les eaux de surface de l'océan y sont trop petites et ne caractérisent pas les variations de l'activité biologique du phytoplancton.

À la lumière des observations et des simulations, il nous apparaît que les valeurs de la base de données de Kettle pour la région de la station PAPA devrait être corrigées, aussi bien que pour d'autres régions moins connues de l'océan, au fur et à mesure que des nouvelles observations et simulations seront disponibles. Les valeurs actuelles sont des moyennes mensuelles obtenues par interpolation des valeurs des régions voisines à la grande échelle, et ne tiennent pas compte des caractéristiques biochimiques des eaux auxquelles elles ont été assignées. Une résolution temporelle plus fine serait aussi à envisager pour essayer de décrire les variations de l'activité biologique.

Tableau 3.3 Valeurs maximums, minimums, déviations standard et variances pour le flux de DMS durant SERIES à la station PAPA

[kg/m ² s], excepté variance	Simulations		Observations
	II R (Kettle seulement)	II E (Kettle + SERIES)	Analyse SERIES
minimum	0.15×10^{-12}	5.6×10^{-15}	0.19×10^{-12}
maximum	11.4×10^{-12}	53.0×10^{-12}	129×10^{-12}
déviatiion standard	2.4×10^{-12}	14.5×10^{-12}	31.1×10^{-12}
variance	5.7×10^{-24}	211×10^{-24}	966×10^{-24}

Le tableau 3.3 montre que la dispersion la plus importante se situe au niveau des analyses d'observations, et la dispersion la plus réduite se situe au niveau de la simulation de référence. Ces résultats nous suggèrent que la dispersion provient des valeurs de la concentration du DMS marin. Le flux de DMS n'est pas mesuré directement. Il est calculé en fonction de la température de l'eau, de la vitesse du vent et de la concentration du DMS marin. Si la concentration du DMS marin est fixée pour toute la période (moyenne mensuelle de Kettle), le flux de DMS varie seulement en fonction de la température de l'eau et de la vitesse du vent. C'est le cas de la simulation de référence II-R qui présente la dispersion la plus réduite, avec une déviation standard de 2.4×10^{-12} kg/m²s. La déviation standard est environ six fois plus grande (14.5×10^{-12} kg/m²s) pour la simulation II-E, où nous avons utilisé dans le calcul une moyenne journalière pour la concentration de DMS marin. Le module du vent est le même dans les simulations II-R et II-E mais diffère par rapport à celui du vent mesuré. Le calcul du flux d'analyse utilise des valeurs interpolées pour la concentration du DMS marin, ceci pourrait expliquer le fait que la déviation standard pour les analyses des observations SERIES est environ deux fois plus grande (31.1×10^{-12} kg/m²s) que celle de la simulation II-E.

3.2.2. DMS dans l'atmosphère

La figure 3.11 représente la carte des concentrations moyennes de DMS simulées à partir de la base de données de Kettle [1999] (simulation II-E). Les concentrations les plus fortes ($> 4 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$) se trouvent à l'ouest et au sud des Aléoutiennes.

La figure 3.12 présente une séquence où nous superposons le champ vectoriel du vent et la concentration de DMS à 1000 hPa pour montrer l'évolution de cette concentration et le patron de transport du DMS en surface (images de droite). Le vent de la région riche en DMS le transporte généralement vers l'est ou le nord-est. Très souvent, les vents des régions éloignées, plus à l'est, ont de telles directions qu'ils produisent des accumulations ou changent radicalement la trajectoire de transport. La durée de vie du DMS dans l'atmosphère n'est pas connue avec précision, mais la plupart des chercheurs s'accordent qu'elle se situe entre un et deux jours, avant d'être complètement oxydé. Pendant ce temps le DMS peut être transporté à des distances considérables. Un calcul simple montre qu'un vent moyen de 10 m/s peut transporter le DMS à environ 900 km/jour. À chaque point de grille la concentration de DMS comporte une contribution due au transport et une contribution due à la production locale. Il n'y a pas de déposition sèche de DMS, dans le modèle il est complètement converti en SO_2 .

Pour illustrer la manière dont le DMS est transporté par les vents, nous analyserons plus en détail la période 22 - 24 juillet et nous nous limiterons à la distance de transport correspondant à la durée de vie du DMS en atmosphère, soit au maximum deux jours. La figure 3.13 montre deux cartes pour chaque jour concerné : la carte en haut représente les pressions au niveau de la mer et les vents en surface, la carte en bas représente les concentrations de DMS et les vents en surface. Sur les cartes, des pressions au niveau de la mer, nous observons que la haute pression sub-tropicale du Pacifique se déplace le long du méridien de 140 W, tandis que la basse pression des Aléoutiennes change très peu de position.

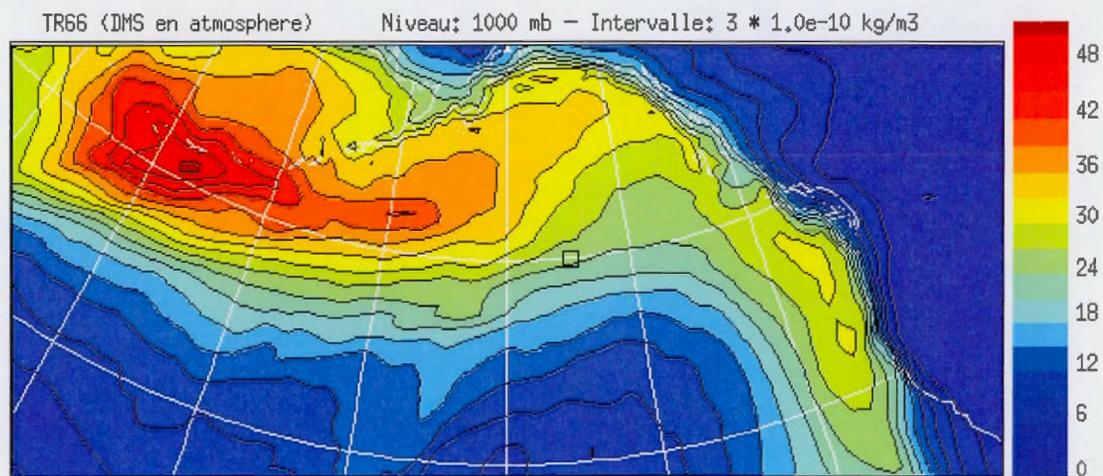
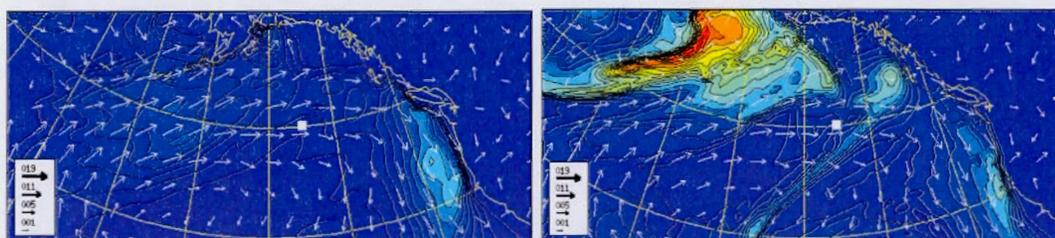
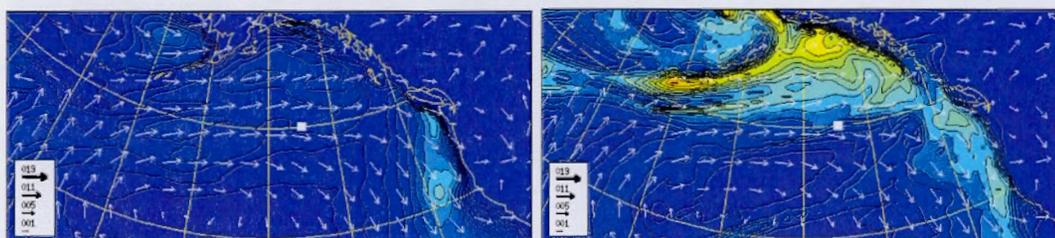


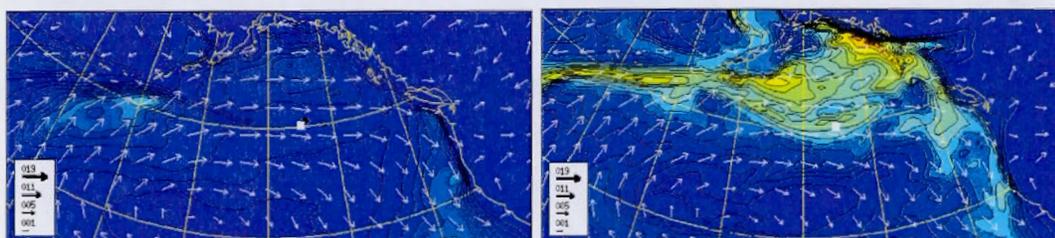
Figure 3.11 Concentration simulée moyenne de DMS durant SERIES, simulation II-E



