



HAL
open science

Développement d'un nouveau schéma de physique des nuages dans le modèle de méso-échelle MésoNH pour l'étude des interactions aérosol-nuage

Sarah Berthet

► **To cite this version:**

Sarah Berthet. Développement d'un nouveau schéma de physique des nuages dans le modèle de méso-échelle MésoNH pour l'étude des interactions aérosol-nuage. Planète et Univers [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2010. Français. NNT: . tel-00542807

HAL Id: tel-00542807

<https://theses.hal.science/tel-00542807>

Submitted on 3 Dec 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)

Discipline ou spécialité : *Physique de l'Atmosphère*

Présentée et soutenue par Sarah BERTHET

Le vendredi 5 novembre 2010

Titre : *Développement d'un nouveau schéma de physique des nuages dans le modèle de méso-échelle MésoNH pour l'étude des interactions aérosol-nuage*

JURY

Serge CHAUZY

Alain PROTAT

Wolfram WOBROCK

Nathalie HURET

Maud LERICHE

Jean-Pierre PINTY

Professeur, Université Toulouse 3

Chargé de recherche CNRS, LATMOS

Professeur, Université de Clermont-Ferrand 2

Professeur, Université d'Orléans

Chargé de recherche CNRS, LA

Ingénieur de recherche CNRS, LA

Président

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Directeur de thèse

Codirecteur de thèse

Ecole doctorale : *Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)*

Unité de recherche : *Laboratoire d'Aérodynamique*

Directeur(s) de Thèse : *Maud LERICHE et Jean-Pierre PINTY*

Rapporteurs : *Alain PROTAT et Wolfram WOBROCK*

Remerciements

Mes premiers mots vont à Maud et Jean-Pierre qui, en me faisant confiance, m'ont permis de me plonger dans un nouvel univers, celui de la formation des nuages. Je vous en remercie, ainsi que pour votre encadrement attentif et bienveillant.

Merci aussi à Juan et Didier, sans qui mon aventure MésoNH eut été beaucoup plus périlleuse...! Merci pour votre disponibilité et votre patience. Merci aussi aux informaticiens du laboratoire pour leur efficace support technique.

Plus généralement, je remercie l'ensemble du laboratoire d'Aérodologie pour cet accueil sympathique : c'est en votre compagnie que j'ai découvert la recherche scientifique et ces trois années à vos côtés m'ont donné l'envie de poursuivre dans cette voie. J'adresse ce même remerciement à un certain nombre de personnes qui peuplent le laboratoire accolé, le LEGOS, car ils partagent leurs couloirs avec bonne humeur, y compris avec ceux qui ne parlent pas l'océanographie couramment.

Je tiens à remercier Alain Protat et Wolfram Wobrock, d'avoir accepté de rapporter ce travail, ainsi que Nathalie Huret pour sa lecture attentive. Je remercie aussi Serge Chauzy pour sa présidence du jury.

Bien sûr je remercie ma coloc' Amandine, avec qui j'ai partagé la plus grande partie de ces trois années dans un mélange de joie, de rires et d'inattendu. Et évidemment, tous ces gens qui me sont devenus si familiers, les filles : Susanna, EmiliePépin, François, Mlle Daloz, Jungle... Et les garçons : William, Bouch, Pedro-Amaël, Mr Barrrrrrtttt, SébastienArgence, Guish, GRenvez... Et beaucoup d'autres qui ont permis de donner des couleurs uniques à cette vie toulousaine.

Et aussi Julien, avec qui j'embarque dans l'aventure suivante.

Et bien sûr, ma famille, sans qui tout cela n'eut pas été possible...

Cela étant, dans cet enthousiasme de rencontres et de découvertes, je ne cacherai pas mon inquiétude face à ceux qui, sous couvert de réformes progressistes et d'obligations économique-financières, démontent patiemment un système de recherche et d'enseignement supérieur qui constituait l'une des voies amorcées vers

l'autonomie de la pensée, et donc un espoir de vraie démocratie. Ils ne seront guère surpris, mais ceux-là je ne les remercie pas.

Table des matières

1 Introduction générale	1
Introduction générale	1
Contexte scientifique	8
2 Aérosols à l'échelle du nuage	11
2.1 Les aérosols	13
2.2 Pas de nuages sans aérosols...	18
2.2.1 Nucléation des gouttelettes	18
a - Théorie de Köhler	18
b - Paramétrisations de l'activation des CCN	20
2.2.2 Nucléation hétérogène de la glace	23
a - Modes de nucléation	24
b - Congélation par contact	26
c - Congélation par immersion/condensation	28
d - Propriétés de nucléation des IN	32
e - Paramétrisations de la nucléation hétérogène de la glace	33
2.3 ...et l'aérosol s'en trouve modifié	37
2.3.1 Dépôt humide	37
2.3.2 "Aerosol processing by clouds"	38
2.4 Modélisation de l'interaction aérosol-nuage	40
2.4.1 Quelle résolution spatiale ?	40
a - Echelle globale	40
b - Mésos-échelle	42
c - Très haute résolution	43
2.4.2 Représentation modale des aérosols	43

Physique des nuages en phase mixte : le nouveau schéma de nucléation hétérogène MIMA	46
3 Microphysique nuageuse dans MésoNH	51
3.1 Généralités sur le modèle	52
3.2 Les particules de nuage	54
3.2.1 Classes d'hydrométéores	54
3.2.2 Représentation des hydrométéores	54
3.2.3 Expression des moments pour une loi gamma généralisée	55
3.3 Processus microphysiques	56
3.4 Schémas microphysiques préexistants	58
4 Bilan des aérosols dans MIMA	61
4.1 Equation de continuité	63
4.2 Lois de distributions	65
4.3 Activation	67
4.4 Lessivage par impaction	70
5 Lessivage par impaction des aérosols par les gouttes de pluie	73
5.1 Taux de lessivage des CCN interstitiels	75
5.1.1 Paramétrisation de l'efficacité de collection	76
5.1.2 Intégration par les méthodes de Gauss	79
5.1.3 Taux de lessivage en masse	82
5.2 Lessivage des IN	83
6 Activation d'une distribution polydispersée de CCN	85
6.1 Loi de Twomey étendue	86
6.1.1 Traitement simultané de plusieurs modes	87
6.1.2 Paramètres du spectre d'activation	88
6.2 Equation d'évolution de la sursaturation	90
6.3 Détermination du maximum de sursaturation	92
7 Nucléation hétérogène de la glace	95
7.1 Représentation de la population multimodale des IN insolubles	96
7.1.1 Composition chimique des IN	97
7.1.2 Mélange externe	98
7.1.3 Mélange interne	99
7.2 La paramétrisation de Phillips et al. [2008]	99
7.3 Adaptation aux IN insolubles	102

TABLE DES MATIÈRES

7.3.1	Spectre de référence	102
7.3.2	Concentration en IN <i>activables</i>	105
a -	IN de composition complexe : intégration par espèce . .	106
b -	Pour les températures supérieures à $-40^{\circ}C$	106
c -	Pour les températures inférieures ou égales à $-40^{\circ}C$. .	108
7.3.3	Cristaux formés	109
a -	Mélange externe	110
b -	Mélange interne	110
7.4	Adaptation aux IN enrobés	111
7.4.1	IN <i>enrobés</i> ?	111
7.4.2	Puits des IN <i>enrobés</i>	111
7.4.3	Paramétrisation	112
7.4.4	Cristaux formés	113
Premières expériences numériques utilisant le schéma MIMA		114
8	Impact de la représentation de la nucléation hétérogène de la glace sur un nuage orographique	117
8.1	Initialisation des scénarii	119
8.2	Résultats	121
8.2.1	Meyers versus MIMA	121
a -	Dynamique	122
b -	Hydrométéores	123
c -	Précipitations	126
8.2.2	Sensibilité à la concentration	128
8.2.3	Sensibilité au mélange interne	130
8.3	Conclusions	133
9	Sensibilité au lessivage et au profil vertical des CCN : cas d'une ligne de grain	135
9.1	La ligne de grain COPT	137
9.2	Initialisation des aérosols	138
9.3	Résultats	140
9.3.1	Simulation de <i>référence</i>	140
a -	Comportement général	140
b -	Aérosols	142
9.3.2	Effet du lessivage par impaction	144
9.3.3	Effet du profil d'aérosol	148

9.4 Conclusions	152
10 Cas d'étude 3 : système nuageux précipitant en interaction avec un panache d'aérosol	153
10.1 Effet des propriétés de nucléation des aérosols contenus par le panache	154
10.1.1 Panache de <i>CCN</i>	155
10.1.2 Panache d' <i>IN insolubles</i>	158
10.1.3 Panache d' <i>IN enrobés</i>	161
10.1.4 Effets comparés sur les précipitations	163
10.2 Variabilité du panache	165
10.2.1 Sensibilité à la concentration	166
10.2.2 Sensibilité à l'altitude	167
10.3 Conclusions	171
Conclusions et perspectives	173
Références	178
Annexes	191
A Principaux symboles	193
B Autres mécanismes de formation de la glace	199
B.0.1 Congélation homogène	199
B.0.2 Production secondaire de Hallett-Mossop	201
C Article 1 :	
Scavenging of aerosol particles by rain in a cloud resolving model, Berthet et al., 2010.	203
D Acronymes	205
Publications et conférences internationales	207

Table des figures

2.1	Processus impliquant les particules d'aérosol au sein du nuage. Source : Hoose et al. [2008b].	12
2.2	Principales sources naturelles émettrices d'aérosols. Source : Andreae [2007].	13
2.3	De la particule d'aérosol à la particule de nuage : sont indiqués les principaux modes et sources des particules d'aérosols, ainsi que leurs mécanismes de formation et de déplétion. Adapté de Whitby and Cantrell [1976].	14
2.4	Natures et valeurs des flux d'aérosols : compilation de plusieurs études sur l'année 2000. Source : Andreae and Rosenfeld [2008].	16
2.5	Évolution de la sursaturation en fonction du rayon à $T=293K$: cas d'une solution de NaCl ou d'une solution de $(NH_4)_2SO_4$, pour trois diamètres secs initiaux, $0.05\mu m$, $0.1\mu m$ et $0.5\mu m$. Source : Seinfeld and Pandis [1998].	20
2.6	Modes de nucléation hétérogène : a) par dépôt de vapeur (si $S_{v/g} > 1$), b) par immersion, c) par condensation (si $S_{v/e} > 1$ et T supérieure à la température de congélation T_c , dans un premier temps) et d) par contact. Inspiré de Vali [1999].	25
2.7	Deux alternatives de congélation pas contact : A) Contact conventionnel, un IN extérieur entre en contact avec la surface, B) "Inside-out contact", l'IN est à l'intérieur de la goutte et c'est l'évaporation de celle-ci qui provoque le contact avec la surface. Source : Durant and Shaw [2005].	26
2.8	Schématisation des processus impliqués au cours de l'enrobage des particules de suies dans le panache d'émission d'un moteur diesel. Source : Andreae and Rosenfeld [2008].	29

2.9 Résultats comparés de 5 paramétrisations pour la nucléation hétérogène de la glace en fonction du taux de refroidissement : a) Concentration en nombre de cristaux nucléés, b) Fraction d'IN activés (concentrations issues de a)) par rapport à la population initiale d'IN interstitiels de chaque espèce ("soot", "dust", "biogenic"). La légende au centre contient les codes de couleurs des deux figures : le schéma noté "Empirical" correspond au schéma original de Phillips et al. [2008], celui noté "L-D" à la paramétrisation proposé par Lohmann and Diehl [2006], "L-P" dénote la paramétrisation de Liu and Penner [2005], "K-C" la formulation de Khvorostyanov and Curry [2004] et "Meyers" celle de Meyers et al. [1992]. Les traits pleins représentent un IN complet (la somme de ces composés), les différents pointillés représentent chacun la contribution d'une seule espèce ("dust", "soot" ou "biogenic"). Source : Phillips et al. [2008]. 33

2.10 Concentration en nombre d'IN activés à, ou au-dessus de, la saturation par rapport à l'eau, en fonction de la température. Ces mesures ont été effectuées lors de différentes campagnes : WISP-94 (triangles gris), Alliance Icing Research Study-2 (croix), AMAZE-08 (carrés), Cloud Layer Experiment-10/Canadian Cloudsat/Calipso Validation Project (cercles vides), Ice in Clouds Experiment-Layer Clouds (cercles pleins), Ice Nuclei SPECTroscopy-1 (tirets), Ice Nuclei SPECTroscopy-2 (losanges), Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment (triangles noirs) et Pacific Dust Experiment (triangles vides). La ligne en pointillés gris correspond à un fit de toutes les données $[0.117exp(-0.125 * (T - 273.2))]$ ayant un coefficient de corrélation $r^2 = 0.2$. Source : DeMott et al. [2010]. 35

2.11 Schéma de synthèse des principaux processus de dépôt humide. Source : Seinfeld and Pandis [1998]. 38

2.12 Echelle spatiale d'intervention des processus de dépôt humide. Source : Seinfeld and Pandis [1998]. 39

3.1 Cycle des différentes classes d'hydrométéores présentes dans le modèle MésoNH. Source : adapté de W. Langhans, *Ecole d'été COPS 2007*. 55

3.2 Processus microphysiques pour un nuage en phase mixte, dans le modèle MésoNH. Avec r_v , le rapport de mélange de la vapeur, r_c celui de l'eau nuageuse, r_r de la pluie, r_i de la glace primaire, r_s de la neige, r_g du grésil et r_h de la grêle. 56

TABLE DES FIGURES

4.1 **a)** Schéma d'un spectre d'activation de forme $C_i S_{v/e}^{k_i} F_i$ (gris), pour un mode i de CCN. La concentration en CCN *activés* à t (vert) est déduite par différence entre la concentration en CCN *activables* à t (rose) et la concentration en CCN *déjà activés* à $t - dt$ (bleu). **b)** Schéma de la loi de distribution log-normale du mode i de CCN interstitiels; d_{crit} correspond au diamètre critique, à partir duquel sont activés les CCN de ce mode. Les axes sont en échelle logarithmique. 68

4.2 Représentation schématique de l'impact (courbe rose) du lessivage par impaction ("BCS") sur un spectre initial de CCN en gris. 71

5.1 Illustration de la dépendance croisée du coefficient de lessivage, fonction du diamètre des CCN interstitiels [μm] et du taux de pluie. Source : Berthet et al. [2010] 75

5.2 Principaux mécanisme de capture intervenant dans le lessivage par impaction : a) Diffusion brownienne, b) Interception et c) Impaction inertielle. . . . 78

6.1 Schématisation d'un spectre d'activation non borné $N_{CCN} = C S_{v/e}^k$ suivant une loi classique de Twomey [Twomey, 1959], en pointillés noirs, et, de la superposition de deux spectres de forme $N_{CCN} = C S_{v/e}^k \cdot F$, suivant une loi de Twomey étendue [Cohard et al., 1998], en rouge et vert. 88

6.2 Sensibilité du spectre d'activation (Eq. 6.1) aux paramètres C_i , k_i , μ_i et β_i . Les courbes noires illustrent différentes valeurs de μ_i , de 0.7 à 1.5, pour $k_i = 2$ et $s_{break} = \beta_i^{-2} = 10^{-1}$. Les courbes en pointillés illustrent deux valeurs de $s_{break} = \beta_i^{-2}$ (10^{-1} et 10^{-2}) pour $k_i = 0.5$ et $\mu_i = 2$. Les deux courbes rouges ($\mu_i \equiv 0$) représentent la loi classique $C S^k$ pour $k_i = 2$ et $k_i = 0.5$. Source : Cohard et al. [1998]. 89

7.1 Rapport du nombre d'IN activés sur la surface totale d'IN de diamètres équivalents inférieurs à $1\mu\text{m}$, en fonction de la sursaturation par rapport à la glace. Source : Klein et al. [2010]. 101

8.1 **a)** Transect 2D de simulation. **b)** Sondage à 00 UTC réalisé à Payerne où la température est à droite et la température du point de rosée à gauche. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008]. 119

8.2 Distribution en nombre des CCN interstitiels initialisés pour les différents scénarii. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008]. 120

8.3 **a)** Champ de vitesse verticale moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour le scénario utilisant le schéma développé au cours de cette thèse. **b)** Différence du champ précédent de vitesse verticale avec celui produit pour un scénario utilisant Meyers et al. [1992]. 123

8.4	Champ de concentration [$\text{cm}^3/\rho_{\text{air}}$], moyenné entre la 7ème et la 8ème heure, des CCN interstitiels dans le cas de la simulation avec MIMA.	124
8.5	Concentration en gouttelettes d'eau nuageuse [$\text{cm}^3/\rho_{\text{air}}$] moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour le scénario utilisant la paramétrisation a) de Meyers et al. [1992] et b) développée dans MIMA.	125
8.6	Champ de concentration [$\text{cm}^3/\rho_{\text{air}}$] moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, du mode d'IN interstitiels initialisé pour le cas utilisant MIMA et la concentration en cristaux en isocontours noirs [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$]	125
8.7	Observations in-situ de l'évolution temporelle de la concentration en cristaux à la Jungfrau [cm^{-3}]. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008].	126
8.8	Concentration en cristaux de glace primaire [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$] moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour le scénario utilisant la paramétrisation a) de Meyers et al. [1992] et b) développée dans MIMA.	127
8.9	Différence des contenus en glace moyennés entre la 7ème et la 8ème heure de simulation [kg/kg] entre le scénario avec Meyers et al. [1992] et celui développé au cours de cette thèse.	127
8.10	Cumul des précipitations totales en surface après 24 heures de simulation pour le scénario avec Meyers et al. [1992] en rouge, et celui développé au cours de cette thèse, en vert.	128
8.11	Concentrations en cristaux formés [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$] moyennées entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour un scénario initialisé avec une concentration en IN interstitiels égale à a) 1 L^{-1} , b) 10 L^{-1} et c) 100 L^{-1}	129
8.12	Cumul des précipitations totales en surface après 24 heures de simulation pour le scénario avec une concentration initiale en IN égale à 100 L^{-1} en rouge, 10 L^{-1} en vert et 1 L^{-1} en bleu.	130
8.13	Concentrations en cristaux formés [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$] moyennées entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour des scénarii initialisés avec une concentration en IN interstitiels égale à 10 L^{-1} a) en mélange interne standard, ou composé uniquement b) de suie, c) de poussières minérales et d) de composés biogéniques.	132
9.1	Coupe verticale schématique d'une ligne de grain. Source : Lafore and Moncrieff [1989].	136
9.2	Représentation schématique de l'initialisation de l'aérosol de fond. Le profil verticalement variable de la distribution trimodale des CCN interstitiels de fond est en bleu foncé, et celui constant, des IN interstitiels de fond en turquoise.	139

TABLE DES FIGURES

9.3 **a)** Ascendances verticales (isocontours noirs pour -0.5, -0.4, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8, 1, 1.5, 2 et 5 m/s) surperposées au champ de vitesse zonale (couleurs) et au contour nuageux à 10^{-6} kg/kg. **b)** Evolution temporelle du profil vertical moyen de la vitesse verticale pour la simulation de *référence* (REF). 141

9.4 **a)** Evolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en eau liquide ($q_c + q_r$) du nuage au cours de la simulation de *référence* (REF) en [kg/kg]. **b)** Evolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en glace ($q_i + q_s + q_g$) du nuage dans le cas de *référence* en [kg/kg]. 142

9.5 Pour la simulation de *référence* (REF) : **a)** La somme de 3 modes de la distribution de CCN *interstitiels* de fond ($[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$) est en couleurs, et les isocontours noirs correspondent à la concentration en gouttelettes nucléées ($[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$); les isocontours noirs sont sur la même base que l'échelle de couleurs (l'isocontour le plus à l'extérieur vaut $10 [\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$). **b)** En couleurs le mode d'IN de fond ($[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$), et en isocontours noirs la concentration en cristaux de glace nucléés. Les isocontours tracés sont [0.1, 1, 2, 5, 10, 20, 50] $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$ 143

9.6 Concentrations en nombre de : **a)** CCN de fond activés (couleurs) en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ et **b)** cristaux formés (couleurs) en $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$, dans le cadre de la simulation de *référence*. 144

9.7 Légende identique à celle de la Fig. 9.5, mais pour le cas de la simulation *sans lessivage* (NSC). 145

9.8 Légende identique à celle de la Fig. 9.6, mais pour le cas de la simulation *sans lessivage par impaction* (NSC). Attention, les concentrations en cristaux sont en $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$ 146