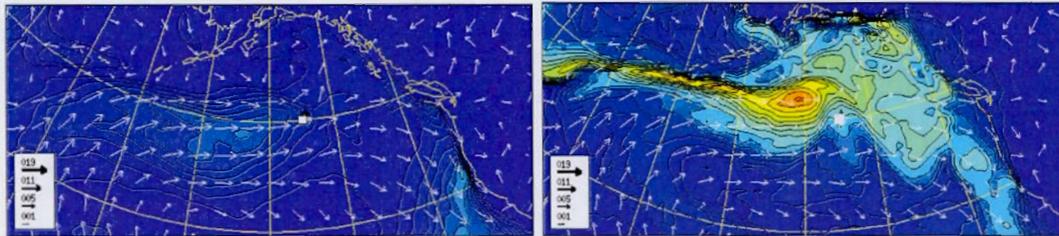
13 juillet, 18 Z



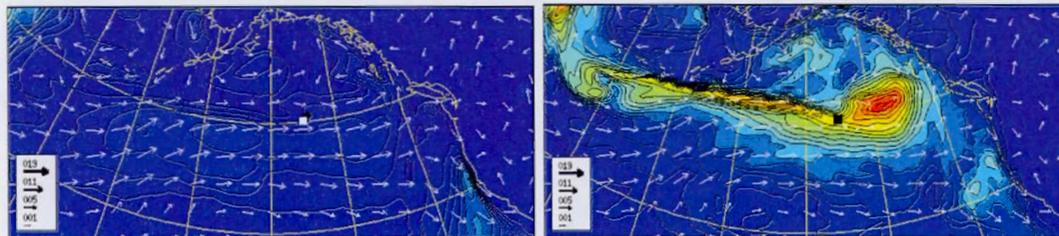
14 juillet, 18 Z



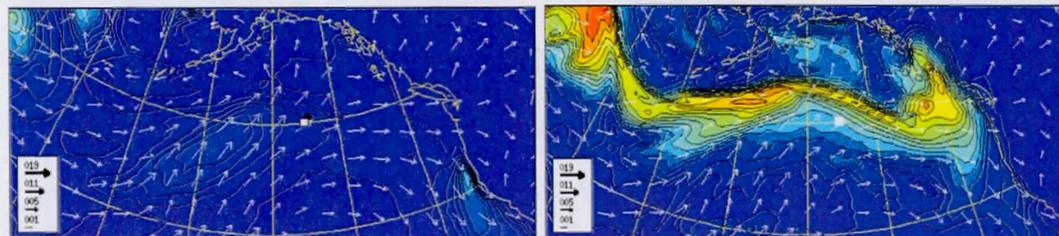
15 juillet, 18 Z



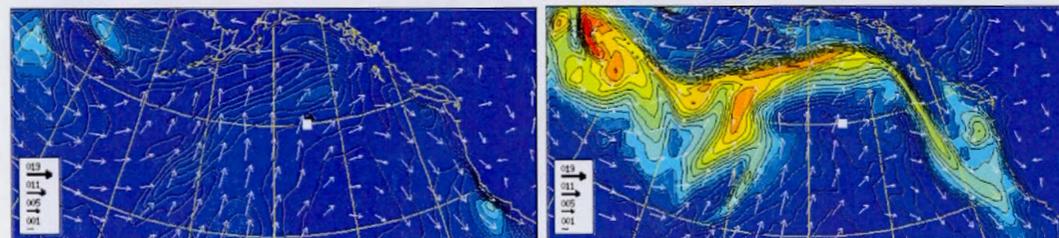
16 juillet, 18 Z



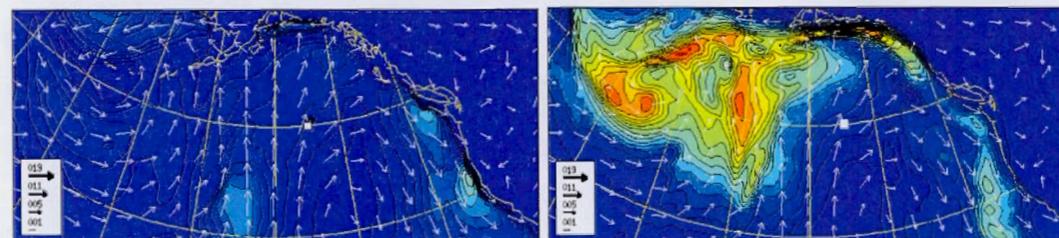
17 juillet, 18 Z



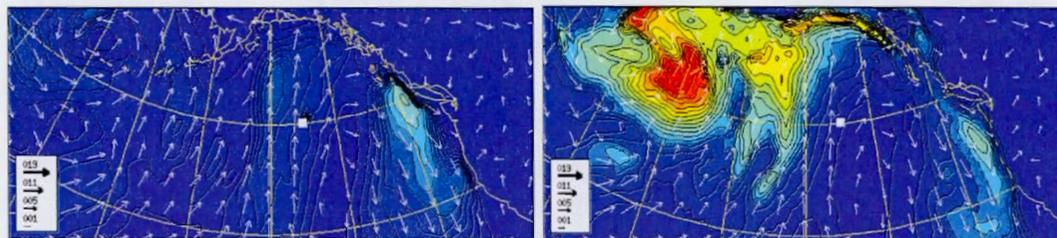
18 juillet, 18 Z



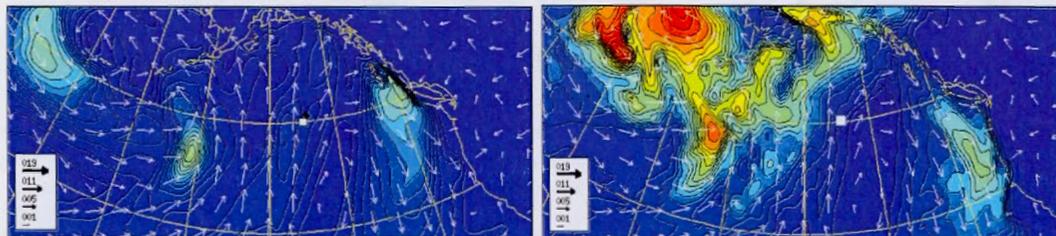
19 juillet, 18 Z



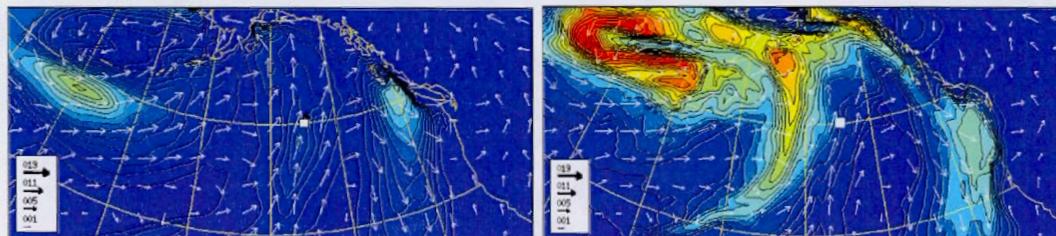
20 juillet, 18 Z



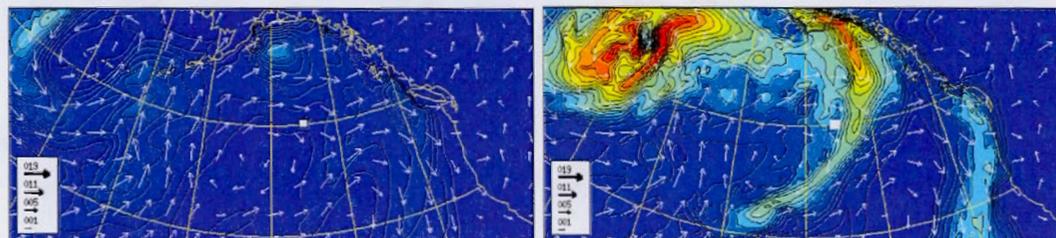
21 juillet, 18 Z



22 juillet, 18 Z

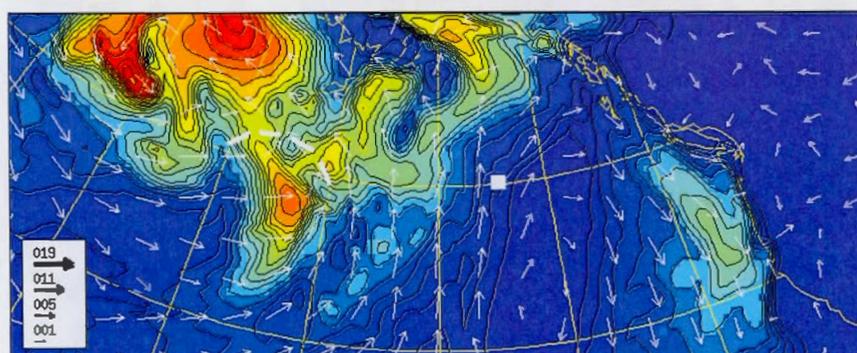
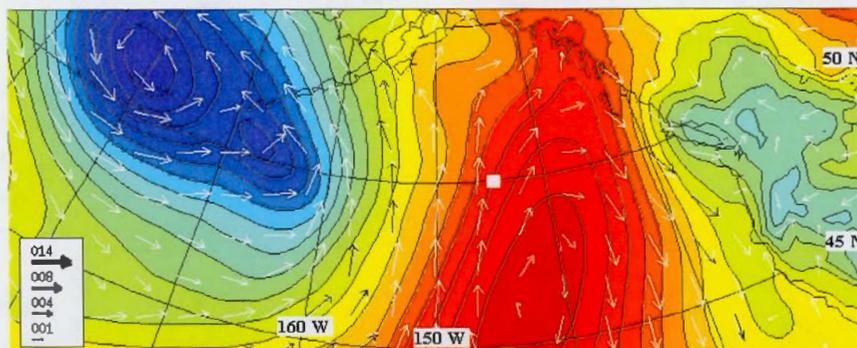


23 juillet, 18 Z

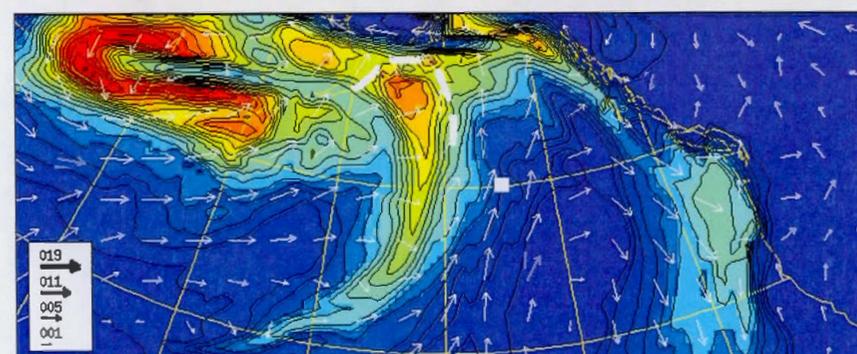
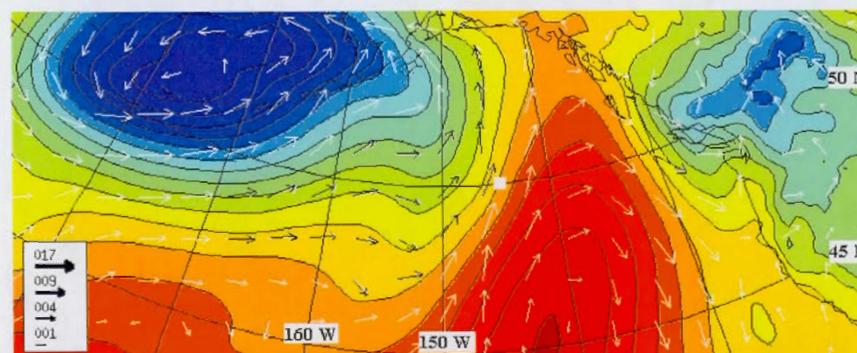


24 juillet, 18 Z

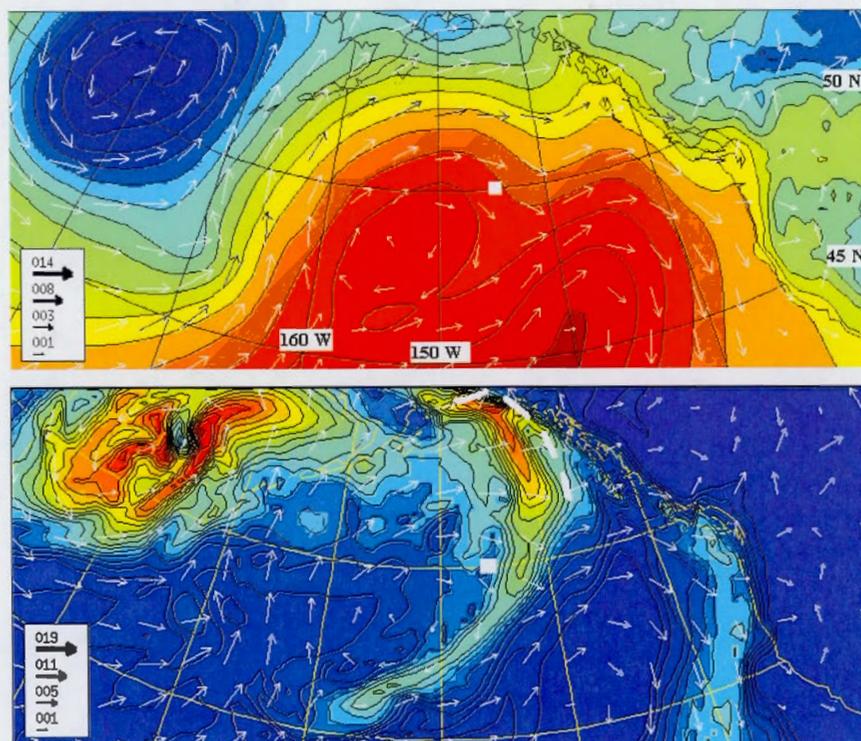
Figure 3.12 - Flux de DMS (colonne de gauche) et concentration de DMS en surface (colonne de droite) à différents moments durant SERIES.



22 juillet, 18 Z



23 juillet, 18 Z



24 juillet, 18 Z

Figure 3.13 Exemple de transport du DMS, 22 – 24 juillet.

Cette configuration détermine dans la région au sud des Aléoutiennes des forts vents qui changent brusquement de direction, d'ouest devenant du sud. C'est la signature d'un front froid. Le 22 juillet 18Z une zone intense d'émission de DMS est localisée dans la région du front, à l'ouest de la station PAPA, entre 45 et 50 N, en proximité du méridien de 160 W, (Figure 3.12, 22 juillet, image de gauche). Devant le front les vents sont du sud, contrôlés par la haute pression, tandis qu'arrière ils sont d'ouest, déterminés par la basse pression. Leur effet sur le DMS émis est un transport lent en direction générale vers l'est, et un allongement du panache en direction nord-sud. Le 23 juillet, la haute pression se déplace vers le sud, et en même temps une autre haute pression apparaît loin, au sud-ouest, entre 160 et 170 W. Cette configuration entraîne le changement de la direction de vents, du sud ils deviennent du sud-sud-ouest à l'avant du panache, d'ouest-nord-ouest à l'arrière. Cela produit un allongement très

accentué du panache, qui a été déplacé par des vents moyens de 9 m/s de la région d'émission dans une région située près du méridien 150W, pour une distance de 750 km. Le 24 juillet, les deux hautes pressions ont fusionné en une seule, de grande étendue. Les vents d'ouest-sud-ouest ont transporté le panache vers l'est pour encore 750 km, son centre passant par-dessus la région de la station PAPA. Le bout nord du panache touche la côte de l'Alaska à 140 W. Le bout sud se trouve près de 45 N et 160 W. Le panache souffre un clivage entre les vents de nord-est à l'arrière et ceux du sud-ouest à l'avant. Le passage du centre du panache par-dessus la région de la station PAPA coïncide avec le maximum apparaissant le 24 juillet sur les courbes de la concentration de DMS dans la figure 3.15 et celle correspondant à la simulation II-E dans la figure 3.17. Nous concluons que les variations de la concentration de DMS qu'on observe sur la figure 3.15 sont surtout d'origine synoptique et non locale.

En comparant entre eux les profils verticaux de la moyenne des concentrations de DMS à la station PAPA (Figure 3.14) pour les trois échelles de grille considérées, nous constatons des différences dans leur amplitude et leur forme. Pour le plus grand domaine (I-R) le maximum moyen de la concentration de DMS atmosphérique en surface est de $3.81 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$ (tableau 3.4). La valeur de ce maximum est très proche de la valeur moyenne observée ($5.12 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$). Dans la grille intermédiaire (II-E) la région de forte émission qui est l'ouest de la Mer de Béring n'est pas incluse, mais la région des Aléoutiennes l'est. Le maximum moyen de la concentration de DMS en surface est réduit à $2.56 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$, soit 67.2 % de celui de la simulation I-R. Enfin, le plus petit domaine (III-E) inclue seulement la région autour de la station PAPA sans aucune région de forte émission et le maximum moyen de concentration en surface y est de $0.48 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$, soit 12.6 % de celui de la simulation I-R et 18.7 % de celui de la simulation II-E. Ceci confirme quantitativement l'origine lointaine du DMS observé durant SERIES.

Le profil vertical correspondant à la simulation I-R montre une concentration moyenne de DMS plus importante en altitude que le profil correspondant à la

simulation II-E (Figure 3.14). Le profil pour la simulation III-E montre seulement une couche mince de DMS, de quelques dizaines de mètres, s'élevant jusqu'à environ 940 hPa. Pour illustrer, on trouve la même concentration de 10^{-12} kg/m³ aux niveaux de 250 hPa dans la simulation I-R, de 400 hPa dans II-E et de 940 hPa dans III-E. Parce que le domaine de simulation n'est pas piloté avec les aérosols aux frontières, le vent transporte seulement le DMS produit à l'intérieur du domaine, sans aucun apport extérieur. Les faibles valeurs de la concentration de DMS dans la simulation III-E correspondent donc à la production locale de DMS.

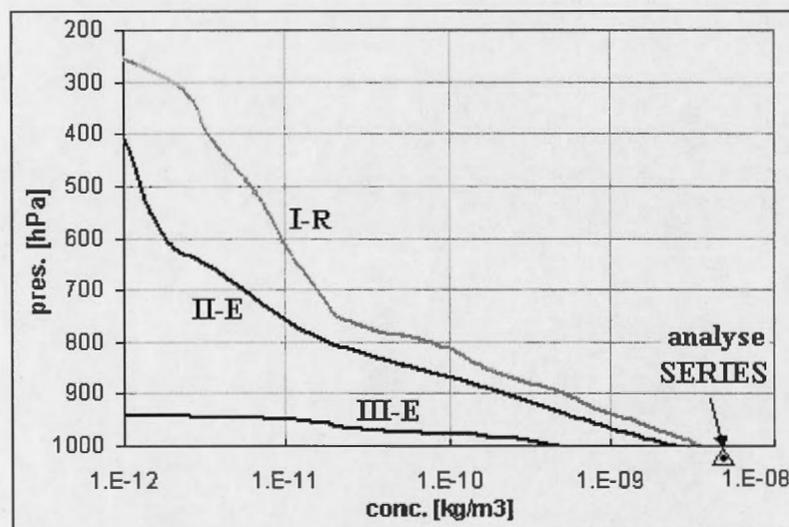


Figure 3.14 Profils verticaux de la concentration moyenne de DMS durant SERIES à la station PAPA.