9.9 **a)** Anomalie (NSC - REF) de l'évolution temporelle du contenu en eau liquide entre la simulation *sans lessivage* et celle de *référence* (montrée en Fig.9.4 a)). **b)** Variation (NSC - REF) du profil vertical moyen du contenu en glace dans le cas *sans lessivage* par rapport au cas REF. 147

9.10 Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol à la fin des 8 heures de simulation. En rouge, le cumul pour la simulation de *référence* (REF), en vert pour la simulation *sans lessivage* (NSC). 147

9.11 Légende identique à celle de la Fig. 9.5, mais pour le cas de la simulation où la distribution de CCN de fond est initialisée selon un profil vertical *homogène* (HOM). 149

9.12 Légende identique à celle de la Fig. 9.6, mais pour le cas de la simulation où la distribution de CCN de fond est initialisée selon un profil vertical *homogène* (HOM). 149

9.13 Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol à la fin des 8 heures de simulation. En rouge, le cumul pour la simulation de *référence* (REF), en vert pour la simulation où le profil vertical des CCN de fond est *homogène* (HOM). 150

10.1 **a)** Représentation schématique de l'initialisation du panache de pollution (rose). L'aérosol de fond est identique à celui présenté sur la Fig.9.2, **b)** Concentrations en CCN interstitiels de pollution (couleurs) et en gouttelettes (isocontours), toutes deux en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ 156

10.2 **a)** Concentration en nombre de CCN de fond activés (couleurs) à laquelle est superposée la concentration en CCN contenus par le panache qui ont été activés (isocontours), toutes deux en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$, et **b)** Concentration en cristaux formés $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$, pour la simulation avec un panache de CCN. **c)** Anomalie de la concentration en gouttelettes (couleurs) par rapport au cas REF $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$, et **d)** Anomalie de la concentration en cristaux (couleurs) par rapport au cas REF $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$. Les pointillés noirs tracent le contour nuageux à 10^{-6} kg/kg pour le cas avec le panache de CCN, et les rouges, celui du cas REF. 157

10.3 **a)** Anomalie de l'évolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en eau liquide du nuage entre la simulation avec un panache de CCN et celle de *référence* (CCN - REF) en [kg/kg]. **b)** Variation de l'évolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en glace du nuage dans le cas CCN par rapport au cas REF (CCN -REF) en [kg/kg]. 158

10.4 **a)** Concentration en *gouttelettes* $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ dans le cas d'un panache contenant des *IN insolubles*. **b)** Concentration en *cristaux de glace* formés pour ce même cas $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$. **c)** Anomalie de la concentration en gouttelettes $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ et **d)** anomalie de la concentration en cristaux $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$, par rapport au cas REF. Sur ces deux dernières figures, les pointillés noirs indiquent le contour du nuage à 10^{-6} kg/kg pour le scénario avec le panache d'*IN insolubles*, et les rouges, celui du cas REF. 159

10.5 Légende identique à celle des Figs.10.3 **a)** et **b)**, mais pour le scénario avec un panache contenant uniquement des *IN insolubles*. 160

10.6 **a)** Concentrations en CCN *activés* [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$] dans le cas où le panache contient des *IN enrobés* : les concentrations des CCN de fond *activés* sont en couleurs, et la concentration en CCN de pollution qui ont été *activés* en isocontours. **b)** Concentrations en cristaux formés pour le même scénario [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$]. **c)** Anomalie de la concentration en gouttelettes et **d)** anomalie de la concentration en cristaux pour le cas avec un panache d'*IN enrobés*, par rapport au cas REF. Sur ces deux dernières figures, les pointillés noirs indiquent le contour du nuage à 10^{-6} kg/kg pour le scénario avec le panache d'*IN enrobés*, et les rouges, celui du cas REF. 162

10.7 Légende identique à celle des Figs.10.3 **a)** et **b)**, mais pour le scénario avec un panache contenant uniquement des *IN enrobés*. 163

10.8 Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol après 8 heures de simulation. En rouge, le cumul associé à la simulation de *référence*, en vert, celui relatif au panache de CCN, en bleu foncé celui du cas avec un panache d'*IN insolubles* et en bleu clair celui avec le panache d'*IN enrobés*. 164

10.9 Superposition d'un panache de CCN concentré à raison de **a)** 10000 cm^{-3} et **b)** 10 cm^{-3} . La concentration en nombre de CCN interstitiels contenus par le panache est représentée en couleurs et la concentration en gouttelettes résultante en isocontours (toutes deux sont en [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$]). 166

10.10 **a)** Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol après 8 heures de simulation dans le cas d'un panache de CCN. En rouge est tracé le cumul pour la simulation REF, en vert celui pour le cas où la concentration du panache vaut 1000 cm^{-3} , en bleu foncé pour le panache à 10 cm^{-3} , en bleu ciel pour le cas où le panache contient 10000 particules par cm^3 , en rose pour le panache à 5000 cm^{-3} et en jaune à 2000 cm^{-3} . **b)** Idem, mais pour un panache d'*IN enrobés*. 167

10.11 Concentration en nombre de CCN interstitiels du *mode de pollution* (couleurs) en [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$] et concentration en gouttelettes (isocontours) en [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$] pour les cas de simulations où l'on change l'altitude du panache de pollution de CCN : **a)** pour un panache initialisé entre la surface et 2 km, **b)** pour un panache initialisé entre 9 km et 16 km. 168

10.12 Concentrations en nombre de cristaux de glace formés [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$] dans les cas d'un panache de pollution contenant des CCN interstitiels pour la colonne de gauche [a), c) et e)], ou des *IN enrobés* pour la colonne de droite [b), d) et f)], en fonction de l'altitude à laquelle est initialisée le panache : **a-b)** 0–2 km, **c-d)** 3–5 km ou **e-f)** 9–16 km. 169

10.13 Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol après 8 heures de simulation : **a)** dans le cas d'un panache de *CCN*, **b)** pour un panache d'*IN enrobés*. En rouge, le cumul pour la simulation où le panache de 2 km est centré sur l'isotherme 0°C (à ~ 4 km), en vert pour la simulation où le panache est situé dans les plus basses couches entre la surface et 2 km, et en bleu dans le cas où le panache est initialisé entre 9 km et 16 km. 170

B.1 Illustration de la révision de la nucléation homogène : la courbe (1) représente l'ancienne théorie classique, qui diverge des mesures pour les températures inférieures à -30° C. La courbe (2) a été calculée à partir de la révision opérée pour les faibles températures. Source : Pruppacher [1995]. 200

Chapitre 1

Introduction générale

La représentation explicite de nuages dans les modèles d'atmosphère à haute résolution s'appuie sur des schémas de physique des nuages de plus en plus sophistiqués. En haut de l'échelle figurent les schémas "bin" [Flossmann et al., 1985] qui décrivent l'évolution de chaque type de particule (gouttes d'eau sphériques et cristaux de glace de formes multiples) dans un intervalle de taille donné. Toutefois, cette approche très précise mobilise un nombre considérable de variables d'état 3D (~ 100 à 200 champs à intégrer) pour couvrir toute la gamme de taille et de type de particules possibles. En conséquence, cette méthode conduit à des simulations présentant un coût très prohibitif pour des applications courantes. Une seconde technique très utilisée en physique des nuages consiste, moyennant quelques hypothèses sur la distribution dimensionnelle des particules, à suivre seulement l'évolution de quelques quantités intégrales (rapport de mélange, concentration et moment d'ordre 6). Ce type de schémas dits "bulk" présente l'avantage d'être moins gourmand en ressources de calcul (< 20 champs à intégrer) tout en décrivant avec suffisamment de précision l'évolution physique des nuages et des précipitations. En fonction du nombre de quantités intégrales considérées (une, deux ou trois), ces schémas sont désignés comme des schémas à un [Kessler, 1969; Tripoli et al., 1988; Walko et al., 1995], deux [Meyers et al., 1997] ou trois moments [Milbrandt and Yau, 2005] (le terme "moment" est ici pris au sens de l'analyse statistique pour caractériser les densités de probabilité). La plupart des modèles numériques de recherche possède un schéma à deux moments où les rapports de mélange et les concentrations en nombre de particules sont les variables d'état 3D dont on suit l'évolution. C'est sur ce type de schéma numérique "bulk" à deux moments que porte cette thèse.

Le suivi des concentrations des gouttes et des cristaux de glace pose une question spécifique liée à l'initiation des gouttelettes et des cristaux de glace primaire de quelques microns. Depuis longtemps [Koehler, 1936; Fletcher, 1958] on sait que les petites gouttes et cristaux de glace primaires, ce qu'on appelle les particules "nuageuses" du fait de leur faible vitesse de chute, ne peuvent être créés sans particules d'aérosol qui sont des substrats liquides ou solides, d'origine naturelle et anthropique, de taille submicronique jusqu'à quelques microns. Ainsi chaque gouttelette et cristal de glace élémentaire est directement issu de l'activation ¹ d'une particule d'aérosol dans un environnement thermodynamique donné (degré de sursaturation de la vapeur d'eau et température essentiellement). Plus simplement, aucun nuage ne peut se former dans une atmosphère totalement dépourvue d'aérosols !