Les différences entre les profils verticaux démontrent que le facteur transport est dominant et responsable de la majeure partie du DMS existant en surface et de presque tout le DMS en altitude. Dans la région de basse pression des Aléoutiennes, région de forte activité biologique, donc d'importantes émissions de DMS marin, le DMS est transporté à la verticale et mélangé progressivement par convection avant d'être transporté vers l'est et le nord-est survolant toute la région. Une comparaison

entre les simulations I-R et II-E montre que les concentrations moyennes de DMS à 900, 700 et 500 hPa sont de $5.32 \times 10^{-10} \text{ kg/m}^3$, $1.65 \times 10^{-11} \text{ kg/m}^3$ et $7.30 \times 10^{-12} \text{ kg/m}^3$, respectivement $2.21 \times 10^{-10} \text{ kg/m}^3$, $6.12 \times 10^{-12} \text{ kg/m}^3$ et $1.21 \times 10^{-12} \text{ kg/m}^3$. Autrement dit, à la station PAPA, en moyenne, à 900 hPa seulement 41.5 % du DMS provient de l'intérieur du domaine de la simulation II-E, à 700 hPa seulement 37.0 % et à 500 hPa seulement 16.6 %. Ainsi apparaît clairement l'importance de la région des Aléoutiennes comme source de DMS et point de départ du transport de DMS vers le Golfe d'Alaska (la région SERIES) et la côte de l'Amérique du Nord, et que la production locale est fortement dominée par les sources lointaines.

Tableau 3.4 Concentration moyenne de DMS en atmosphère à 1000 hPa durant SERIES à la station PAPA

Concentration moyenne de DMS à 1000 hPa [kg/m^3]			
Simulation (échelle en km)		Observation	
I-R (~10.500)	3.81×10^{-9}	Analyse SERIES	5.12×10^{-9}
II-E (~ 3.500)	2.56×10^{-9}		
III-E (~450)	0.48×10^{-9}		

Le tableau 3.5 montre les valeurs maximum, minimum, les déviations standard et les variances des concentrations de DMS à 1000 hPa, pour les simulations I-R et II-E, ainsi que pour les observations. Les valeurs minimum dans les deux simulations sont pratiquement les mêmes, $0.76 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$, pendant que le minimum observé est de $0.01 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$. Les maximums dans les deux simulations sont très proches, autour de $7.00 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$, pendant que le maximum d'observation est trois fois supérieur, $21.50 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$. Les déviations standard correspondantes aux simulations sont de $1.60 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$ et celle correspondant aux observations est de $4.01 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$. Il faut aussi préciser que les mesures de concentration ne font pas discrimination entre production locale et transport régional

Tableau 3.5 Valeurs maximum, minimum, moyenne, déviations standard et variances pour la concentration de DMS durant SERIES à 1000 hPa à la station PAPA

[kg/m ³] excepté variance	Simulations (échelle en km)		Observations
	I-R (~10.500)	II-E (~3.500)	Analyse SERIES
minimum	0.76×10^{-9}	0.76×10^{-9}	0.01×10^{-9}
maximum	7.15×10^{-9}	6.98×10^{-9}	21.5×10^{-9}
moyenne	3.81×10^{-9}	2.56×10^{-9}	5.12×10^{-9}
déviati on standard	1.61×10^{-9}	1.60×10^{-9}	4.01×10^{-9}
variance	2.60×10^{-18}	2.55×10^{-18}	16.1×10^{-18}

En comparant les séries temporelles du flux et de la concentration de DMS nous remarquons entre le 19 et le 24 juillet une diminution de la concentration même si le vent est assez fort (Figure 3.15). Si la concentration locale de DMS dépendait seulement de la production locale, une augmentation du flux de DMS devrait produire une augmentation de la concentration.

La figure 3.16 présente les composantes u (zonale) et v (meridionale) du vent à 1000 hPa, sur le même graphique. Les valeurs positives de u correspondent à une composante zonale d'ouest et les valeurs positives de v correspondent à une composante meridionale du sud. Les deux composantes sont la plupart du temps positives, ce qui signifie un vent d'ouest ou sud-ouest, très rarement du nord-ouest quand la composante v est négative. Entre le 19 et le 24 juillet la composante v a une valeur moyenne de 13 m/s, est presque constante et domine par rapport à la composante u qui a une valeur moyenne de 5 m/s et diminue constamment pendant toute la durée de l'intervalle. Ce comportement détermine une configuration où le vent change progressivement de direction : du sud-ouest le 19 et le 20 juillet, il est du sud entre le 21 et 24 juillet. Or au sud il n'y a pas de régions proches caractérisées par de fortes émissions de DMS (Figure 3.7 et 3.12). Ainsi, même si le flux émis à la station PAPA est le plus grand de toute la période, la concentration locale de DMS y diminue suite au manque de DMS dans les régions au vent (au sud), et l'effet combiné de la dissipation locale du DMS due au transport vers le nord. Le 24 juillet,

quand le vent est du secteur ouest à nouveau, la concentration de DMS augmente, même si le flux local diminue fortement (Figure 3.15). Le vent apporte de nouveau du DMS de la région des Aléoutiennes (Figure 3.12), à plus de 1000 km à l'ouest de la Station PAPA.

La comparaison entre les séries temporelles de la concentration de DMS à 1000 hPa obtenues des simulations I-R et II-E montre une diminution entre 19 et 24 juillet (Figure 3.17). Durant cette période la concentration correspondant à la simulation I-R est plus élevée et plus variable que celle de la simulation II-E. Il est probable que la différence soit due à l'apport de DMS des régions lointaines du sud, de l'extérieur du domaine de II-E, mais de l'intérieur du domaine de I-R. C'est tout à fait possible, parce que un vent du sud de 13 m/s amènerait du DMS d'une région située à plus de 2.200 km de la station PAPA, avant que celui-ci soit oxydé.

Ce scénario expliquerait partiellement les valeurs élevées de la concentration de DMS mesurée entre le 19 et le 24 juillet. La concentration de DMS à un point donné dépend fortement de la vitesse du vent non seulement en ce qui concerne l'intensité du flux local de DMS mais aussi en ce qui concerne le point de départ du DMS transporté : plus le vent est fort, plus éloignée est la région d'émission d'où le DMS transporté provient, le DMS produit localement étant chassé d'autant plus efficacement. D'un autre côté, il est probable que les émissions de DMS dans la région de la station PAPA aient été plus importantes que celles calculées par le modèle en utilisant la base de données de Kettle (impliquant un biais systématique des concentrations simulées).

Les séries temporelles de la concentration de DMS observée montrent une grande variabilité et des valeurs plus élevées que celles des simulations (Figure 3.17). Ceci est dû à l'utilisation d'une seule valeur par point de grille (moyenne mensuelle de Kettle) pour simuler le flux de DMS à l'étendue du domaine de simulation, autrement dit : le modèle ne peut pas simuler l'activité biologique et ses fortes variations de courte durée qui peuvent relâcher en atmosphère des quantités importantes de DMS susceptible à être transporté par les vents. Dans la nature, la vitesse et la direction du

vent, la quantité de DMS marin, la disponibilité des oxydants sont affectées de variations rapides, ce qui engendre à un point donné des variations de la concentration de DMS que le modèle ne capture pas.

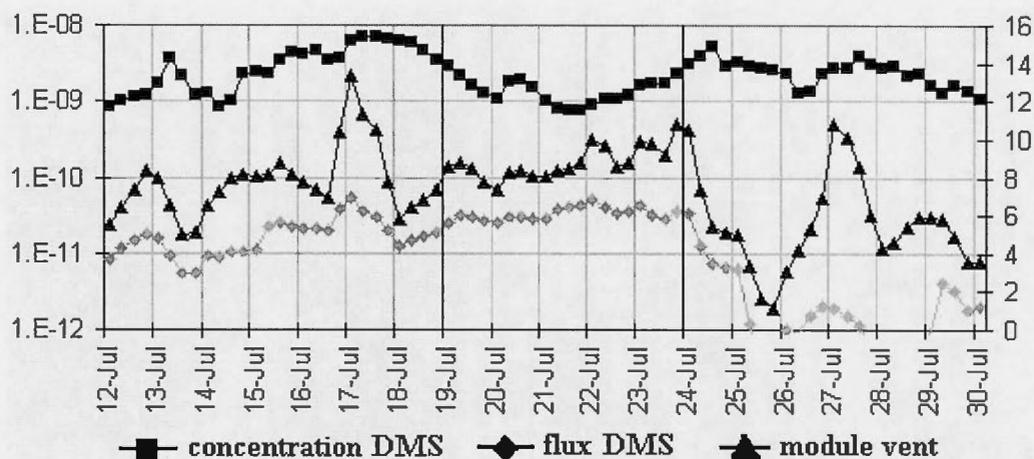


Figure 3.15 Séries temporelles du flux de DMS [$\text{kg}/\text{m}^2\text{s}$], de la concentration de DMS [kg/m^3] et du module du vent [m/s], à la station PAPA durant SERIES, simulation II-E.

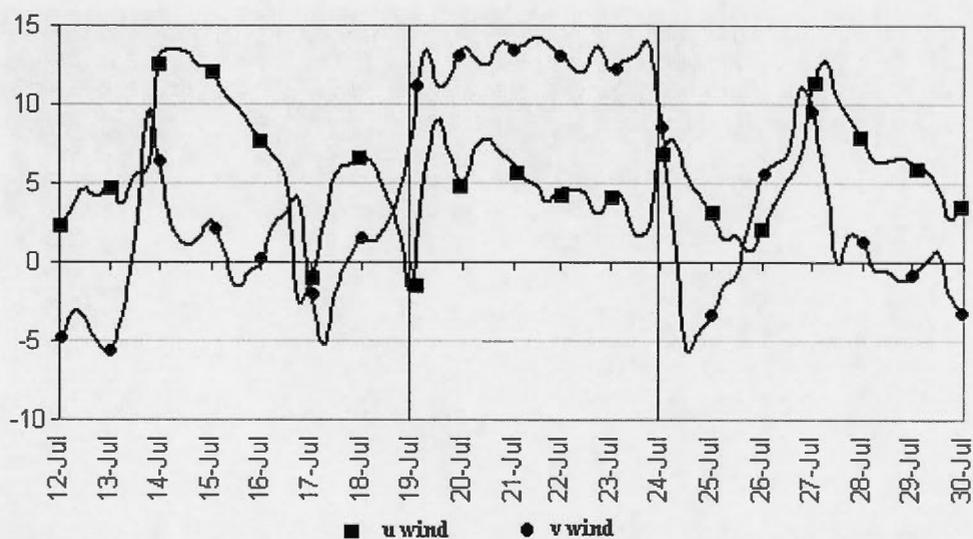


Figure 3.16 Séries temporelles des composants u et v du vent [m/s] a 1000 hPa à la station PAPA, simulation II-E

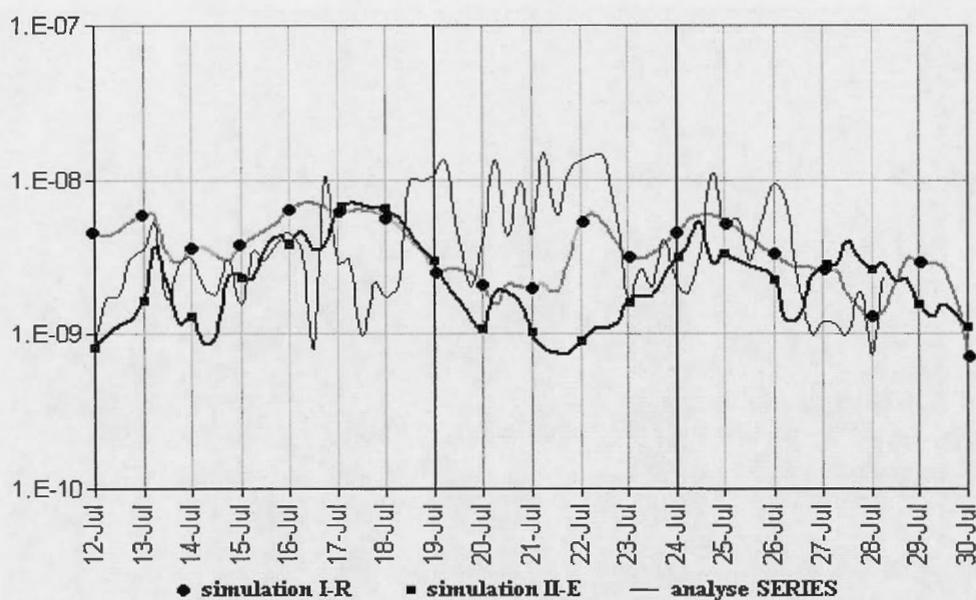


Figure 3.17 Séries temporelles de la concentration de DMS [kg/m^3] à 1000 hPa à la station PAPA.

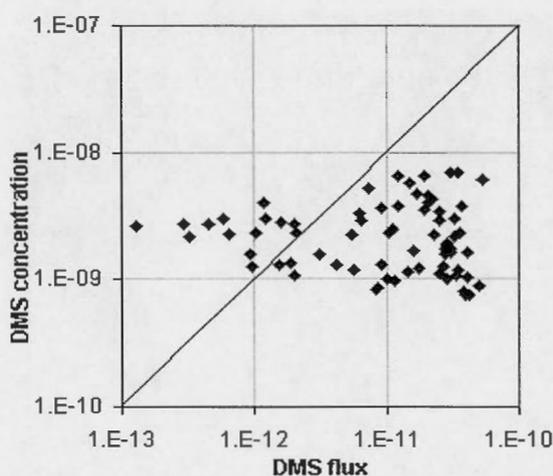


Figure 3.18 Diagramme de dispersion flux [$\text{kg/m}^2\text{s}$] - concentration [kg/m^3] de DMS à 1000 hPa à la station PAPA, simulation II-E.

Le diagramme de dispersion de la figure 3.18 montre que le flux de DMS varie sur trois ordres de grandeur mais la concentration de DMS garde le même ordre de grandeur. Ceci prouve que la contribution du flux local à la concentration de DMS est

très petite par rapport à la contribution du transport. Le flux d'émission local est trop faible pour expliquer le comportement de la concentration de DMS. Nous en déduisons que les variations de la concentration de DMS à la station PAPA sont largement dominées par le transport du DMS à l'échelle de milliers de kilomètres.

3.2.3. Sulfate

Dans cette section nous examinerons les résultats concernant le sulfate provenant de plusieurs sources et responsable de l'altération des nuages et du climat.

Dans le modèle il n'y a pas de source biogénique primaire de SO_2 et $[\text{SO}_4]^{-2}$. Le SO_2 d'origine biogénique est le produit de l'oxydation du DMS par OH ou NO_3 .

Le $[\text{SO}_4]^{-2}$ autour de la station PAPA est dû à la contribution d'origine anthropique (provenant de la côte est de l'Asie et de la côte ouest de l'Amérique du Nord) via le transport par les vents, à la contribution de la concentration de fond du sulfate d'origine volcanique et à la contribution d'origine biogénique via l'oxydation du SO_2 dérivé du DMS marin transporté par les vents. Peu de DMS relâché en atmosphère est oxydé au voisinage des régions d'émission. Cela se passe plutôt en suivant la direction du vent, après environ deux jours, à des distances dépendant de la vitesse du vent. À titre d'exemple, le DMS transporté par un vent moyen de 10 m/s sera oxydé à 1.700 km de la région d'émission.

La comparaison entre les profils verticaux des moyennes de la concentration de sulfate total (Figure 3.19) pour différentes échelles de la grille, montre des différences d'amplitude et de forme des courbes. Pour le domaine le plus étendu, le profil vertical montre une concentration moyenne de sulfate plus importante aux différents niveaux d'altitude, avec un maximum entre 960 et 825 hPa. Le domaine vertical où la production du sulfate par oxydation du SO_2 est la plus efficace est la zone des nuages bas, contenant assez d'oxydants OH et H_2O_2 . Plus l'échelle horizontale du domaine diminue, plus la concentration de sulfate diminue en altitude et en surface. Le profil

correspondant à la résolution la plus fine de la grille montre une couche de sulfate près de la surface, avec une quantité négligeable de sulfate en altitude. Pour illustrer, on trouve la même concentration de 10^{-12} kg/m³ aux niveaux de 125 hPa dans la simulation I-R, de 425 hPa

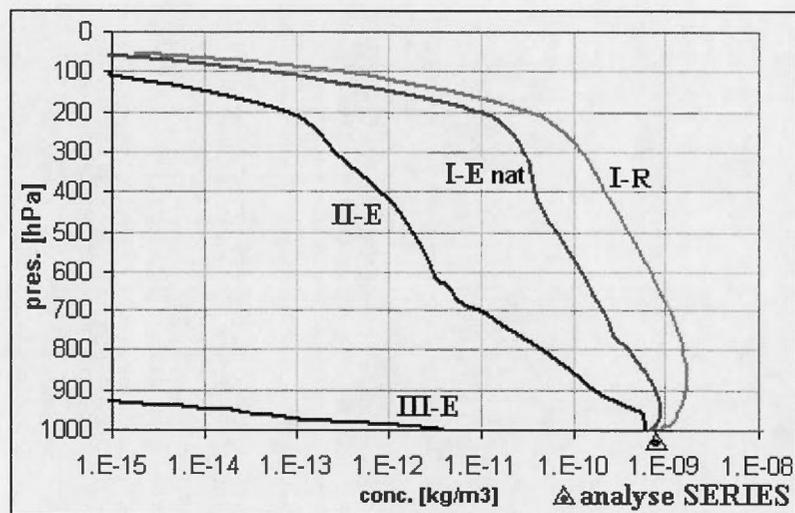


Figure 3.19 Profils verticaux de la concentration moyenne de sulfate durant SERIES à la station PAPA .

dans II-E et de 985 hPa dans III-E. Les différences entre les profils démontrent que le transport est déterminant pour la concentration du sulfate en surface et en altitude, tout comme sur l'apport de précurseurs DMS et SO₂ dont une partie sera oxydée localement pour former du sulfate. Une comparaison entre les concentrations moyennes de sulfate des simulations I-R et II-E montre qu'à 900 hPa seulement 13.7 % du sulfate total provient de l'intérieur du domaine de 3.500 km de la simulation II-E, à 700 hPa seulement 1 % et à 500 hPa seulement 0.5 %. Pour comparaison, sur la même figure 3.19 nous avons représenté aussi le profil du sulfate naturel (biogénique + volcanique) correspondant à la simulation I-R.

En surface le sulfate naturel représente 80.5 % du sulfate total de la simulation I-R, 23.5 % à 700 hPa et 16 % à 500 hPa. La différence entre le sulfate naturel et le sulfate

total représente la contribution du sulfate anthropique. Il devient prédominant par rapport au sulfate naturel au fur et à mesure qu'on monte en altitude. Cela démontre l'importance du sulfate d'origine anthropique, principalement de l'Asie, mais possiblement aussi de la côte ouest de l'Amérique du Nord, sur les nuages au dessus de la couche limite planétaire. La comparaison entre les profils du sulfate naturel de la simulation I-R et du sulfate total de la simulation II-E, prouve l'importance des quantités de sulfate et de ses précurseurs transportés dans la région de la station PAPA par les vents dominants d'ouest, en provenance de la Mer de Béring (région incluse dans le domaine I mais pas dans le domaine II). Pour illustrer, en surface la différence entre les deux concentrations est de 12.5 % alors qu'à 700 hPa elle est de 95.5 % et à 500 hPa de 97 %.

Tableau 3.6 Concentration moyenne de $[\text{SO}_4]^{-2}$ total en atmosphère à 1000 hPa durant SERIES à la station PAPA et contribution de chaque domaine

Concentration de $[\text{SO}_4]^{-2}$ à 1000 hPa $[\text{kg}/\text{m}^3]$					
Simulation (échelle en km)		% de I-R	Observation		% de I-R
I-R (~10.500)	0.844×10^{-9}	100 %	Analyses SERIES	0.790×10^{-9}	- 7.5 %
II-E (~3.500)	0.590×10^{-9}	70.6 %			
III-E (~450)	0.005×10^{-9}	0.6 %			

Le tableau 3.6 montre les valeurs de la concentration moyenne de sulfate total à 1000 hPa. La concentration observée ($0.790 \times 10^{-9} \text{ kg}/\text{m}^3$) est 7.5 % moins élevée que la concentration de la simulation I-R ($0.844 \times 10^{-9} \text{ kg}/\text{m}^3$). Donc en calculant la concentration de sulfate sur le grand domaine incluant une partie importante de l'Asie, le nord du Pacifique et la côte ouest de l'Amérique du Nord, nous obtenons des valeurs en bonne concordance avec les observations. La concentration de la simulation II-E ($0.590 \times 10^{-9} \text{ kg}/\text{m}^3$) en est 29.4 % plus petite et celle de III-E ($0.005 \times 10^{-9} \text{ kg}/\text{m}^3$) en est 99.4 % plus petite. Ces différences, ainsi que la forme des profils, démontrent que la quantité de sulfate produit en surface dans le domaine de 450 km distance de la station PAPA (III-E) est négligeable. C'est le sulfate provenu

de la faible quantité de DMS produit localement (Figure 3.14). Cette contribution ne peut pas expliquer les valeurs d'observation. Une partie de 70.6 % du sulfate provient d'une région située entre 450 et 3500 km à l'intérieur du domaine intermédiaire (II-E). Dans ce domaine il n'y a pas de sources de sulfate ou de ses précurseurs autres que naturelles, cela nous prouve donc que cette partie est constituée de sulfate d'origine naturelle, essentiellement biogénique et volcanique. Enfin, 29.4 % du sulfate provient du domaine le plus étendu, au-delà de 3500 km (I-R). Cette partie est constituée de sulfate d'origine anthropique et naturelle, produit en Asie et dans ses régions côtières, possiblement aussi en Amérique du Nord et ses régions côtières.

Nous continuerons avec l'analyse plus détaillée des simulations I-R, I-ANT et I-NAT. Le tableau 3.7 montre les contributions anthropique, volcanique et biogénique à la concentration moyenne du sulfate total à 1000 hPa dans la simulation I-R. Il y a toujours une concentration de fond de sulfate d'origine volcanique, provenant des émanations permanentes dues à l'activité volcanique non-éruptive. En surface elle est très faible, en raison du fait que la plupart du SO_2 précurseur est projeté en atmosphère à des altitudes assez élevées, entre 1500 et 5000 m [Graf et al, 1997]. La concentration de sulfate biogénique domine avec 70.7 % ($0.597 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$) du sulfate total ($0.844 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$), suivie par celle du sulfate anthropique avec 20.3 % ($0.171 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$), et de celle du sulfate d'origine volcanique avec 9.0 % ($0.076 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$). La concentration du sulfate d'origine volcanique est de 12.7 % de la concentration du sulfate biogénique, ou 11.3 % du sulfate naturel total (biogénique + volcanique).

En altitude, la contribution de chaque catégorie au sulfate total change fortement. À 900hPa (tab. 3.8), la contribution du sulfate biogénique diminue tandis que celle du sulfate anthropique augmente, de manière à ce que les deux contributions deviennent comparables, avec 39.3 % respectivement 43.9 % du total. Avec 16.7 % le sulfate d'origine volcanique a presque doublé en importance par rapport à la surface. À 700

hPa (tab. 3.9), où l'on retrouve beaucoup de nuages pouvant être impliqués dans la réaction CLAW, le sulfate anthropique constitue plus que la moitié du sulfate total : 58.5 %. Le sulfate volcanique y contribue avec 25.0 % et celui d'origine biogénique (DMS) n'y est que seulement 16.4 %.

Tableau 3.7 Contribution anthropique, biogénique et volcanique à la concentration moyenne totale de $[\text{SO}_4]^{-2}$ en atmosphère à 1000 hPa durant SERIES à la station PAPA

Concentration de $[\text{SO}_4]^{-2}$ à 1000 hPa $[\text{kg}/\text{m}^3]$				
Simulation			Observation	
sulfate biogénique	0.597×10^{-9}	70.7 %	Analyses SERIES	0.790×10^{-9}
sulfate volcanique	0.076×10^{-9}	9.0 %		
sulfate anthropique	0.171×10^{-9}	20.3 %		
sulfate total	0.844×10^{-9}	100 %		

Tableau 3.8 Contribution anthropique, biogénique et volcanique à la concentration moyenne totale de $[\text{SO}_4]^{-2}$ en atmosphère à 900 hPa durant SERIES à la station PAPA

Concentration de $[\text{SO}_4]^{-2}$ à 900 hPa $[\text{kg}/\text{m}^3]$				
Simulation			Observation	
sulfate biogénique	0.743×10^{-9}	43.9 %	Analyses SERIES	-
sulfate volcanique	0.283×10^{-9}	16.7 %		
sulfate anthropique	0.665×10^{-9}	39.3 %		
sulfate total	1.691×10^{-9}	100 %		

Tableau 3.9 Contribution anthropique, biogénique et volcanique à la concentration moyenne totale de $[\text{SO}_4]^{-2}$ en atmosphère à 700 hPa durant SERIES à la station PAPA

Concentration de $[\text{SO}_4]^{-2}$ à 700 hPa $[\text{kg}/\text{m}^3]$				
Simulation			Observation	
sulfate biogénique	0.184×10^{-9}	16.4 %	Analyses SERIES	-
sulfate volcanique	0.280×10^{-9}	25.0 %		
sulfate anthropique	0.655×10^{-9}	58.5 %		
sulfate total	1.119×10^{-9}	100 %		

Près de la surface le sulfate naturel est prédominant (fig 3.20). Au-dessus de 900 hPa, la situation change : le sulfate d'origine anthropique devient prédominant. Le sulfate biogénique atteint son maximum ($0.665 \times 10^{-9} \text{ kg/m}^3$) à 970 hPa, soit environ trois cent mètres au dessus de la surface, mais diminue très rapidement jusqu'à 775 hPa, puis plus lentement jusqu'aux hautes altitudes. Cela nous suggère une couche près de la surface, constituée du sulfate biogénique produit dans la région océanique entre la Mer de Béring et la station PAPA, pendant que celui que nous retrouvons en altitude est essentiellement produit plus loin et transporté par les vents. Le sulfate d'origine volcanique atteint son maximum à 775 hPa, puis diminue rapidement jusqu'à 500 hPa. Le sulfate d'origine anthropique atteint son maximum à 775 hPa et diminue progressivement en altitude. La ressemblance des deux derniers profils entre 875 et 700 hPa nous suggère que ces deux catégories de sulfate ont subi le même processus de transport. Toutefois, il y a la différence d'origine entre les deux. Le sulfate anthropique provient principalement des sources terrestres continentales de l'Asie du sud-est et a été transporté jusqu'aux altitudes élevées par convection et par les courants ascendants associés aux systèmes synoptiques. Le sulfate volcanique provient du SO_2 injecté en atmosphère à des altitudes de plus de 1500 m, dans des régions côtières et insulaires de l'est et sud-est de l'Asie, plus proches de la station PAPA que les sources anthropiques. Par la suite, les deux ont été sujets du transport à l'échelle synoptique, par les vents dans la haute troposphère (entre 800 et 200 hPa).

Pour avoir une meilleure idée de l'importance du sulfate de différentes sources sur les nuages et finalement sur le climat, nous calculons la quantité totale de sulfate de chaque catégorie dans la colonne par intégration verticale sur tous les niveaux de pression, (tab. 3.10). Le sulfate anthropique est le plus important, avec 51.3 % du sulfate total. Le sulfate biogénique en constitue 31 % et le sulfate d'origine volcanique 17.2 %.

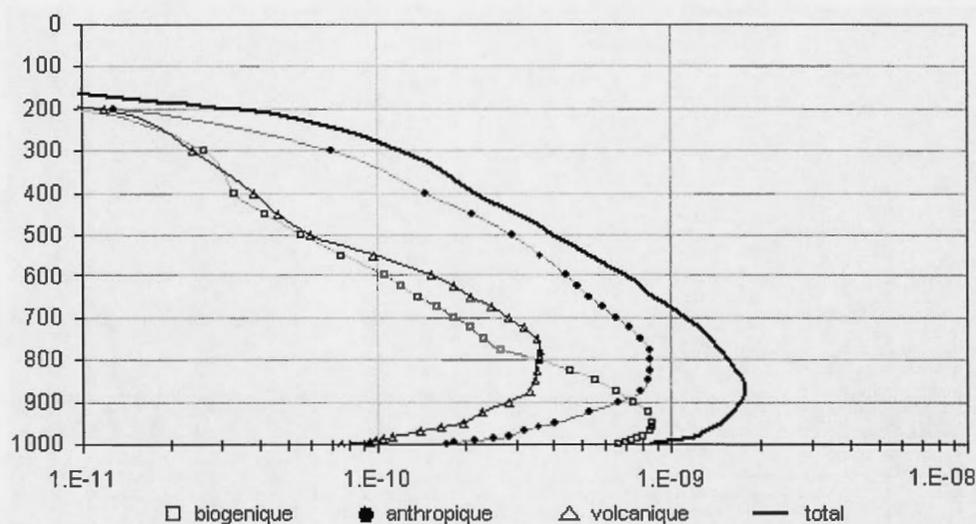


Figure 3.20 Profils verticaux des contributions à la concentration moyenne totale de sulfate durant SERIES à la station PAPA .