La plupart des aérosols sont des particules chimiquement actives, qui suscitent l'intérêt principalement à cause des modifications qu'elles apportent au bilan radiatif terrestre. Les aérosols affectent le bilan radiatif du système terrestre soit *directement*, par leur interaction avec le rayonnement électromagnétique (absorption/diffusion des ondes courtes (solaire) et longues (IR)) (*effet direct*), soit, et cela ne concerne qu'une fraction des aérosols, ils l'affectent *indirectement* en nucléant les hydrométéores primaires (gouttelettes et cristaux primaires) qui, à travers leurs formes, leurs masses et leurs contenus en eau, déterminent les propriétés radiatives et précipitantes d'un nuage. Trois effets décrivent classiquement les relations entre aérosols, nuage et précipitations. Le *premier effet indirect* (ou effet d'albedo) est énoncé comme une augmentation du nombre de gouttelettes formées en réponse à une augmentation de la concentration en noyaux de condensation, pour un contenu en eau liquide constant. Il est caractérisé par une diminution du diamètre effectif des gouttelettes et une augmentation de la réflectivité du nuage [Twomey, 1974; Jiang and Feingold, 2006; Quaas et al., 2009]. Le *second effet indirect* a été formulé par Albrecht [1989]. Suite à une diminution de la taille de ces gouttelettes d'eau nuageuse, les processus de coalescence des gouttelettes sont moins efficaces. Il en résulterait ainsi une baisse de la concentration en gouttes formées, ayant pour conséquences une diminution des précipitations reçues en surface et une augmentation du temps de résidence de l'eau nuageuse dans l'enceinte nuageuse ; le temps de vie d'un tel nuage serait allongé [Jiang and Feingold, 2006]. Le dernier effet, l'*effet semi-direct* [Koch and Genio, 2010], envisage les conséquences de l'absorption du rayonnement solaire incident par les aérosols interstitiels, au sein du nuage. Ces

¹Ce terme qui sera précisé ultérieurement, inclut les phénomènes de nucléation hétérogène de la glace. Ici "activation" décrit le phénomène physique générique de transition particule d'aérosol - particule nuageuse

aérosols réémettent une partie du rayonnement qu'ils absorbent, ce qui réchauffe localement l'atmosphère. L'hypothèse est que ce réchauffement modifie le profil de température et d'humidité, inhibe la formation de nuages et provoque l'évaporation partielle des nuages présents. Parallèlement, la quantité de rayonnement qui atteint la surface s'en trouve réduite. Ainsi, si le souci de suivre l'évolution des particules nuageuses (gouttelettes et cristaux primaires) susceptibles de se former dans un nuage rejoint des préoccupations fondamentales actuelles sur l'impact radiatif des aérosols, l'impact des aérosols en physique des nuages dépasse largement le simple aspect radiatif puisque la durée de vie d'un nuage est liée à ses propriétés précipitantes.

Récemment, la description classique des effets indirects a été nuancée par Stevens and Feingold [2009] : si l'effet de suppression des précipitations est visible pour quelques types de systèmes nuageux (principalement les systèmes peu précipitants comme les stratocumulus ou les "ship tracks"), il n'est pas généralisable à l'ensemble des systèmes (systèmes convectifs caractérisés par de fortes précipitations). Stevens and Feingold [2009] suggèrent que la réponse de chaque système doit être analysée individuellement, car les perturbations en aérosols subies par ces systèmes contribuent à réorganiser le nuage, ce qui ne permet pas de quantifier simplement un effet sur les précipitations. En effet, si la concentration en aérosol de l'environnement modifie l'efficacité des nuages à produire des hydrométéores précipitants, elle le fait par l'interaction complexe des processus microphysiques avec la dynamique du nuage.

Partant de ces constatations assez générales, il apparaît que la maîtrise de la simulation d'un système nuageux quelconque dans un modèle d'atmosphère à haute résolution ne peut se concevoir sans suivi quantitatif et simultané des particules d'aérosol. L'aspect original de ce travail consiste donc à promouvoir l'idée qu'à un schéma de physique des nuages à deux moments et au-delà, doit être adjoint un bilan en concentration des aérosols suffisamment précis pour mettre en évidence les principaux effets liés à la variabilité spatio-temporelle des particules d'aérosol, qui constituent l'unique source des particules nuageuses.

A l'échelle d'un nuage précipitant en phase mixte, i.e. qui comporte une phase liquide et une phase glacée, les aérosols interviennent de manière complexe : selon leur nature, ils initient la phase chaude par activation des noyaux de condensation (Cloud Condensation Nuclei : CCN) et la phase froide par la formation de germes de glace sur les noyaux glaçogènes (Ice (Freezing) Nuclei : IN). La plupart des particules d'aérosol peuvent agir soit en tant que CCN, soit comme IN ou alors présente les

deux propriétés à la fois, c'est à dire de CCN puis d'IN lorsqu'il s'agit de nucléation de la glace par immersion. Plusieurs différences fondamentales existent entre CCN et IN. Selon la théorie de Köhler, les CCN sont des particules partiellement ou totalement solubles qui, de ce fait, agissent en volume (terme de Raoult). A l'opposé, les IN sont des particules insolubles dont les propriétés d'aptitude à nucléer, c'est à dire à former un germe de glace, ne dépendent que de l'état de surface (i.e. de la cristallographie du réseau, des dislocations qu'il comprend, ect.). Bien que les concentrations en aérosols soient naturellement variables puisqu'elles dépendent principalement de la distance aux sources d'aérosols, on peut cependant considérer qu'en moyenne les concentrations en CCN (de 10 à 1000 particules par cm^3) sont de 4 à 6 ordres de grandeur supérieures à celle des IN (de 0.1 à 100 particules par litre). Cette forte asymétrie entre CCN et IN n'est pas sans conséquences lorsqu'il s'agit de connaître avec précision la concentration et les propriétés nucléantes des -relativement- rares IN présents dans l'atmosphère, qui sont à l'origine de la phase glacée des nuages en phase mixte.

Un second aspect qui caractérise les aérosols et détermine leur impact sur le nuage, est leur nature chimique (dans ce cas, c'est surtout vrai pour les CCN) et leur distribution en taille a priori multimodale². En règle générale ce sont les plus grosses particules qui expriment en priorité leur propriété de CCN ou d'IN lorsque les conditions d'humidité et de température le permettent. Du point de vue de la physique des nuages, les CCN sont décrits par un spectre d'activation qui donne le nombre de CCN activables à une sursaturation donnée. Le cas des IN est similaire quoique nettement plus complexe, beaucoup moins documenté et où l'efficacité de nucléation est aussi parfois donnée en fonction de la température (le nombre d'IN activables augmente lorsque la température diminue). Ainsi il se pose immédiatement la question de générer le spectre d'activation des CCN selon la composition physico-chimique et la distribution en taille des particules (le cas des IN est traité beaucoup plus sommairement faute d'une théorie générale et consensuelle de la nucléation hétérogène des IN). Dans ce qui suit, la nature chimique des CCN, qu'ils comportent ou non une composante organique, sera traitée de manière simplifiée puisqu'ici les CCN seront assimilés à du sulfate d'ammonium pur en solution. L'impact d'une composition chimique variable des CCN comportant des espèces minérales et organiques hydrophiles ou hydrophobes constitue par ailleurs un vaste sujet de recherche en soi.

²La distribution dimensionnelle des particules est très souvent approchée par une somme de lois de distribution lognormales qui constituent autant de "modes".

L'idée d'un bilan des particules d'aérosol pour une application en physique des nuages à haute résolution doit mettre essentiellement en avant des termes liés à l'interaction avec les nuages et les précipitations et donc négliger des termes propres à la physique des aérosols (coagulation intermodale, équilibres avec la phase gazeuse, sédimentation), qui présentent des constantes de temps supérieures à la journée. Ainsi outre le transport à l'échelle résolue et le transport turbulent, les effets pris en compte sont la déplétion des CCN et des IN par activation et le lessivage par impaction par les gouttes de pluie. Insistons ici sur le fait que si on traite une seule variable concentration en gouttelettes et en cristaux de glace primaire, on sera amené à détailler le bilan des particules d'aérosol mode par mode de manière à être capable de combiner plusieurs sources indépendantes d'aérosols. Une configuration typique comprend trois modes de CCN et un mode d'IN de fond auxquels on pourra être amené à superposer un nombre quelconque de modes de CCN et d'IN additionnels traduisant une source environnementale secondaire (externe) d'aérosols.

En résumé, cette thèse propose de décrire et de tester un schéma de physique des nuages à deux moments, doté d'avancées récentes concernant la représentation multimodale des processus d'activation des CCN et des IN, mais qui surtout met l'accent pour la première fois sur l'intérêt à s'appuyer sur un bilan, même simplifié, des particules d'aérosol valable à l'échelle du nuage. Par rapport aux schémas actuels de cette catégorie, notre approche fait apparaître de plus larges possibilités. En effet, la mission première d'un schéma de physique des nuages est de suivre avec précision la formation des hydrométéores précipitants dans tout type de nuage donc la formation de la pluie pour le cycle chaud et celle de la neige, du grésil, de la grêle et ... de la pluie si la glace précipite dans de l'air à température positive, pour le cycle froid. En revanche, le traitement des concentrations des espèces microphysiques fait appel à des paramétrisations plus ou moins élaborées dont le but est d'estimer un nombre de particules formées localement selon la température ou la sursaturation. Ainsi la plupart des schémas à deux moments reposent souvent sur l'hypothèse que le nombre de CCN et d'IN n'est pas limitant lorsque ces particules, se trouvent placées dans des conditions thermodynamiques où elles deviennent activables. Or comme cela a été évoqué plus haut, ce sont les concentrations finies et extrêmement variables de ces aérosols dans l'atmosphère qui déterminent celles en particules de nuage. A ce jour, aucun schéma "bulk" connu de physique des nuages n'intègre explicitement à la fois l'aspect multimodal et la variabilité spatiale du champ d'aérosol à l'échelle du nuage. Le travail présenté ici examine la question de la disponibilité immédiate en aérosol et, par là-même, propose un premier bilan

de l'effet net des nuages (transport convectif et lessivage sélectif, par nucléation et par impaction par les gouttes de pluie) sur la redistribution spatiale des particules d'aérosol.

Le premier chapitre de ce travail présente le contexte scientifique de l'étude. Il comporte trois parties. On définit d'abord les principaux effets des aérosols sur la structure nuageuse, i.e. les notions générales se rapportant à la formation d'une particule de nuage à partir d'une particule d'aérosol. Ces notions sont complétées par une revue des différentes approches développées pour décrire ces processus d'initiation. Dans un second temps, sont énumérés les rétroactions du nuage sur ces champs d'aérosol. Enfin, une troisième partie dresse l'état de l'art des paramétrisations utilisées dans les différents modèles dédiés à l'étude des interactions aérosol-nuage.

Le chapitre 3 présente l'outil numérique dans lequel ont été implantés ces développements : le modèle Mésoscale Model (MesoNH), support de ce travail. Afin de rendre compte des effets des aérosols sur la formation, la microphysique et, même, la dynamique d'un système nuageux, les développements présentés dans cette partie, visent à composer un bilan des particules d'aérosol aptes à initier les particules de nuages ; cette notion de bilan est explicitée au chapitre 4. Deux processus principaux viennent perturber les champs de concentrations d'aérosols. Le chapitre 5 détaille la paramétrisation utilisée pour tenir compte du lessivage des particules d'aérosols par impaction avec les gouttes de pluie. Les chapitres 6 et 7 présentent les formulations de l'activation des CCN et des IN implantées dans le modèle. Le chapitre 6 explicite l'importance d'une représentation multimodale de la population des aérosols, ainsi que ses conséquences sur la manière de déterminer les aérosols aptes à former des gouttelettes. Le chapitre 7 présente une paramétrisation globale des différents mécanismes conduisant à la formation de cristaux de glace à partir des IN.