Tableau 3.10 Contenu de sulfate dans la colonne à la station PAPA

Contenu de $[\text{SO}_4]^{-2}$ dans la colonne $[\text{kg/m}^2]$		
sulfate biogénique	2.15×10^{-6}	31.5 %
sulfate volcanique	1.17×10^{-6}	17.2 %
sulfate anthropique	3.50×10^{-6}	51.3 %
sulfate total	6.82×10^{-6}	100 %

Le sulfate biogénique étant un élément clé dans l'hypothèse CLAW, nous devrions faire une évaluation qualitative de celle-ci. L'hypothèse CLAW propose une rétroaction au niveau du climat global. Si elle était une boucle localisée géographiquement, la rétroaction serait confinée à la verticale de la région d'émission du DMS. Des fortes émissions de DMS ont lieu si le vent est assez fort en surface. La rétroaction CLAW impliquerait le mélange vertical du DMS sans trop de pertes dues au transport horizontal par les vents d'altitude. Mais l'augmentation des vents avec l'altitude rendent le transport horizontal très efficace, et le DMS sera transporté avant qu'il ne soit oxydé à la verticale de la région d'émission. Une autre possibilité serait une conversion très rapide du DMS en sulfate avant qu'il ne soit transporté par les

vents horizontaux hors de la région d'émission. Mais la durée de vie du DMS en atmosphère est de un à deux jours, pendant ce temps les vents le transportent, et par la suite peu de DMS est oxydé dans la région d'émission. Il apparaît clairement que la rétroaction proposée par l'hypothèse CLAW doit agir à un niveau géographique étendu. En effet, le sulfate produit par l'oxydation du DMS transporté engendrera des CCN au dessus d'une région éloignée. Ainsi il y aura une déconnexion spatiale importante entre le phytoplancton producteur du DMS et la perturbation climatique via les nuages, engendrée par le sulfate dérivé de ce DMS. Le transport par les vents ne constitue pas une perte au sens de l'effet global. Mais cette dimension géographique de la portée cause-effet peut constituer une faiblesse majeure dans la rétroaction proposée par l'hypothèse CLAW. Il reste à investiguer si cela constitue une diminution importante de son potentiel réel sur le climat. Le mécanisme CLAW sera significatif dans la mesure où le sulfate dérivé du DMS sera prédominant par rapport au sulfate anthropique et volcanique. Pour la région de la station PAPA, ce n'est le cas que pour les nuages très bas, près de la surface. Entre la surface et 900 hPa le sulfate biogénique est prédominant, tandis qu'au-dessus de 900 hPa le sulfate anthropique est prédominant, donc le mécanisme CLAW viendra se superposer à l'action du sulfate anthropique. La production de DMS pourrait affecter au sens de l'hypothèse CLAW seulement le brouillard et les stratus très bas, à moins de 1000 mètres de la surface océanique.

Ces résultats nous montrent la complexité de la problématique sulfate-climat. Des études plus focalisées sont à envisager, notamment sur l'origine, le transport et la distribution du sulfate, ainsi que sur l'influence de ceux-ci sur les nuages, le bilan radiatif et les précipitations.

CONCLUSION

L'objectif principal poursuivi dans cette étude était de vérifier si NARCM peut simuler de manière réaliste les concentrations observées de DMS et de sulfate en incluant explicitement les phénomènes d'émission et de transport impliqués, à échelle synoptique et à méso-échelle, et d'analyser par modélisation numérique les observations SERIES sur le DMS à l'échelle régionale et locale.

NARCM capture avec une bonne précision l'évolution de la situation météo régionale du nord-est du Pacifique durant la campagne de mesures, comme nous avons pu vérifier par comparaison entre les résultats de simulation, les réanalyses NCEP et les observations SERIES. Ceci nous permet de traiter avec un bon degré de confiance les résultats concernant les aérosols, déterminés en bonne partie par l'évolution de la situation météo, avec les limites imposées par la base de données de Kettle et al. [1999].

Selon l'inventaire de concentrations de DMS océanique [idem], deux des régions de forte émission de DMS sont l'ouest de la Mer de Béring et les eaux près des Iles Aléoutiennes. Ces régions sont caractérisées par des vents et un mouvement vertical forts associés à la basse pression des Aléoutiennes, et par une haute concentration de DMS océanique associée à l'activité biologique intense du phytoplancton. Par contre, les régions au sud de la station PAPA sont caractérisées par de faibles concentrations du DMS océanique, engendrant peu d'émissions et des concentrations réduites de DMS atmosphérique.

Afin de simuler les observations de la campagne SERIES, nous avons modifié les sous-routines de NARCM responsables du calcul des aérosols sulfatés de manière à pouvoir introduire différentes valeurs du DMS marin aux points de grille correspondant à l'emplacement de la station PAPA. Nous avons introduit des moyennes journalières provenant des analyses SERIES au lieu de la moyenne mensuelle provenant de la base de données de Kettle et al. [1999]. Ainsi, nous avons obtenu localement des flux de DMS plus réalistes en dimension et variabilité. À la station PAPA, le flux moyen de DMS simulé en utilisant seulement la base de données de Kettle et al. [1999] est trois fois plus petit que celui simulé en utilisant des valeurs d'analyse SERIES, et cinq fois plus petit que celui calculé à partir d'observations par Le Clainche et al. [2005]. Ceci indique une déficience de la base de données de Kettle pour cette région.

La vitesse du vent est déterminante sur l'intensité de l'émission de DMS de l'océan vers l'atmosphère, ainsi que sur la distance à laquelle ce DMS est transporté. La direction du vent est déterminante sur les trajectoires de transport et sur la concentration de DMS dans l'atmosphère. Les concentrations de DMS atmosphérique simulées sont de plus en plus réduites en surface et en altitude, au fur et à mesure que nous réduisons l'étendue du domaine de calcul. En surface, à la station PAPA, pour le domaine le plus restreint (~450 km) la concentration de DMS est seulement 12.6 % de la concentration pour le domaine le plus étendu (~10.500 km). Cette distribution verticale de la concentration du DMS prouve que des quantités importantes de DMS sont transportées par les vents d'ouest à partir des régions de fortes émissions au sud des Aléoutiennes. Le transport est à l'origine du DMS existant à la verticale de la station PAPA, l'émission locale étant pratiquement négligeable. L'augmentation de la disponibilité de DMS marin, même si elle produit l'augmentation du flux de DMS, n'explique pas l'augmentation de la concentration de DMS atmosphérique à la station PAPA. Ceci raffermit la conclusion de l'équipe SERIES conformément à laquelle les mesures avaient capturé une floraison du phytoplancton à l'échelle régionale sur

laquelle la fertilisation en fer venait se superposer sans effet majeur sur le flux de DMS [Wadleigh et al., 2004; Levasseur et al., 2004].

Quand la direction des vents change et devient du sud, entre le 19 et le 24 juillet, la concentration de DMS simulé diminue de manière drastique à la station PAPA pendant que le flux de DMS atteint son maximum. Ceci est dû au fait que beaucoup moins de DMS est amené par les vents, suite à la faiblesse des sources dans les régions du sud, régions HNLC - faibles en DMS océanique.

Les fortes émissions à l'ouest et au sud des Aléoutiennes occupent des régions de dizaines de milliers de kilomètres carrés. Levasseur et al. [soumis] rapportent de très hautes concentrations de DMS marin avant la fertilisation. Les émissions de DMS induites par la fertilisation SERIES ont eu lieu sur quelques centaines de kilomètres carrés seulement. Nous ne nous attendons pas à ce que la quantité de DMS ainsi produit soit assez importante pour déterminer à elle seule des effets notables. D'un autre côté, il n'y a pas de basse pression persistante et intense, ni de forts courants ascendants dans la région de la station Papa. Le DMS produit localement ne remonte pas assez pour atteindre les hauteurs ou le transport à grande distance est efficace dû aux vents forts d'altitude. L'augmentation de la concentration de DMS et des aérosols sulfatés à la station Ucluelet (Ile de Vancouver) mentionnée par Norman et Wadleigh [2004] est plus probablement due à l'accumulation momentanée de DMS provenant de l'activité biologique naturelle sur une large étendue de la haute mer (fig. 3.12, 3.13).

Le transport par le vent est aussi le facteur majeur déterminant la distribution spatiale du sulfate dans le Pacifique de Nord-Est. Le sulfate d'origine anthropique est transporté principalement de la côte est de l'Asie, aux moyennes et hautes altitudes. Il y a une concentration de fond significative de sulfate d'origine volcanique. En ce qui concerne le sulfate biogénique, l'hypothèse CLAW s'en sert pour proposer une rétroaction au niveau du climat global. Si on la considère comme une boucle locale

géographiquement, il y a alors une déconnexion spatiale très importante entre le phytoplancton producteur du DMS et l'effet du sulfate dérivé du DMS sur le bilan de l'énergie alimentant ce producteur, dû au transport du DMS et du sulfate loin de la région d'émission. Si on regarde l'hypothèse CLAW au niveau global, le transport par les vents ne constitue pas une perte au sens de la rétroaction, mais pourrait limiter sérieusement son intensité en causant une diminution importante de son potentiel d'action sur le climat. Le mécanisme CLAW fonctionnera dans la mesure où le sulfate dérivé du DMS sera prédominant par rapport au sulfate de fond anthropique et volcanique. C'est le cas de nuages très bas, près de la surface (fig. 3.20). Il faudrait encore quantifier la portée de CLAW sur d'autres composantes du système : la rétroaction porte-t-elle seulement sur le phytoplancton ou aussi sur la chimie de l'atmosphère ?

Pour augmenter la précision des simulations et faciliter l'analyse des résultats, il y a un besoin réel de mesures plus complètes de DMS, d'espèces chimiques, d'aérosols et de paramètres météo, en surface et en altitude. Un ajustement des concentrations du DMS marin dans la base de données de Kettle [1999] est nécessaire pour certaines régions. Par ailleurs, pour effectuer des simulations à haute résolution spatio-temporelle il est préférable de se fier aux mesures, seuls témoins de l'évolution réelle de l'activité biologique.

NARCM est limité par le manque de diversité des chemins d'oxydation du DMS. Plusieurs réactions chimiques impliquant le DMS ont été identifiées et considérées récemment par les chercheurs, parmi lesquelles l'oxydation du DMS en MSA et sulfure de carbone (COS), et l'oxydation du DMS par l'oxyde de brome (BrO) [Norman et Wadleigh, 2004; Wadleigh et al., soumis]. Pour rendre les simulations encore plus réalistes, il faudrait implémenter dans le modèle ces processus d'oxydation. NARCM requiert une puissance de calcul considérable. Des simulations de l'activité biologique à grande résolution temporelle pour des longues périodes de

temps et avec beaucoup de chemins d'oxydation du DMS poseront à court terme des problèmes quant aux ressources de calcul requises.

Une vérification scientifiquement rigoureuse de l'hypothèse CLAW implique d'étudier l'impact des phénomènes liés au DMS, au sulfate et aux CCN sur la chimie de l'atmosphère et sur le climat en une seule séquence incluant tous ces phénomènes. Cela nécessiterait des mesures des paramètres concernant tous les aspects de la séquence, plus complètes que celles disponibles suite à la campagne SERIES, et des modèles couplés pour compléter ces observations. Nous considérons que cette étude marque une étape significative dans cette direction. D'autres recherches approfondies sur les patrons et l'amplitude du transport des aérosols d'Asie et d'Amérique du Nord sont requises, principalement pour analyser : 1) les poussières et leur apport de minéraux constituant nutriments pour le phytoplancton du Pacifique Nord, et 2) le sulfate et son influence sur les nuages au-dessus de la région source et des régions voisines. À l'occasion, différents scénarios de simulation pourraient être expérimentés, basés sur la configuration et les conclusions de SERIES et de futures campagnes de mesures sur tous les océans du globe.

ANNEXE A

LA CHIMIE ET LES PROCESSUS PHYSIQUES IMPLIQUANT LES AEROSOLS DANS LE MODULE CAM

A.1 Calcul du flux de DMS

Il n'existe pas une paramétrisation généralement acceptée du flux de DMS à partir de la concentration du DMS dans l'eau océanique. On trouve des différences de deux ordres de grandeur entre les flux calculés par différentes méthodes [Kettle and Andreae, 2000]

Le flux de DMS de l'océan vers l'atmosphère est calculé dans NARCM en utilisant la méthode empirique proposée par Wanninkof [1992] :

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

où :

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

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

Alors, le flux de DMS est :

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

ou C_{DMSg} est la concentration de DMS dans l'eau de surface. Pour la région SERIES, la concentration prescrite dans la base de données de Kettle varie entre 4.1 et 5.8 nmol/l.

A.2 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 réelle 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:

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

ou 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, nombre de ions dissociés 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 .

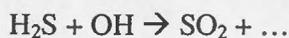
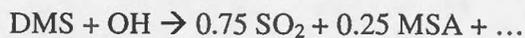
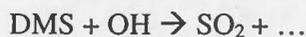
La particule d'aérosol sec est présumée sphérique, et le volume de la particule d'aérosol humide est égal à la somme des volumes de la particule sèche et de l'eau contenue [idem].

A.3 Processus en ciel clair

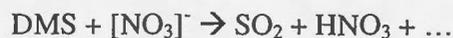
Nous présenterons dans cette section les processus chimiques en ciel clair produisant du sulfate à partir des précurseurs et les processus physiques impliquant ce sulfate: nucléation, condensation et coagulation.

A.3.1 Processus chimiques

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 $[\text{NO}_3]^-$ menant au SO_2 en phase gazeuse.

Le SO_2 ainsi produit subira l'oxydation par OH pour former de l'acide sulfurique (H_2SO_4) en phase gazeuse :



Ce H_2SO_4 est condensé, dissocié et soumis à deux processus compétitifs pour former des CCN. Aux faibles concentrations, $[\text{SO}_4]^{-2}$ forme directement des CCN, par nucléation. Aux concentrations plus élevées, la coagulation produit des particules de taille intermédiaire qui serviront de CCN.

Dans la distribution de taille, les CCN sont les particules les plus grandes. La formation de gouttelettes dépend de la concentration et la composition des aérosols et de la supra-saturation à chaque point de grille.

A.3.2 Nucléation et condensation

Des 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. Le taux de diminution de la concentration (kg/kg) du H_2SO_4 gazeux due à la nucléation est :

$$\frac{\partial X_{\text{H}_2\text{SO}_4}}{\partial t} = -C_1 (X_{\text{H}_2\text{SO}_4})^{C_2} \quad (\text{II.6})$$

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 :

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

ou 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 dans une catégorie de taille supérieure.

L'équation de la balance de masse pour H_2SO_4 est finalement:

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

ou $P_{H_2SO_4}$ 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, une approximation 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 :

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

où

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

Cette approche permet une diminution considérable des ressources ordinateur utilisées. Elle est considérée acceptable pour le calcul en tenant compte que les incertitudes dans les mesures expérimentales de la nucléation s'étalent sur quelques ordres de grandeur.