Afin d'illustrer les potentialités du schéma microphysique développé au cours de cette thèse, intitulé MIMA (pour "MIxte Multimodal Aerosol"), deux types de systèmes nuageux ont été modélisés : un nuage orographique et une ligne de grain. Le premier cas de nuage orographique est pris comme base pour étudier la sensibilité d'un nuage à la formulation de la nucléation hétérogène de la glace. C'est l'objet du chapitre 8. La sensibilité d'un système nuageux aux caractéristiques spatiales du champ d'aérosol est ensuite analysée au chapitre 9 à partir de la formation d'une ligne de grain. Enfin, la perturbation d'une structure nuageuse suite à l'addition d'un panache d'aérosols secondaires est modélisée au chapitre 10.

Pour conclure, les perspectives de ce premier travail intégrant l'interaction aérosol-nuage seront évoquées après un résumé des principaux résultats liés à l'implantation de ce nouveau schéma microphysique dans MésoNH.

Contexte scientifique

Chapitre 2

Aérosols à l'échelle du nuage

Sommaire

2.1 Les aérosols	13
2.2 Pas de nuages sans aérosols...	18
2.2.1 Nucléation des gouttelettes	18
2.2.2 Nucléation hétérogène de la glace	23
2.3 ...et l'aérosol s'en trouve modifié	37
2.3.1 Dépôt humide	37
2.3.2 "Aerosol processing by clouds"	38
2.4 Modélisation de l'interaction aérosol-nuage	40
2.4.1 Quelle résolution spatiale?	40
2.4.2 Représentation modale des aérosols	43

Les particules d'aérosol interviennent à plusieurs niveaux de la microphysique nuageuse. La Fig. 2.1 représente la diversité des phénomènes dans lesquels elles sont impliquées, de leur formation à leur lessivage par les précipitations.

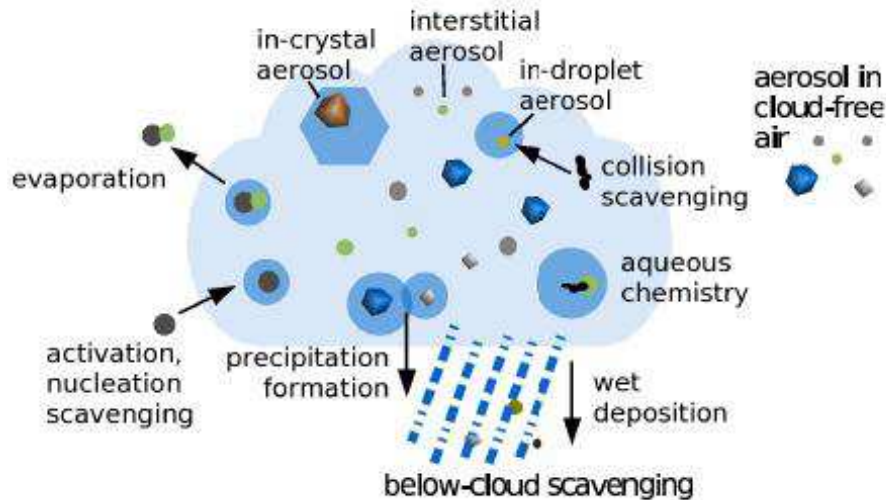


Fig. 2.1 – Processus impliquant les particules d'aérosol au sein du nuage. Source : Hoose et al. [2008b].

Cette figure illustre les deux aspects des interactions aérosol-nuage :

- comment, via la nucléation hétérogène, l'intervention de ces particules détermine la quantité d'hydrométéores primaires formée, et par là, les caractéristiques de la structure nuageuse, et
- comment ces particules d'aérosol peuvent être à leur tour modifiées, physiquement et chimiquement, par ce nuage, à la suite de leur incorporation dans les précipitations ou les hydrométéores primaires (transformation par la chimie en phase aqueuse puis restitution par l'évaporation).

L'appréhension de ces interactions entre aérosols et nuages peut donc être réalisée à plusieurs niveaux, en fonction de l'objet étudié. L'investigation de l'impact de multiples populations d'aérosols, sur le nuage, réclame une description moins fine des processus liés à l'évolution physico-chimique de ces aérosols, que l'étude de l'impact du nuage sur l'aérosol. Après une brève caractérisation de l'aérosol atmosphérique, on présentera comment sont appréhendés les processus par lesquels les aérosols modifient la structure nuageuse. Puis, les processus nuageux qui, en retour, affectent l'évolution physico-chimique des aérosols seront abordés. La troisième partie de ce chapitre est dédiée aux différentes approches de la modélisation de l'interaction aérosol-nuage.

2.1 Les aérosols

L'aérosol atmosphérique n'est pas constitué par une population homogène de particules. Il englobe une large gamme de particules, de compositions et de tailles très variables ; les propriétés physico-chimiques de ces particules d'aérosol sont une fonction, à la fois de la nature de la source qui les a émises, et des altérations qu'elles ont subies au cours de leurs existences.

On distingue deux grandes catégories de sources à l'origine des particules d'aérosol : les sources *naturelles* et les sources *anthropogéniques*. A l'intérieur de chacune d'entre elles, on observe une importante variabilité physico-chimique des aérosols émis. La figure 2.2 illustre la multiplicité des sources naturelles.

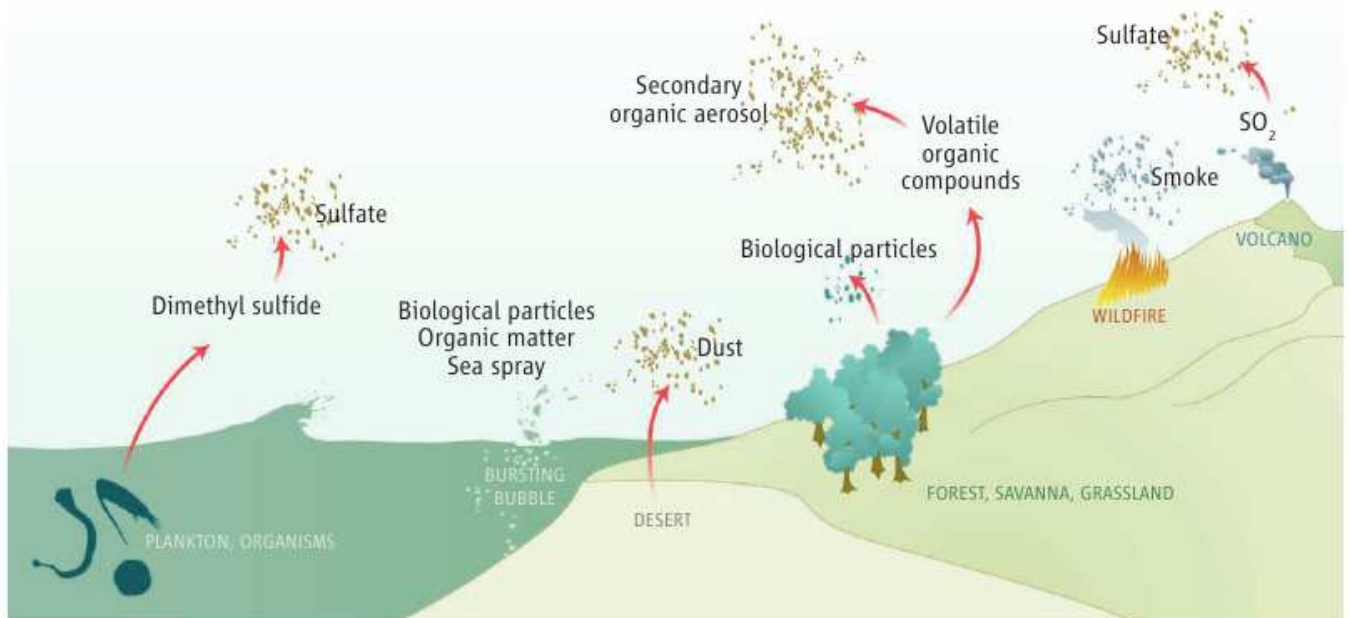


FIG. 2.2 – Principales sources naturelles émettrices d'aérosols. Source : Andreae [2007].

La figure 2.3 présente les deux principaux mécanismes à l'origine de l'aérosol atmosphérique ; ces mécanismes permettent d'établir une distinction entre les différents types de sources à l'intérieur de chacune des deux grandes catégories :

Aérosols primaires On appelle *aérosols primaires*, les particules émises directement par la surface, sous forme solide ou liquide dans l'atmosphère. Ce type d'aérosols comprend les sels marins, les poussières minérales, les résidus issus de

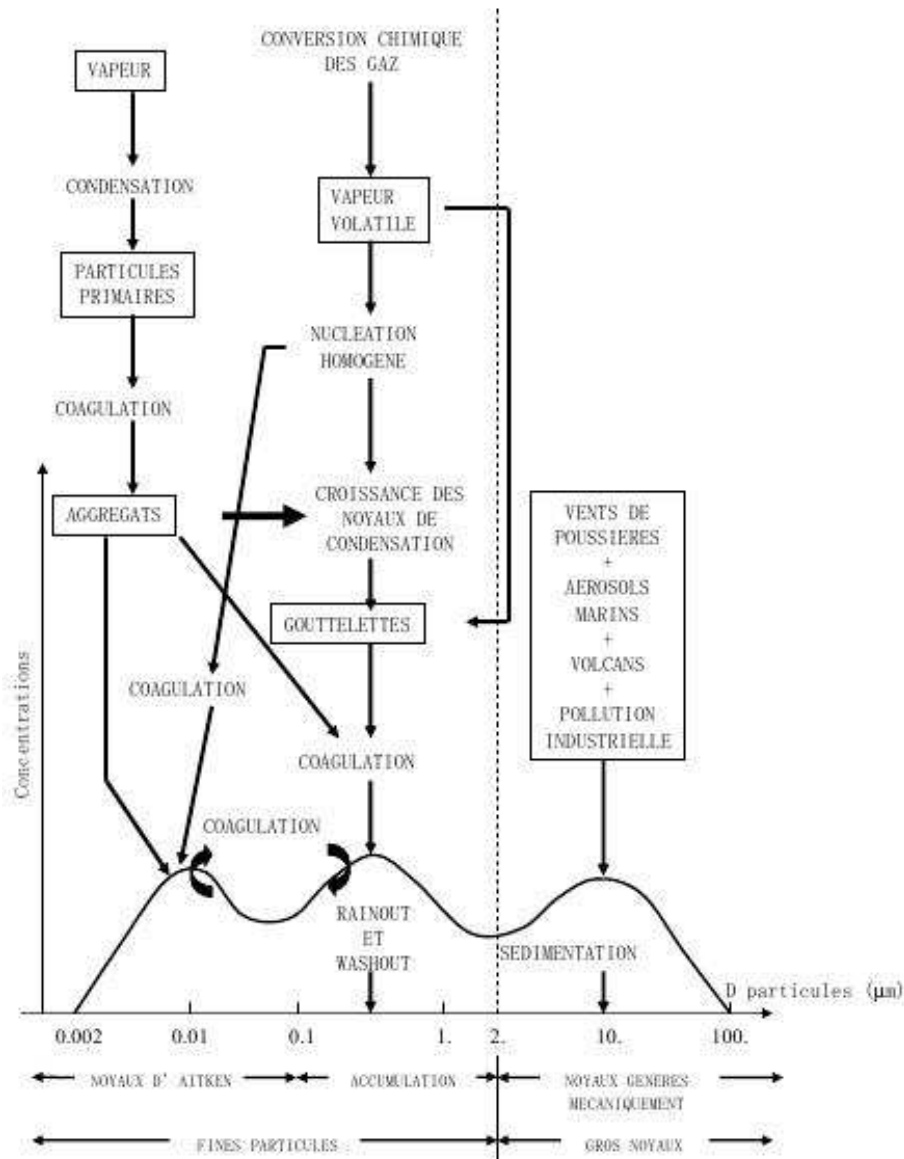


FIG. 2.3 – De la particule d'aérosol à la particule de nuage : sont indiqués les principaux modes et sources des particules d'aérosols, ainsi que leurs mécanismes de formation et de déplétion. Adapté de Whitby and Cantrell [1976].

feux, ainsi que les particules biologiques comme le pollen, les micro-organismes (microbes, bactéries, champignons) et les débris de plantes. En général, ces aérosols ont des diamètres compris entre 0.1 et quelques dizaines de microns.

Aérosols secondaires On nomme *aérosols secondaires*, les particules formées (ou transformées) dans l'atmosphère à partir de précurseurs gazeux d'origine biogénique ou anthropogénique ; les sulfates sont formés par oxydation du diméthylsul-

fure biogénique ou du dioxyde de soufre (produit par les volcans ou par certains procédés industriels), et les aérosols organiques secondaires (dont l'acronyme anglais est SOA) proviennent de la transformation des composés organiques volatiles (plus généralement appelés COV, ou VOC en anglais). Les aérosols secondaires sont donc formés par nucléation sur des embryons gazeux initiés soit à partir du même gaz (nucléation homogène homo-moléculaire) soit à partir d'une autre espèce gazeuse (nucléation homogène hétéro-moléculaire). Ils peuvent aussi être initiés par nucléation hétérogène, c'est à dire à partir d'un corps étranger : l'embryon se forme alors sur un ion ou une particule solide en suspension dans l'atmosphère. Ce mécanisme de genèse de nouvelles particules initie des particules d'aérosol de très petites tailles, dites ultra-fines. Ce groupe d'aérosols contient aussi les aérosols primaires qui ont subi des transformations chimiques au cours de leur transport.

Le tableau de la figure 2.4 présente les flux moyens d'aérosols, estimés à partir d'une quinzaine d'études, pour l'année 2000 [Andreae and Rosenfeld, 2008]. Ce cadastre d'émission renseigne sur la nature des sources émettrices, et sur leurs importances respectives.

En dépit de leur grande variabilité physico-chimique, les aérosols sont classés en deux catégories, au regard de leurs capacités nucléantes : on distingue les particules capables d'initier la formation des gouttelettes d'eau nuageuse, de celles aptes à déclencher la formation de cristaux de glace primaire. Ainsi, la fraction des aérosols qui a la capacité de former des hydrométéores primaires au sein d'un nuage, est divisée en deux sous-populations :

Noyaux de condensation La première contient des particules d'aérosol ayant des propriétés suffisamment solubles et hydrophiles pour déclencher la formation de gouttelettes d'eau nuageuse, d'où leur nom (en anglais "CCN", qui signifie "Cloud Condensation Nuclei"). Les concentrations en nombre de CCN varient entre quelques particules par centimètre cube, à plusieurs centaines dans les régions marines polluées par les aérosols continentaux ou le transport [Andreae and Rosenfeld, 2008], voire à quelques milliers de particules par centimètre cube en milieu urbain [DeMott et al., 2010] ou dans les régions de l'hémisphère sud, caractérisées par des feux de biomasse au cours de la saison sèche [Andreae and Rosenfeld, 2008]. La plupart des espèces inorganiques caractérisées par une grande solubilité, comme le sulfate d'ammonium, et une partie des espèces carbonées contenant des matériaux solubles (depuis leur émission ou après enrobage) peuvent être des CCN. Toutefois, Petters et al. [2009] montrent qu'au moment de leur émissions, la

Particle emission/production and burdens estimated for the year 2000

	Mass emission			Mass Burden	Number Prod.	Number Burden
	"Best guess"	Min	Max			
		Tg a ⁻¹		Tg	a ⁻¹	
<i>Carbonaceous aerosols</i>						
Primary organic (0-2 µm)	95	40	150	1.2	-	310 · 10 ²⁴
Biomass burning	54	26	70	-	7 · 10 ²⁷	-
Fossil fuel	4	3	9	-	-	-
Biogenic	35	15	70	0.2	-	-
Black carbon (0-2 µm)	10	8	14	0.1	-	270 · 10 ²⁴
Open burning and biofuel	6	5	7	-	-	-
Fossil fuel	4.5	3	6	-	-	-
Secondary organic	28	2.5	83	0.8	-	-
Biogenic	25	2.5	79	0.7	-	-
Anthropogenic	3.5	0.05	4.0	0.08	-	-
<i>Sulfates</i>	200	107	374	2.8	2 · 10 ²⁸	-
Biogenic	57	28	118	1.2	-	-
Volcanic	21	9	48	0.2	-	-
Anthropogenic	122	69	214	1.4	-	-
<i>Nitrates</i>	18	12	27	0.49	-	-
<i>Industrial dust, etc.</i>	100	40	130	1.1	-	-
<i>Sea salt</i>						
d < 1 µm	180	60	500	3.5	7.4 · 10 ²⁶	-
d = 1-16 µm	9940	3000	20,000	12	4.6 · 10 ²⁶	-
Total	10,130	3000	20,000	15	1.2 · 10 ²⁷	27 · 10 ²⁴
<i>Mineral (soil) dust</i>						
< 1 µm	165	-	-	4.7	4.1 · 10 ²⁵	-
1-2.5 µm	496	-	-	12.5	9.6 · 10 ²⁵	-
2.5-10 µm	992	-	-	6	-	-
Total	1600	1000	2150	18 ± 5	1.4 · 10 ²⁶	11 · 10 ²⁴

FIG. 2.4 – Natures et valeurs des flux d'aérosols : compilation de plusieurs études sur l'année 2000. Source : Andreae and Rosenfeld [2008].

plupart des aérosols émis par les feux de biomasse sont déjà des CCN potentiels pour de vigoureuses ascendances convectives, et qu'il n'est pas nécessaire qu'ils subissent un enrobage supplémentaire (vieillesse chimique ou condensation de composés organiques secondaires) pour modifier leur hygroscopicité.

Noyaux glaçogènes Cette seconde sous-population renferme les particules d'aérosol capables d'initier la formation de cristaux de glace primaire. Ces particules sont désignées par l'acronyme anglais "IN" ("Ice Nuclei"). Ces IN sont, en principe, naturellement insolubles, mais, comme nous le verrons par la suite, certains d'entre eux peuvent exhiber une partie soluble. L'aptitude d'un IN à nucléer un cristal de glace est fortement liée à ses propriétés de surface. Bien que les concentrations en nombre de particules soient intrinsèquement liées aux propriétés des

sources qui les génèrent, la concentration des IN est, en général, inférieure de plusieurs milliers à celle des CCN; les concentrations en IN oscillent de quelques particules à quelques centaines par litres [DeMott et al., 2010]. Santachiara et al. [2010] dressent un rapide inventaire des espèces capables d’agir en tant que noyau glaçogène. Les aérosols de composition organique (comme les bactéries, les pollens, les lichens, les champignons, les résidus de végétation), les aérosols inorganiques (comme le sont les poussières volcaniques et celles résultant de l’érosion des surfaces), ainsi que certaines particules émises par des sources anthropogéniques (comme les suies, les oxydes métalliques issus de l’industrie de l’acier et des fonderies de cuivres), sont aptes à nucléer des cristaux.

Distribution d’aérosols

Dans la suite de ce travail, le terme de "mode" sera souvent repris pour parler d’un type spécifique d’aérosol, regroupé autour de propriétés d’activation identiques. La figure 2.3 repère les différents modes de particules d’aérosol existants dans l’atmosphère. Elle renseigne sur la dénomination communément employée pour ces modes en fonction de leur taille. Le *mode d’Aitken* regroupe les plus petites particules, de diamètres inférieurs à $0.1\mu\text{m}$, qui viennent d’être formées ou émises. Ces particules croissent dans l’atmosphère par coagulation ou par condensation de gaz, et lorsque leurs diamètres atteignent des tailles comprises entre $0.1\mu\text{m}$ et $1\mu\text{m}$, on considère qu’elles appartiennent au *mode d’accumulation*. Les particules de diamètres supérieurs à $1\mu\text{m}$ constituent un mode appelé le *mode grossier* et leurs grandes tailles témoignent de processus d’émissions mécaniques (érosion, volcanisme...).

Les dimensions qui caractérisent les différents modes de particules sont importantes, car elles déterminent leur type d’interaction avec la structure nuageuse; la plupart des mécanismes microphysiques incluant les aérosols dépendent de la taille de ces derniers. Ainsi, le lessivage par impaction avec les gouttes précipitantes, est-il d’une efficacité moindre dans le domaine de diamètres des modes d’Aitken et d’accumulation; en revanche, ces modes fournissent de nombreux noyaux de condensation pour la nucléation de gouttelettes d’eau nuageuse. Les particules insolubles du mode grossier constituent d’efficaces noyaux glaçogènes.