A.3.3 Coagulation

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

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

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.

A.4 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. Le schéma de Zhang et al [2001] utilisé dans la version actuelle de CAM tient compte de la contribution des processus suivants à la déposition sèche: mouvement brownien, impact, interception, déposition gravitationnelle, rebondissement des particules, croissance des particules due au 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.

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

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.

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

où z_R est la hauteur ou 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.

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

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_I est un facteur de correction représentant la fraction de particules qui collent 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.

A.5 Lessivage sous les nuages

Le lessivage représente le processus d'élimination des aérosols de l'atmosphère par les précipitations (pluie ou neige) dans la couche entre la base du nuage et le sol. La capture des particules d'aérosols par les hydrométéores se fait à travers 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]

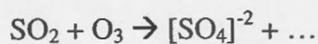
A.6 Processus dans les nuages

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: activation, formation des nuages et interaction aérosols-précipitation.

L'effet indirect des aérosols sur le climat est du à ces processus, qui modifient aussi la distribution de taille et la composition chimique des aérosols et des gouttelettes de nuage.

A.6.1 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 al., 2000] :



Le pH est calculé en évaluant la concentration des ions d'hydrogène (H^+) à partir de la balance de masse des espèces chimiques dissoutes dans la maille de grille nuageuse concernée. 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 paramétrisée de manière simple :

$$\left. \frac{\partial X_{\text{H}_2\text{O}_2}}{\partial t} \right|_{\text{prod}} = -\tau^{-1} (X_{\text{H}_2\text{O}_2} - X_{\text{H}_2\text{O}_2}^b) \quad (\text{II.19})$$

où $X_{\text{H}_2\text{O}_2}^b$ est la concentration de fond provenant du modèle MOZART et τ est la durée de vie, égale à 36 heures conformément aux observations. Cette paramétrisation tend 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 :

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

et

$$\frac{\partial X_{\text{H}_2\text{O}_2}}{\partial t} = -F_2 X_{\text{H}_2\text{O}_2} X_{\text{S(IV)}} \quad (\text{II.21})$$

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

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

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

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.

A.6.2 Activation

Les nuages se forment en atmosphère suite à 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 est utilisée en CAM afin de générer la densité de nombre des gouttelettes de nuage:

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

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. La paramétrisation n'utilise pas la distribution de taille des aérosols, ni leur composition, ni les conditions météorologiques.

A.6.3 Dimensions des gouttelettes

La dimension des gouttelettes est paramétrisée en présumant que le contenu du nuage en eau liquide q_{cl} est distribué de manière égale entre les particules d'aérosol activé :

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

où N_{drop} est la concentration de nombre des gouttelettes, ρ_{0i} et ρ_{H_2O} sont les densités de l'aérosol sec et de l'eau.

A.6.4 Précipitation

Les interactions entre les aérosols et les nuages considérées par CAM sont celles qui affectent la distribution d'aérosols, soit la formation des précipitations et le lessivage dans les nuages. La formation des précipitations dépend de la concentration de nombre des gouttelettes et du contenu en eau liquide du nuage. 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 précipitation de la vapeur d'eau.

Quand la précipitation subit l'évaporation, le pourcentage de masse d'aérosol transférée de la phase précipitation à la phase nuage ou aérosol sec est présumée égale au rapport local entre le taux d'évaporation et le taux de précipitation.

ANNEXE B

PREPARATION ET LANCEMENT DES SIMULATIONS

Pratiquement, les étapes pour préparer et lancer une simulation sur le serveur **obelix** du Département des Sciences de la Terre et de l'Atmosphère de l'UQAM sont les suivantes :

1) initialisation de l'environnement UNIX : dans le fichier *.cshrc* du répertoire racine il faut inclure les chemins complets d'accès aux répertoires d'installation du MRC et du NARCM :

```
if !(${?CLIMLIB}) then
  setenv CLIMLIB /climato/versions/32/MRC_V3.3
endif

if !(${?NARCLIB}) then
  setenv NARCLIB /obelix/spacek/NARCM_03
endif
```

2) création d'un répertoire de travail et placement des fichiers de configuration nécessaires : **AEROSOLS** et **PARAMETRES**. Ceux-ci contiennent toute l'information concernant la configuration du modèle pour la simulation en cours. Il faut rentrer attentivement l'information désirée en **PARAMETRES** (Annexe B), car la compilation, l'intégration et la manipulation des résultats y en sont en étroit rapport.

3) compilation de l'exécutable NARCM en utilisant les commandes ETAGERE (environnement de travail automatisé de gestion d'expériences) du MRC.

Premièrement il faut indiquer à ETAGERE ou chercher le code FORTRAN à compiler :

```
ouv_exp base -RCSPATH ${NARCMLIB}/sources/lssub/RCS\  

    ${CLIMLIB}/sources/modele/coupleur/RCS\  

    ${CLIMLIB}/sources/modele/mc2/RCS
```

suivi par :

```
make_exp
```

Pour de plus amples renseignements sur les commandes ETAGERE et leur mode d'emploi il existe la documentation sur le serveur **obelix** du Département des Sciences de la Terre et de l'Atmosphère de l'UQAM.

Les différentes sous-routines sont compilées et la librairie nécessaire est créée par la suite de commandes :

```
make gcmii.o  

make gcmiii.o  

make gcm.ll.o  

make clean  

make genlib
```

Finalement, la création de l'exécutable NARCM :

```
make NARCM
```

4) Création des fichiers *AN*, contenant les champs géophysiques, et *INMRC*, contenant les champs dynamiques, pour pilotage. Nous utilisons pour cela *lance_pilomrc*, qui fait partie d'une collection de scripts intégrée dans la plate-forme de travail NARCM.

5) Création du fichier *CHEM* contenant les champs chimiques extraits d'inventaires. Nous utilisons pour cela le script *mychem2ps*.

6) Lancement de l'intégration en mode queue, en utilisant la commande `qsub` ou `batch`.

7) Dans le cas des simulations en cascade, qui utilisent pour pilotage les paramètres issus de la simulation précédente, à l'étape 4) il faut utiliser le script *`lance_automrc`* au lieu de *`lance_pilomrc`*. Le mode d'utilisation est décrit dans l'entête de chacun des scripts.

Plus de détails sont fournis dans les fichiers explicatifs se trouvant dans les répertoires d'installation de MRC et de NARCM.

ANNEXE C

EXEMPLE DE FICHER DE CONFIGURATION *PARAMETRES*

```
#=====
# Fichier "PARAMETRES" contenant | "PARAMETRES" file containing
# les variables d'environnement | the environment variables
# necessaires pour tous les scripts | required for all the UQAM's
# du modele regional de climat de | Regional Climate Model (RCM)
# l'UQAM. | scripts.
#
# 9 avril 1995 - R. Laprise, M. Giguere, D. Caya, G. Bergeron.
#=====
# SECTION A : AUTOMATISATION | SECTION A: AUTOMATION
#
# Chemin du repertoire dans lequel | Absolute path of the directory
# l'integration est executee. | where you make the integration.
ROULE=/exec/zaganesc/RES_100
#
# Chemin du repertoire dans lequel | Absolute path of the directory
# l'experience (ETAGERE) a ete | where you open the experiment
# ouverte et ou setrouve l'absolu . | (ETAGERE) and where is the
# MRC | absolute MRC.
SOURCES=/rech/zaganesc/work_100
#
# Nom du mois courant, du mois | Name of the current month, then
# suivant et nom de l'integration | next month and name of the
# precedente. | previous integration.
M1=27
M2=28
RUNP=0
#=====
# SECTION B : DEF. DES REPERTOIRES | SECTION B: DEF. OF DIRECTORIES
#
# Nom de l'integration. | Run name.
RUN=toto
BNAME=`pwd`
#
```

```

# Repertoire des variables pilotes | Directory of nesting data,
# non decalees, en pression.      | unstaggered, in pressure coord.

PATHI=${BNAME}/${RUN}/i${RUN}
#
# Repertoire des variables pilotes | Directory of nesting data,
# decalees, en coord. Gal-Chen.   | staggered, in Gal-Chen coord.

PATHP=${BNAME}/${RUN}/p${RUN}
#
# Repertoire des archives du MRC.  | Directory of RCM archives.

PATHM=${BNAME}/${RUN}/m${RUN}
#
# Repertoire des diagnostics MRC | Directory of RCM diagnostics.

PATHDM=${BNAME}/${RUN}/dm${RUN}
#
# Repertoire des diagnostics GCM | Directory of GCM diagnostics.

PATHDI=${BNAME}/${RUN}/di${RUN}
#
# Repertoire pour varia.          | Directory for various things.

PATHZ=${BNAME}/${RUN}/z${RUN}
#
# Repertoire pour archiver restarts | Directory for restarts archival

PATHR=${BNAME}/${RUN}/r${RUN}
#
# SECTION C : PARAMETRES DU MRC    | SECTION C: PARAMETER OF MRC
#
#
# Longueur pas de temps du MRC (s) | Length of RCM time step (s).

DELT='    1200.0'
#
# Numero du pas de temps           | First and last time step
# du debut et de la fin            | numbers of run (e.g. month).
# de l'integration (e.g. mois).    |

MRCKSTART='          0'
MRCKSTART='    2880'
#
# Nombre de pas de temps dans ce   | Number of time steps in this
# job. Si nul, l'integration est   | job. If undefined, the whole
# faite en un seul job.           | run is done in a single job.

MRCKSTEPS='720'
#
# Dernier pas de temps de l'ensemble | Last time step number of the
# de l'experience (e.g. 10 ans).    | entire simulation (e.g.10 yrs)

```

```

# (Généralement laisse intouche.) | (Generally left unmodified.)

MRCKFINAL=' 99999999'
#
# Intervalles d'archivage du MRC, | Archival intervals of RCM
# champs dynamiques, radiatifs, reste | dynamics, radiation, rest of
# de la physique et bilan d'énergie | physics and ground energy
# au sol (en nombre de pas de temps). | balance fields.

MRCARC=' 18'
#
# Intervalles du calcul des | Solar and terrestrial radiation
# rayonnements solaire et terrestre | calculation intervals
# (en pas de temps du MRC). | (in number of RCM time steps).

ICSW=1
ICLW=18
#
# Variation angle de déclinaison | Varying sun's declination angle
# selon cycle annuel (1) ou non (0) | for annual cycle (1) or not (0)

INCDAY=' 1'
#
# Premier et dernier pas de temps de | First and last radiation time
# radiation archive a etre | steps to be diagnosed.
# diagnostique. |
# N.B. MRCRADINIT = MRCKSTART + MRCARCH if MRCKSTART = 0.

MRCRADINIT=' 18'
MRCRADFINI=' 4320'
#
# Premier et dernier pas de temps de | First and last dynamic time
# dynamique archive a etre | steps to be diagnosed.
# diagnostique. |
# N.B. MRCDIAGINIT = MRCKSTART + MRCARCH if MRCKSTART = 0.

MRCDIAGINIT=$MRCRADINIT
MRCDIAGFINI=$MRCRADFINI
#
# Date et heure du debut des expe- | Date and time of beginning of
# riences MRC. Format mmjjaahx. | RCM simulations. Format
mmjjaahx.

GNIDATE='061102001'
#
# Jour julien et heure GMT | Julian day and GMT hour of day
# correspondant a MRCRADINIT. | corresponding to MRCRADINIT.

MRCRADIDAY=' 162'
MRCRADGMT='00.00'
#

```

```

# Position du centre de la grille :| Location of the grid's centre:
# CLAT = lat. N, CLON = long. O.| CLAT = N lat., CLON = W long.
# XAXIS = orientation de la grille | If 0 < XAXIS < 360, the X axis
# Si 0 < XAXIS < 360, l'axe X est | is parallel to the XAXIS
# parallele au meridien XAXIS (deg)| meridian (deg.).
# XAXIS est positif vers l'ouest a | XAXIS is positive westward from
# partir du meridien Greenwich. | the Greenwich meridian.
# Si XAXIS > 360, l'axe des X est | If XAXIS > 360, the X axis is
# normal a CLON. | oriented perpendicular to CLON.
# KHEM = 1, hemisphere nord; | KHEM = 1, Northern Hemisphere;
# KHEM = 2, hemisphere sud. | KHEM = 2, Southern Hemisphere.
# D60 = maille de la grille a | D60 = resolution at 60 deg. (m)
# 60 deg.de latitude, (m). | XAXIS = grid orientation:

CLAT=50.; CLON=-160. ; XAXIS=400. ; KHEM=' 1' ; D60=' 100000.'
VCLAT=50.;VCLON=50. ;VXAXIS=400. ;VKHEM=' 1';VD60=' 100000.'
#
# NI = Nombre de points type f en X.| NI, NJ = Number of f-type grid
# NJ = Nombre de points type f en Y.| points in X and Y.
# NK = Nombre de niveaux Gal-Chen. | NK = Number of vertical levels
# NN = Nombre de traceurs | NN = Number of tracers

NI=' 211' ; NJ=' 81' ; NK=' 22' ; NN=69 ;
VNI=' 31' ; VNJ=' 31' ; VNK=' 22'
#
# Arrangement des couches et niveaux | Layering scheme of RCM.
# du MRC. |
# Ref. Laprise, R. and C. Girard, 1990, J. of Climate, 3(1), 32-52.

LAY=' 1'
#
# Type de coordonnee suivant la | Type of terrain-following
# topographie du MRC. | coordinate of RCM.

COORD=' GALC'
#
# Hauteur du toit rigide du MRC (m) | Height of the RCM rigid lid (m)

HTOIT=' 34120.'
#
# Variable pronostique pour la | Prognostic variable for the
# vapeur d'eau dans le MRC. | water vapour in RCM.

MOIST=' Q'
#
# Temperature employeee dans le calcul| Temperature used for calcula-
# des valeurs pseudo sigma pour les | ting pseudo-sigma values for
# etiquettes des champs en Gal-Chen. | the labels of RCM's levels.

TMOYEN=' 220.'
#
# Taux de decroissance de la | Lapse rates used for upward and

```

tempera ture employes pour | downward extrapolations past
 # l'extrapola tion au-dessus du plus haut et en | the uppermost and
 lowermost
 # dessous du plus bas niveaux. | RCM and GCM levels, respectively

RLUP=' 0'

RLDN=' -6.5E-3'

#

Nombre de niveaux du MRC | Number of RCM vertical levels
 # et leur positions pseudo sigma. | and their pseudo-sigma location
 # G pour dynamique et H pour thermo. | G for momentum and H for thermo

SLV=' 22'