2.2 Pas de nuages sans aérosols...

2.2.1 Nucléation des gouttelettes

Si, en théorie, il est possible d'initier des gouttelettes d'eau nuageuse par nucléation *homogène*, les sursaturations requises pour un tel processus dépassent de plusieurs ordres de grandeurs celles observées dans l'atmosphère [Pruppacher and Klett, 1997]. En réalité, les gouttelettes qui composent un nuage ne sont formées que grâce à l'intervention de noyaux de condensation. Ainsi, il est entendu implicitement, que l'initiation des gouttelettes suit un processus de nucléation *hétérogène*.

a - Théorie de Köhler

Les CCN peuvent être assimilés à des "impuretés" (Sportisse [2008]) qui, par l'introduction d'une interface air-particule favorisent la condensation en diminuant la pression de vapeur saturante de l'eau requise dans l'air environnant. Ces particules d'aérosol atmosphérique sont caractérisées par une hygroscopicité [Pruppacher and Klett, 1997] et une tension de surface [Saxena et al., 1995] qui déterminent l'humidité relative pour laquelle elles passent d'un état sec à un état humide, puis sont activées sous forme de solution saturée. L'activation des CCN est un phénomène qui intervient lorsque la quantité de vapeur contenue dans l'environnement devient assez importante pour modifier l'équilibre entre la pression de vapeur autour des CCN humides et la pression de vapeur saturante de l'air, au point que les volumes de ces CCN-solutions puissent augmenter par diffusion de vapeur. Une gouttelette se forme si suffisamment de vapeur d'eau se condense autour de ces noyaux. Pour un aérosol soluble ayant une fraction insoluble, la théorie de Köhler décrite par Pruppacher and Klett [1997] prévoit l'évolution de la sursaturation ($S_{v/e}$) à l'interface entre l'air et la solution aqueuse, en fonction des propriétés physico-chimiques de l'aérosol sec (r_{sec}), et de l'aérosol humide correspondant. Cette théorie nous permet de prévoir l'évolution du rayon humide (r_{hum}) de l'aérosol en fonction de ces propriétés sèches (r_{sec}), pour des conditions thermodynamiques données :

$$\begin{aligned}
 S_{v/e} = \frac{P_v}{P_{v,sat}(T)} - 1 &\simeq \frac{2 M_{eau} \sigma_{(eau/air)}}{\rho_{eau} \mathcal{R} T r_{hum}} - \frac{\nu \phi_s \rho_a M_{eau}}{M_{sol} \rho_{eau} r_{hum}^3} \cdot \frac{m_{sol}}{m_{sec}} - 1 \\
 &= \frac{A}{r_{hum}} - \frac{B r_{sec}^3}{r_{hum}^3 - r_{sec}^3}
 \end{aligned} \tag{2.1}$$

où $P_{v,sat}(T)$ est la pression de vapeur saturante par rapport à l'eau. ν renseigne le nombre d'ions formés à partir de la dissolution d'une molécule : on compte au total $\frac{\nu m_{sol}}{M_{sol}}$ moles d'ions de soluté (i.e. la fraction des "impuretés" soluble dans l'eau). Une liste des symboles est donnée en Annexe A.

Le premier terme du membre de droite de l'Eq.2.1 représente le terme *de courbure*, dit de Kelvin, qui indique que la pression de vapeur saturante à l'interface air-solution est d'autant plus grande que le rayon de la goutte r_{hum} est petit ; la pression de vapeur au-dessus d'une surface courbe est toujours supérieure à celle au-dessus d'une surface plane, ainsi le terme de Kelvin a-t-il tendance à augmenter la pression de vapeur.

Quant au second terme, le terme de Raoult, il mesure l'effet de la solubilité des substances composant l'aérosol, sur la pression de vapeur saturante ; plus ces substances sont solubles, plus la pression de vapeur requise pour déclencher la condensation à l'interface air-solution est réduite. On détermine ici la facilité de la vapeur dans l'air à condenser à la surface de l'aérosol, en fonction de sa solubilité ($B = B(sol)$).

La Fig. 2.5, tirée du livre de Seinfeld and Pandis [1998], illustre l'évolution d'un aérosol en fonction de la sursaturation ambiante, lors du passage de l'aérosol sec à un état humide, puis à un état activé. L'aérosol est considéré activé quand son diamètre devient supérieur au diamètre pour lequel la sursaturation est maximale ; la valeur du maximum de sursaturation est définie comme la *sursaturation critique* de l'aérosol ($S_{v/e}^{crit}$). Le diamètre-seuil du processus d'activation qui correspond à cette sursaturation critique, s'appelle le *diamètre critique*.

Deux types de solutions sont représentées : une de sulfate d'ammonium (en pointillés) et l'autre de chlorure de sodium (traits continus). On regarde l'évolution du diamètre de particules d'aérosol composées par l'une des deux solutions, pour trois diamètres secs initiaux de $0.05\mu\text{m}$, $0.1\mu\text{m}$ et $0.5\mu\text{m}$.

Un aérosol sera activé s'il se trouve dans des conditions de sursaturation environnantes qui dépassent la sursaturation critique qui le caractérise. Dans le cas d'un aérosol partiellement soluble, le rayon critique humide (r_{crit}) est égal à :

$$\left. \frac{dS_{v/e}}{dr} \right|_{crit} = 0 \Rightarrow r_{crit} = -\frac{D}{2} + \left[\frac{D^2}{4} - E \right]^{\frac{1}{2}} \quad (2.2)$$

$$\text{où } D = \frac{2B^2A - 6BAS_{v/e}^{crit}}{3B(S_{v/e}^{crit})^2 - 3B^2S_{v/e}^{crit}} \text{ et } E = \frac{3BA^2}{3B(S_{v/e}^{crit})^2 - 3B^2S_{v/e}^{crit}}$$

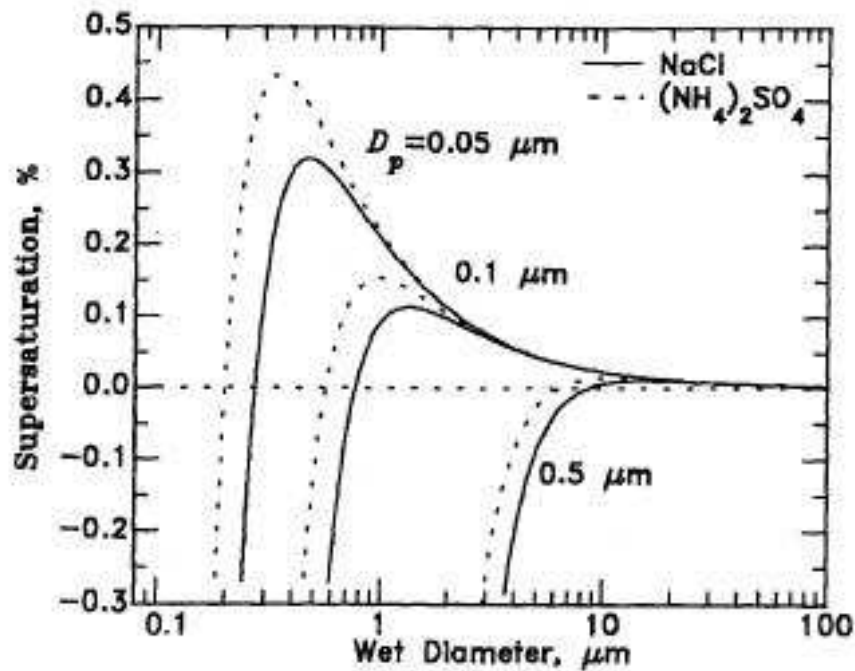


FIG. 2.5 – Évolution de la sursaturation en fonction du rayon à $T=293\text{K}$: cas d'une solution de NaCl ou d'une solution de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, pour trois diamètres secs initiaux, $0.05\mu\text{m}$, $0.1\mu\text{m}$ et $0.5\mu\text{m}$. Source : Seinfeld and Pandis [1998].

En s'appuyant sur la figure 2.5, on voit que pour une atmosphère à 0.2% de sursaturation les particules de diamètres secs initiaux égaux à $0.1\mu\text{m}$ et $0.5\mu\text{m}$, pourront être activées, alors que celles de diamètres secs égaux à $0.05\mu\text{m}$ ne le pourront pas. On remarque sur cette figure, que l'activation est un processus fortement dépendant de la taille de celles-ci ; plus la particule est petite plus l'humidité relative ambiante qu'elle nécessite pour s'activer est élevée. Cela illustre l'effet de courbure. On remarque aussi que, pour un même diamètre, la différence de composition modifie l'efficacité d'activation de l'aérosol. C'est là l'effet de solubilité. Ces deux effets (relatifs à la taille et à la composition) constituent les propriétés de nucléation d'un CCN, ce sont eux qui déterminent la rapidité avec laquelle seront nucléées les gouttelettes pour une atmosphère donnée, et en quelle quantité.

b - Paramétrisations de l'activation des CCN

L'activation des CCN est un processus diagnostique qui dépend principalement de la valeur maximale de la sursaturation en un point. Les temps caractéristiques des processus déterminants la sursaturation sont de l'ordre de 0.01 seconde, ce

qui oblige à des pas de temps de calcul très petits si l'on souhaite les résoudre explicitement. C'est pourquoi dans les modèles la sursaturation est calculée selon une approche diagnostique.

On distingue deux types d'approche pour le diagnostique de cette *sursaturation maximale* :

- les modèles à microphysique "bin". Ces modèles extraient la valeur maximale du champ de sursaturation qu'ils calculent à chaque pas de temps à partir de la théorie de Köhler,
- les modèles à microphysique "bulk". Ceux-là assument l'hypothèse d'ajustement à saturation, ce qui les oblige à paramétrer le maximum de sursaturation.