G01=' -775'; G02=' 14'; G03=' 18'; G04=' 24'; G05=' 32'
 G06=' 43'; G07=' 56'; G08=' 73'; G09=' 97'; G10=' 127'
 G11=' 167'; G12=' 220'; G13=' 289'; G14=' 379'; G15=' 494'
 G16=' 627'; G17=' 756'; G18=' 854'; G19=' 918'; G20=' 956'
 G21=' 978'; G22=' 993'; G23=' '; G24=' '; G25=' '
 G26=' '; G27=' '; G28=' '; G29=' '; G30=' '
 G31=' '; G32=' '; G33=' '; G34=' '; G35=' '
 G36=' '; G37=' '; G38=' '; G39=' '; G40=' '
 G41=' '; G42=' '; G43=' '; G44=' '; G45=' '
 G46=' '; G47=' '; G48=' '; G49=' '; G50=' '

H01=' 12'; H02=' 16'; H03=' 21'; H04=' 28'; H05=' 37'
 H06=' 49'; H07=' 64'; H08=' 84'; H09=' 111'; H10=' 146'
 H11=' 192'; H12=' 252'; H13=' 331'; H14=' 434'; H15=' 562'
 H16=' 700'; H17=' 816'; H18=' 894'; H19=' 942'; H20=' 970'
 H21=' 986'; H22=' 996'; H23=' '; H24=' '; H25=' '
 H26=' '; H27=' '; H28=' '; H29=' '; H30=' '
 H31=' '; H32=' '; H33=' '; H34=' '; H35=' '
 H36=' '; H37=' '; H38=' '; H39=' '; H40=' '
 H41=' '; H42=' '; H43=' '; H44=' '; H45=' '
 H46=' '; H47=' '; H48=' '; H49=' '; H50=' '

#G01=' 14'; G02=' 22'; G03=' 35'; G04=' 53'; G05=' 82'
 #G06=' 121'; G07=' 171'; G08=' 228'; G09=' 293'; G10=' 361'
 #G11=' 431'; G12=' 497'; G13=' 561'; G14=' 619'; G15=' 673'
 #G16=' 720'; G17=' 761'; G18=' 796'; G19=' 827'; G20=' 853'
 #G21=' 875'; G22=' 893'; G23=' 909'; G24=' 923'; G25=' 937'
 #G26=' 951'; G27=' 965'; G28=' 979'; G29=' 993'; G30=' '
 #G31=' '; G32=' '; G33=' '; G34=' '; G35=' '
 #G36=' '; G37=' '; G38=' '; G39=' '; G40=' '
 #G41=' '; G42=' '; G43=' '; G44=' '; G45=' '
 #G46=' '; G47=' '; G48=' '; G49=' '; G50=' '

#H01=' 18'; H02=' 28'; H03=' 43'; H04=' 66'; H05=' 101'
 #H06=' 146'; H07=' 200'; H08=' 261'; H09=' 328'; H10=' 398'
 #H11=' 466'; H12=' 531'; H13=' 592'; H14=' 648'; H15=' 698'
 #H16=' 742'; H17=' 780'; H18=' 813'; H19=' 841'; H20=' 865'

```

#H21=' 885'; H22=' 902'; H23=' 916'; H24=' 930'; H25=' 944'
#H26=' 958'; H27=' 972'; H28=' 986'; H29=' 996'; H30='
#H31=      ; H32=      ; H33=      ; H34=      ; H35=
#H36=      ; H37=      ; H38=      ; H39=      ; H40=
#H41=      ; H42=      ; H43=      ; H44=      ; H45=
#H46=      ; H47=      ; H48=      ; H49=      ; H50=

#
# Position pseudo sigma du plus bas | Location of the lowest pseudo-
# niveau de chaque variable.         | sigma levels of each variable.

TMX=' 996'
#
# Niveaux de pression (mb) pour les | Pressure levels (mb) for RCM
# diagnostiques du MRC.             | diagnostics.

PLV=' 30'
P01=' 50'; P02=' 100'; P03=' 200'; P04=' 300'; P05=' 400'
P06=' 450'; P07=' 500'; P08=' 550'; P09=' 600'; P10=' 625'
P11=' 650'; P12=' 675'; P13=' 700'; P14=' 725'; P15=' 750'
P16=' 775'; P17=' 800'; P18=' 825'; P19=' 850'; P20=' 875'
P21=' 900'; P22=' 925'; P23=' 950'; P24=' 960'; P25=' 970'
P26=' 980'; P27=' 985'; P28=' 990'; P29=' 995'; P30=' 1000'
#
# Temperature de l'etat de base pour | Basic state temperature used
# schema semi-implicite.              | for semi-implicit scheme.

TSTAR=' 273.16'
#
# Ne sert que pour MC2.               | Only used by MC2.

GRNINIT=0.
PNFILTYP=1
GNGCLEV=0
#
# Topographie (1) ou non (0).         | Topography (1) or not (0).

GNMTN=' 1'
#
# Initialisation dynamique            | Dynamic initialization (1)
# activee (1) ou non (0).             | or not (0).

GNMDYN=0
#
# Choix de physique :                 | Choice of Physics:
# pas de physique (0), GCMii (1)      | No physics (0), GCMii(1)
# ou "petite physique" (2).           | or small physics (2).

GNMAPHY=11
#
# Eliminer le process-splitting dans | Eliminate the process-splitting
# MRC (1) ou non (0)                  | in MRC (1) or not (0)

```

```

GNPRSPL=1
#
# Transport semi-lagrangienne      | Semi-Lagrangian transport in
# 3D (1) ou 2D horizontale (0).    | 3D (1) or 2D horizontal (0).

GNSL3D=1
#
# Elastique (1) ou hydrostatique (0).| Non-hydrostatic (1) or hydr.(0)

GNNOHYD=1
#
# Interpolation cubique (4) ou line- | Cubic (4) or linear (0) inter-
# aire (0) pour operateurs bar (x,y).| polation for bar x,y operators.

GNLD=4
#
# Coefficient du filtre temporel    | Time filter coefficient

PRTF=0.05
#
# Decentrage du schema semi-implicite| Uncentring of semi-implicit.

GREPSI=0.1
#
# Coefficient de diffusion          | Horizontal diffusion
# horizontale m**2/s.               | coefficient m**2/s.

KHDIFF=100000.0
#
# Pour la petite physique :        | For the small physics only:
# rotation du vent a la surface et | Rotation of surface wind and
# reduction du vent a la surface.   | reduction of surface wind.

GRWROTA=0.0
GRWREDU=1.00
#
# Statistique des champs dynamiques | Dynamics statistic will be
# est fait a tout les gnstat pas de | performed every gnstat timestep
# temps                               |

GNSTAT=1
#
# Coefficient de diffusion utilise   | Value of the diffusion
# coefficient                          | coefficient
# dans l'eponge [0,0.5]              | used in de nesting scheme

GRNU=0.5
#
# Largeur des eponges type Davies    | Width of lateral Davies type
# pour vents horizontaux (UV),       | sponges for horiz. winds (UV),
# mouvement vertical (W),             | vertical motion (W),

```

```

# temperature (TP),           | temperature (TP),
# vapeur d'eau (HM)          | water vapour (HM)
# et ln(pression) (QP),      | and ln(pressure) (QP),
# en nombre de points de grille. | in number of grid points.
# Aussi eponge sous le toit (m). | Also upper sponge under lid (m)

GNDVUV=9
GNDVW=9
GNDVTP=0
GNDVHM=0
GNDVQP=0
GRZSPNG=0.0
#=====
# SECTION D : PARAMETRES DU GCM      | SECTION D: PARAMETER OF GCM
#-----
# Le genre d'integration du GCM      | Kind of GCM integration used
# for                                 |
# utilise pour piloter.               | the nesting.
# (i.e: MLX=mlg integration 1 x CO2) | (i.e: MLX=mlg 1 x CO2
integration)

MLX=mlh
#-----
# Chemin absolu du repertoire        | Absolute path of the directorie
# contenant les champs du GCM        | contenned GCM fields files.

PATHGCM=/expl/climato/DATA
#-----
# Fichier champs GCM et geophysiques. | GCM & geophysical fields files

SSFILE=${PATHGCM}/GCM/${MLX}/mlh1css
GSFILE=${PATHGCM}/GCM/${MLX}/mlh1cgs
LLPHYS=${PATHGCM}/iph/iph08lp
LLCHEM=/rech/rodrigo/NARCM_03/CHEMALL
LLPHYSGRTP='  A '
#-----
# Est-ce que nous prenons les        | Are we using GC,GT,SNO,SIC,WL
# variables GC,GT,SNO,SIC,WL et WF   | and WF fields from GSFILE?
# du fichier GSFILE? (oui/non)       | (oui/non).

MODIPH=non
#-----
# Date et heure du debut des expe-   | Date and time of beginning of
# riences du GCM (mmjjaahhx).        | GCM simulations
# Format mmjjaahhx.

GNIDATEGCM='010179001'
#-----
# Numero des pas de temps du GCM     | GCM time step number
# correspondant au debut et a la fin | corresponding to the beginning
# de l'integration du MRC, ainsi que | and end of the RCM run, and the
# l'intervalle d'archivage du GCM.   | GCM archival interval.

```

```

GCMKINIT='      24048'
GCMKFINI='      24084'
GCMARCH='      36'
#
# _____
# Longueur du pas de temps du GCM (s) | GCM timestep length (s).

DELTGCM='      1200.0'
#
# _____
# Type de coordonnee suivant la      | Type of terrain-following
# topographie du GCM.                | coordinate of GCM.

COORDGCM='      ETA'
#
# _____
# Pression au toit du GCM (Pa).      | Pressure at the GCM's lid (Pa)

PLIDGCM='      500.'
#
# _____
# Variable pronostique pour la      | Prognostic variable for the
# vapeur d'eau dans le GCM.         | water vapour in GCM.

MOISTGCM='      Q'
#
# _____
# Arrangement des couches et niveaux | Layering scheme of GCM.
# du GCM.                            |
# Ref. Laprise, R. and C. Girard, 1990, J. of Climate, 3(1), 32-52.

LAYGCM='      3'
#
# _____
# Resolution du GCM qui pilote.      | Resolution of nesting GCM.
# LON, LAT = Nombre de long. et lat. | LON, LAT = Number of longitudes
# sur la grille gaussienne.         | and latitudes of Gaussian grid.
# LRT, LMT = Plus grande onde bi-   | LRT, LMT = Largest 2D and zonal
# dimensionnelle et zonale.         | wavenumber.
# KTR = Troncature rhomboidale (1)   | KTR = rhomboidal (1) or trian-
# ou triangulaire (2).              | gular (2) spectral truncation.

LON='  96'; LAT='  48'; LRT='  32'; LMT='  32'; KTR='  2';
#=====
# SECTION E : AFFICHAGE                | SECTION E : DISPLAY
#
# _____
# Nombre de points de grilles a      | Number of grid points to be
# eliminer sur les rebords avant     | eliminated around the domain
# l'affichage des diag. (ex.-9).     | before display of diag. (ex.-
# 9).

EPONGE_RPN=-9
#
# _____
# Modification du numero de pas de   | Modification of the time step
# temps avant de faire la conversion | number befor the conversion
# CCRN => RPN (oui/non).             | CCC => RPN (oui/non).

```

```

MODNUM=non
#=====
# SECTION F : CARACTERISTIQUES DE      | SECTION F : COMPUTER
#           L'ORDINATEUR                |           CHARACTERISTICS
#-----
# Resolution de l'ordinateur :          | Computer precision:
# 32 bits (2) ou 64 bits (1).          | 32 bits (2) ou 64 bits (1).

MACHINE=2
#-----
# Verbe de lancement des programmes.   | Verb used to launch programs.

EXEC=gol
#=====
# SECTION G : AUTRES TYPE                | SECTION G : OTHER TYPE
#           D'INTEGRATION                |           OF INTEGRATION
#-----
# POUR INTEGRER LE MODELE AVEC          | INTEGRATION WITH NMC ANALYSIS
# ANALYSE NMC (NCEP)                   | (NCEP)
# path du fichier d'entree              | input file

NPAKSP=/rech/zaganesc/ncep_reanal_isobaric_SERIES
#-----
# Date correspondant a la variable     | Date corresponding to the
# MRCKSTART                             | variable MRCKSTART

OBSDATE=061102001
#=====
# Fin du fichier "PARAMETRES".          | Bottom of file "PARAMETRES".
#=====

```

ANNEXE D

PREPARATION DES RESULTATS POUR L'ANALYSE

Une fois la simulation terminée, tous les paramètres météo et aérosols se trouvent dans un gros fichier unique de sortie du modèle. Pour pouvoir analyser et représenter graphiquement les résultats, il faut en apporter quelques modifications, en suivant deux étapes :

1) extraction de chaque paramètre simulé et placement dans un fichier individuel. Nous utilisons pour cela le script *split_all* de la manière suivante :

```
split_all INPUT=OUTMRC OUTPUT=toto/mtoto
```

ou OUTMRC est le gros fichier de sortie du modèle et toto est le répertoire contenant les résultats finaux, dont le nom est spécifié au début de *PARAMETRES* (dans notre expérience ce nom est « toto », mais chaque utilisateur peut le changer à son gré).

2) interpolation de certains paramètres aux niveaux de pression désirés par l'utilisateur (spécifiés dans *PARAMETRES*) et changement de l'unité de mesure pour les concentrations d'aérosols de kg/kg en kg/m³. Nous utilisons le script *sort_narcm* :

```
sort_narcm
```

Etant donnée la quantité importante d'information à traiter, les deux scripts prendront beaucoup de temps pour compléter leur exécution. Il serait conseillé de les lancer en mode *batch*.

Le répertoire toto contient maintenant les sous-répertoires :

mtoto – résultats de la simulation aux niveaux Gal-Chen décalés, dans des fichiers individuels

dmtoto – résultats interpolés aux niveaux de pression, dans des fichiers individuels. Ce sous-répertoire contient trois sous-répertoires :

series – les paramètres aux pas de temps de sauvegarde

stat – les moyennes temporelles de ces paramètres

trans – les écarts types de ces paramètres

BIBLIOGRAPHIE

- Anderson, T.R., S.A. Spall, A. Yool, P. Cipollini, P.G. Challenor and M.J.R. Fasham, Global fields of sea surface dimethylsulfide predicted from chlorophyll, nutrients and light, *Journal of Marine Systems*, 30, 1-20, 2001
- Andreae, M.O., "The ocean as a source of atmospheric sulfur compounds", in *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, Buat-Ménard, Reidel, Dordrecht, The Netherlands, 331-362, 1986
- Andreae, M.O. and P.J. Crutzen, Atmospheric aerosols: biogeochemical sources and role in atmospheric chemistry, *Science*, 276, 1052-1058, 1997
- Andreae, M.O., T.W. Andreae, D. Meyerdierks and C. Thiel: Marine sulfur cycling and the atmospheric aerosol over the springtime North Atlantic, *Chemosphere*, 52, 1321-1343, 2003
- Aumont, O., S. Belviso and P. Monfray, DMSP and DMS sea surface distributions simulated from a global 3-D ocean carbon cycle model, *J. Geophys. Res.*, 107(C4), 1-19, 2002
- Bates, T.S., J.D. Cline, R.H. Gammon and S. Kelly-Hansen, Regional and seasonal variations in the flux of oceanic dimethylsulfide to the atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 92, 2930-2938, 1987
- Bates T.S., B.K. Lamb, A. Guenther, J. Dignon and R.E. Stoiber, Sulfur Emissions to the Atmosphere from Natural Sources, *J. Atmos. Chem.*, 14, 315-337, 1992
- Belviso, S. and C. Moulin, Assessment of a global climatology of oceanic dimethylsulfide (DMS) concentrations based on SeaWiFS imagery (1998-2001), *Notes des activites instrumentales*, no. 21, Institut Pierre Simon Laplace, Gif-sur-Yvette, 2002
- Benkovitz, C., M. Scholtz, J. Pacyna, L. Tarrason, J. Dignon, E. Voldner, P. Spiro, J. Logan and T. Graedel, Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen, *J. Geophys. Res.*, 101, 29239-29253, 1996

Bopp, L., O. Aumont, S. Belviso and P. Monfray, Potential impact of climate change on marine dimethyl sulfide emissions, *Tellus*, 55B, 11-22, 2003

Boucher, O., C. Moulin, S. Belviso, O. Aumont, L. Bopp, E. Cosme, R. von Kuhlmann, M. Lawrence, M. Pham, M. Reddy, J. Sciare and C. Venkatamaran, 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, 2003

Bourque, P.A., « La Vie sur Terre », dans Planète Terre, section 4.3, page web http://www.ggl.ulaval.ca/personnel/bourque/intro.pt/planete_terre.html, 2005

Brasseur G.P., D.A. Hauglustaine, S. Walters, P.J. Rasch, J.-F. Miller, C. Granier and X.X. Tie, MOZART - a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers. 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, 103 (D21), 28265-28289, 1998

Caya, D., R. Laprise, M. Giguere, G. Bergeron, J.-P. Blanchet, B.J. Stocks, G.J. Boer and N.A. McFarlane, Description of the Canadian Regional Model, *Water Air Soil Pollut.*, 82, 477-482, 1995

Caya, D. and R. Laprise, Semi-implicit semi-lagrangian regional climate model: the Canadian RCM, *Mon. Wea. Rev.*, 127, 3, 341-362, 1999

Charlson R.J., J.E. Lovelock, M.O. Andreae and S.G. Warren, Oceanic phytoplankton, atmospheric sulphur, cloud albedo and climate, *Nature*, 326, 655-661, 1987

Fitzgerald, J.W., Marine Aerosols: A Review, *Atmos. Environ.*, 25A, 533-545, 1991

Fung, I., S. Meyn, I. Tegen, S.C. Doney, J. John and J.K.B. Bishop, Iron supply and demand in the upper ocean, *Global Biogeochemical Cycles*, 14, 281-296, 2000

Gong, S.L., L.A. Barrie, J.-P. Blanchet, K. von Salzen, U. Lohmann, G. Lesins, L. Spacek, L.M. Zhang, E. Girard, H. Lin, R. Leaitch, H. Leighton, P. Chylek and P. Huang, 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, 2003

Graf, H.F., J. Feichter and B. Langmann, Volcanic degassing : contribution to global sulphate burden and climate, *J. Geophys. Res.*, 102, 10727-10738, 1997

IDPro : Interactive Data Processor, v5.5, Atmospheric Environment Service, Environment Canada, 2003

IPCC, Intergovernmental Panel on Climate Change, "Polar Regions (Arctic and Antarctic)", in Working Group II: Impacts, Adaptation and Vulnerability, section 16, http://www.grida.no/climate/ipcc_tar/wg2/592.htm, 2001

Jones, A., D.L. Roberts, M.J. Woodage and C.E. Johnson, Indirect sulphate aerosol forcing in a climate model with an interactive sulphur cycle, *J. Geophys. Res.*, 106 (D17), 20293-20310, 2001

Kettle, A.J., M.O. Andreae, D. Amouroux, T.W. Andreae, T.S. Bates, H. Berresheim, H. Bingemer, R. Boniforti, M.A.J. Curran, G.R. DiTullio, G. Helas, G.B. Jones, M.D. Keller, R.P. Kiene, C. Leck, M. Levasseur, G. Malin, M. Maspero, P. Matrai, A.R. McTaggart, N. Mihalopoulos, B.C. Nguyen, A. Novo, J.P. Putaud, S. Rapsomanikis, G. Roberts, G. Schebeske, S. Sharma, R. Simó, R. Staubes, S. Turner and G. Uher, A global database of sea surface dimethylsulfide (DMS) measurements and a procedure to predict sea surface DMS as a function of latitude, longitude and month, *Global Biochem. Cycles*, 13, 399-444, 1999

Kettle, A.J. and M.O. Andreae, Flux of dimethylsulfide from the oceans: A comparison of updated data sets and flux models, *J. Geophys. Res.*, 105 (D22), 26793-26808, 2000

Kieber D.J., J. Jiao, R.P. Kiene and T.S. Bates, Impact of dimethylsulfide photochemistry on methyl sulfur cycling in the equatorial Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, (C) 101, 3715-3722, 1996

Kiene, R.P. and T.S. Bates, Biological removal of dimethylsulfide from sea water, *Nature*, 345, 702-705, 1990

Laprise, R., D. Caya, G. Bergeron and M. Giguere, The formulation of Andre Robert MC2 (Mesoscale Compressible Community) model, *Atmos. Ocean.*, 35, 195-220, 1997

Le Clainche, Y., M. Levasseur, A. Vezina, Determination of the relative importance of physical and biological processes on surface ocean DMS pool during SERIES, at 39th CMOS Congress, Vancouver, June 2005

Le Clainche Y., M. Levasseur, A. Vezina, R.-C. Bouillon, A. Merzouk, S. Michaud, M. Scarratt, C. S. Wong, R. B. Rivkin, P. W. Boyd, P. J. Harrison, W. L. Miller, C. S. Law, F. J. Saucier, Modeling analysis of the effect of iron enrichment on dimethyl

- sulfide dynamics in the NE Pacific (SERIES experiment) *J. Geophys. Res.*, 111, C1, C01011, doi:10.1029/2005JC002947, 2006
- Legrand, M., C. Feniet-Saigne, E.S. Saltzman, C. Germain, N.I. Barkov and V.N. Petrov, Ice-core record of oceanic emissions of dimethylsulphide during the last climate cycle, *Nature*, 350, 144-146, 1991
- Levasseur, M., M. Scarratt, S. Michaud, A. Merzouk, P.W. Boyd, R. Rivkin, M. Hale, Y. Le Clainche, C.S. Wong, C.S. Law, N. Sherry, A. Tsuda, S. Takeda, P. Matthews, P.J. Harrison, W. Miller, R. Kiene, H. Kiyosawa, M. Arychuk, W.K.W. Li and A. Vezina, Iron enrichment decreases DMS production in the subarctic Northeast Pacific, *Nature*, (2004-submitted)
- Lohmann, U. and E. Roeckner, Design and performance of a new cloud microphysics scheme developed for the ECHAM general circulation model, *Clim. Dyn.*, 12, 557-572, 1996
- Lovelock, J., Gaia as seen through the atmosphere, *Atmos. Environ.*, 6, 579-580, 1972
- Lovelock, J.E. and L. Margulis, Atmospheric homeostasis by and for the biosphere: the Gaia hypothesis, *Tellus*, 26, 1-10, 1974
- Lovelock, J.E. and L. Margulis, Biological modulation of the Earth's atmosphere, *Icarus*, 21, 471-489, 1974
- Lovelock, J., Gaia: A New Look at Life on Earth, *Oxford University Press*, Oxford, 1979
- Lovelock, J.E. and A.J. Watson, The regulation of carbon dioxide and climate: Gaia or geochemistry, *Planet Space Science*, 30, 795-802, 1982
- Martin, J.H. and R.M. Gordon, Northeast Pacific iron distributions in relation to phytoplankton productivity, *Deep Sea Res.*, Part A, 35, 177-196, 1988.
- Martin, J.H., R.M. Gordon, S. Fitzwater and W.W. Broenkow, VERTEX: phytoplankton / iron studies in the Gulf of Alaska, *Deep-Sea Research*, 36, 649-680, 1989
- Martin, J.H., Glacial-Interglacial CO₂ Change: The Iron Hypothesis. *Paleoceanography*, 5, 1-13, 1990

Martin, J.H., K.H. Coale, K.S. Johnson, S.E. Fitzwater, R.M. Gordon, S.J. Tanner, C.N. Hunter, V.A. Elrod, J.L. Nowicki, T.L. Coley, R.T. Barber, S. Lindley, A.J. Watson, K. Van Scoy, C.S. Law, M.I. Liddicoat, R. Ling, T. Stanton, J. Stockel, C. Collins, A. Anderson, R. Bidigare, M. Ondrusek, M. Latasa, F.J. Millero, K. Lee, W. Yao, J.-Z. Zhang, G. Friederich, C. Sakamoto, F. Chavez, K. Buck, Z. Kolber, R. Greene, P. Falkowski, S.W. Chisholm, F. Hoge, R. Swift, J. Yungel, S. Turner, P. Nightingale, A. Hatton, P. Liss and N.W. Tindale, Testing the iron hypothesis in ecosystems of the equatorial Pacific Ocean, *Nature*, 371, 123-129, 1994

McFarlane, N.A., G.J. Boer, J.P. Blanchet and M. Lazare, The Canadian Climate Centre second generation model and its equilibrium climate, *J. Clim.*, 5, 1013-1044, 1992

Merzouk, A., M. Levasseur, M.G. Scarratt, S. Michaud, R.B. Rivkin, M.S. Hale, R.P. Kiene, N.M. Price, W.K.W. Li, DMSP and DMS dynamics during a mesoscale iron fertilization experiment in the Northeast Pacific - Part II: Biological cycling. *Deep-sea Res. Part II-topical Studies In Oceanography*. 53 (20-22) 2370-2383, 2006

Munoz-Alpizar, R., J.P. Blanchet and A.I. Quintanar, Application of the NARCM model to high-resolution aerosol simulations: Case study of Mexico City basin during the Investigación sobre Materia Particulada y Deterioro Atmosférico-Aerosol and Visibility Research measurements campaign, *J. Geophys. Res.*, 108 (D15), AAC 7.1-7.14, 2003

NOAA PMEL Project, Atmospheric Chemistry Program, Dimethylsulfide (DMS) in the Bering Sea and Adjacent Waters: In-situ and Satellite Observations, page web <http://saga.pmel.noaa.gov/underwaydms/why.html>, 2005

Norman, A.L. and M.A. Wadleigh, Dimethyl sulphide (DMS) and its oxidation to sulphur dioxide downwind of an ocean iron fertilization study, SERIES: a model for DMS flux, at *27th NATO International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application*, Banff, October 25-29, 2004

Penner, J.E., M. Andreae, H. Annegarn, L. Barrie, J. Feichter, D. Hegg, A. Jayaraman, R. Leitch, D. Murphy, J. Nganga and G. Pitari, Aerosols: their Direct and Indirect Effects, in *IPCC 2001*, chap. 5, 289-348, 2001

Salzen, K. von, H.G. Leighton, P.A. Ariya, L.A. Barrie, S.L. Gong, J.-P. Blanchet, L. Spacek, U. Lohmann and L.I. Kleinman, The sensitivity of sulphate aerosol size distributions and CCN concentrations over North America to SO_x emissions and H₂O₂ concentrations, *J. Geophys. Res.*, 105 (D8), 9741-9765, 2000

Saltzman E.S., D.B. King, K. Holmen and C. Leck, Experimental determination of the diffusion coefficient of dimethylsulfide in water, *J. Geophys. Res.*, 98, 16481-16486, 1993

Spacek, L., S.L. Gong, K. von Saltzen, U. Lohmann, P. Liu, R. Vet, Chul-Un Ro, J.-P. Blanchet, L.A. Barrie, H.G. Leighton and R.M. Hoff, The NARCM aerosol model applied to eastern North America LITE shuttle measurement period, *J. Geophys. Res.*, (submitted)

Thomas, E., K.K. Turekian and K.-Y. Wei, Productivity Control of Fine Particle Transport to Equatorial Pacific Sediment, *Glob. Biogeochem. Cycles*, 14, 945-955, 2000

Twomey, S., Pollution and the planetary albedo, *Atmos. Environ.*, 8, 1251-1256, 1974

Twomey, S., The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *J. Atmos. Sci.*, 34, 1149-1152, 1977

Twomey, S., Aerosols, clouds, and radiation, *Atmos. Environ.*, 25A, 2435-2442, 1991

Verseghy, D.L., CLASS-A Canadian land surface scheme for GCMs, I. Soil model, *Int. J. Climatol.*, 11, 111-133, 1991

Verseghy, D.L., N.A. McFarlane and M. Lazare, CLASS-A Canadian land surface scheme for GCMs, II. Vegetation model and coupled runs, *Int. J. Climatol.*, 13, 347-340, 1993

Wadleigh, M., A.L. Norman, C.C. Burridge, M. Scarratt, M. Levasseur, S. Sharma and C.S. Wong, Trends in atmospheric DMS resulting from the SERIES iron enrichment experiment in the subarctic Pacific Ocean, *Deep Sea Res.*, (2004-submitted)

Wanninkhof, R., Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean, *J. Geophys. Res.*, 97 (C5), 7373-7382, 1992

XREC: Rever En Couleurs v4.3.0, Div. de Recherche en Prevision Numerique, Environnement Canada, 2000

Zhang, G.J. and N.A. McFarlane, Sensitivity of climate simulations to the parametrization of cumulus convection in the Canadian Climate Centre General Circulation Model, *Atmos. Ocean*, 33, 407-446, 1995

Zhao, T.L., S.L. Gong, X.Y. Zhang and I.G. McKendry, Modelled Size-Segregated Wet And Dry Deposition Budgets Of Soil Dust Aerosol During Ace-Asia, 2001: Implications For Trans-Pacific Transport, *J. Geophys. Res.*, 108 (D23), ACE 33.1-33.9, 2003