Modèles à microphysique "bin" Les modèles dans lesquels les spectres des particules d'aérosols et de nuage sont représentés explicitement, en les distribuant sur des classes de diamètres, sont appelés des modèles à microphysique "bin" ("classe par classe" en français). Ces modèles fonctionnent à partir d'une "sursaturation flottante", c'est à dire qu'ils résolvent un champ de sursaturation à chaque pas de temps. Toutefois, cela les oblige à intégrer le modèle sur de très petits pas de temps, car le taux de condensation, que l'on souhaite calculer explicitement à partir de cette sursaturation, varie très rapidement. Le pas de temps peut être augmenté, en ayant recours à des champs moyens pour, soit prédire directement la sursaturation maximale soit intégrer explicitement le taux de croissance des gouttes [Caro, 2002].

Dans ce cas, on utilise la connaissance des variations, spatiale et *temporelle*, du champ $S_{v/e}^{crit}(x, y, z, t)$, pour le calcul de la concentration en CCN activés. En général un rayon critique correspondant à l'aérosol sec est déduit de la sursaturation critique [Iguchi et al., 2008; Khain et al., 2000]. Ce rayon critique sec constitue le rayon au-delà duquel les CCN sont activés. Cette méthode de résolution explicite nécessite à la fois de connaître la composition chimique des CCN considérés et les fluctuations de la sursaturation.

Modèles à microphysique nuageuse "bulk" Dans un modèle comme MésoNH, le module de microphysique nuageuse est construit à partir d'hypothèses sur les lois de distributions des particules de nuage et d'aérosol, c'est pourquoi on qualifie ces modules de "bulk".

Ces modèles font en général l'hypothèse d'un *ajustement à saturation*, c'est à dire qu'il ne peut exister de *sursaturation* en aucun point du domaine. Cette hypothèse est justifiée par le comportement hautement variable de la sursaturation en réponse à l'état local de l'atmosphère ; et parce que ces variations ne dépassent jamais quelques pourcents. La description de ces fluctuations réclame une résolution très fine qui, comme nous l'avons abordé pour les modèles à microphysique "bin", nécessite des pas de temps extrêmement petits et ne se satisfait guère de valeurs moyennes.

En conséquence de cette hypothèse d'ajustement à saturation, dans ces modèles il est nécessaire de paramétrer le calcul de la sursaturation maximale, en chaque point.

Pour évaluer le taux de variation de la sursaturation $\frac{dS_{v/e}}{dt}$ dans la parcelle d'air, la distribution des CCN interstitiels $n_{ai}(d_a)$ doit être exprimée dans l'espace des sursaturations critiques $n_{ai}(S_{crit})$ (détails en section 6.1). L'expression de cette distribution $n_{ai}(S_{crit})$ permet le calcul de la valeur maximale de sursaturation $S_{v/eMAX}$, qui, elle, détermine la concentration en CCN activables.

Là encore on distingue deux types d'approches pour exprimer $n_{ai}(S_{crit})$.

★ **Description explicite des propriétés physico-chimiques de l'aérosol** La première s'appuie directement sur la théorie de Köhler. On considère une parcelle d'air en ascension à vitesse constante, au sein de laquelle résident des gouttelettes d'eau nuageuse, formées après activation de certains CCN. Le mécanisme physique de l'activation d'un CCN interstitiel en une gouttelette d'eau nuageuse a été décrit par la théorie de Köhler (section a -).

L'approche de Abdul-Razzak et al. [1998] consiste à diagnostiquer une sursaturation maximale afin de résoudre le spectre analytique de CCN que von der Emde and Wacker [1993] ont déterminé à partir de la théorie de Köhler ; ce spectre est ainsi fonction des mêmes propriétés physico-chimiques de l'aérosol que la théorie de Köhler.

A l'aide d'un changement de variable entre d_a et S_{crit} , leur méthode [Abdul-Razzak et al., 1998; Fountoukis and Nenes, 2005] s'appuie directement sur le S_{crit} résultant de la théorie de Köhler pour exprimer $n_{ai}(S_{crit})$. Cette méthode oblige à une connaissance initiale approfondie de la composition chimique de l'aérosol et de ses propriétés de surface.

Fountoukis and Nenes [2005] reprennent cette approche en y incluant une méthode d'intégration développée par Nelson and Seinfeld [2003], qui permet de déterminer plus rigoureusement les valeurs particulières de la sursaturation maximale, et de s'abstraire des modifications post-intégration opérées par Abdul-Razzak et al. [1998].

★ **Description via un spectre d'activation** Récemment Roberts and Nenes [2005] et Moore and Nenes [2009], ont mis au point un instrument aéroporté qui permet d'établir une mesure rapide du spectre d'activation des CCN échantillonnés, en soumettant les particules prélevées dans l'atmosphère à différentes sursaturations de façon contrôlée. Ce type de mesures permet de déterminer les propriétés d'activation d'une population de CCN, sans nécessairement avoir à caractériser en détail ses propriétés physico-chimiques (comme les tensio-actifs qui modifient les propriétés de la surface, la quantité d'ions ν , le coefficient osmotique ϕ_s ...).

L'approche privilégiée dans cette thèse consiste à paramétrer $n_{ai}(S_{crit})$ par un spectre d'activation intégrable, comme la loi puissance proposée par Twomey [1959]. On utilise ici celui proposé par Cohard et al. [1998] (présenté à la section 6.1) qui ne nécessite pour toutes informations initiales que les coefficients du spectre lui-même; ces coefficients sont des fonctions des paramètres de la distribution dimensionnelle (d_a , σ_a) et de la fraction massique de matériel insoluble composant l'aérosol (ϵ_{ai}). En résumé, les propriétés physico-chimiques de la particule d'aérosol sont prises en compte de façon indirecte, via le spectre d'activation qui, lui, oblige à un niveau de détails moindre que l'approche précédente.

2.2.2 Nucléation hétérogène de la glace

Dans les nuages en phase mixte, deux mécanismes principaux sont à l'origine de la formation de cristaux de glace primaire, suivant l'intervention ou non de noyaux glaçogènes.

1. La *nucléation homogène* est le mécanisme de congélation de gouttelettes d'eau surfondues ou de solutions, ne contenant pas de substrat solide. Il intervient à des températures très basses (Khvorostyanov and Curry [2004] l'estiment effectif pour $T < -38^\circ \text{C}$) : la théorie classique de la nucléation prévoit que, plus le refroidissement est important, plus le rayon critique du germe de glace nucléé de façon homogène pourra être petit et, plus l'énergie nécessaire à sa formation sera faible. La congélation de solutions aqueuses intervient dans les nuages les plus froids, pour des températures inférieures à -42°C .

2. La *nucléation hétérogène*, elle, autorise la formation de cristaux de glace dès que la température passe en-dessous de zéro. L'intervention d'un noyau glaçogène permet d'abaisser la quantité d'énergie nécessaire à la formation d'un germe de glace dans l'air. S'il est sec, l'IN autorise la condensation solide de la vapeur d'eau à sa surface, et s'il est immergé il provoque la congélation de la solution qui l'héberge à une température plus élevée que la température caractéristique de la congélation homogène.

Un troisième mécanisme producteur de cristaux existe, le processus de *multiplication des cristaux* de "Hallett-Mossop", qui forme de petits cristaux par éclatement des gouttelettes au cours du givrage des hydrométéores glacés. Ce travail de thèse est focalisée sur les processus faisant intervenir des particules d'aérosol, c'est pourquoi ce dernier mécanisme, ainsi que celui de nucléation homogène, ne seront pas abordés dans cette étude. Toutefois une plus ample description, incluant les domaines de validité et les formulations de ces processus, pourra être trouvée en annexe B de ce manuscrit.

Les très faibles températures requises pour la formation de cristaux par nucléation homogène, laisse penser qu'une partie importante de la glace formée dans les *nuages en phase mixte*, est initiée par congélation hétérogène. Dans ces nuages, les températures balaient un large domaine, compris entre la température du sol et des températures inférieures à -38°C . Ainsi, pour la partie froide de ces nuages comprise entre $0 < T < -38^{\circ}\text{C}$, la *nucléation hétérogène* se révèle être le seul mécanisme effectif de production de cristaux de glace primaire ; d'où l'importance d'une bonne description de ce mécanisme pour les nuages en phase mixte, et pour ce domaine de températures, où il est seul producteur de cristaux.

a - Modes de nucléation

Les nombreuses études liées à la formation des cristaux de glace (dont Diehl and Wurzler [2004]; Hoose et al. [2008b]; Khvorostyanov and Curry [2004]; Lee et al. [2008]; Lohmann and Diehl [2006]; Pruppacher and Klett [1997]; Vali [1999]...) ont estimé que les IN pouvaient nucléer des cristaux par le biais de différents mécanismes. Les mécanismes de nucléation hétérogène les plus couramment admis sont :

1. la nucléation par *dépôt de vapeur* (Fig. 2.6a) : dans un environnement sursaturé par rapport à la glace où $T < 0^{\circ}\text{C}$, la vapeur d'eau congèle directement en surface de l'IN par condensation solide,

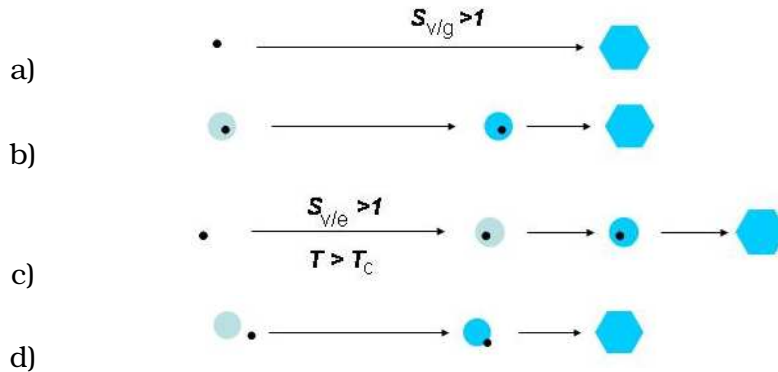


FIG. 2.6 – Modes de nucléation hétérogène : a) par dépôt de vapeur (si $S_{v/g} > 1$), b) par immersion, c) par condensation (si $S_{v/e} > 1$ et T supérieure à la température de congélation T_c , dans un premier temps) et d) par contact. Inspiré de Vali [1999].

2. la nucléation par *immersion* (Fig. 2.6b) : un IN, préalablement immergé à une température supérieure à 0°C , déclenche la congélation de la gouttelette qui l'accueille,
3. la nucléation par *condensation* (Fig. 2.6c) : s'il existe une particule ayant une double aptitude de nucléation (CCN et IN) dans la partie froide du nuage, et que l'environnement est sursaturé par rapport à l'eau liquide, la particule d'aérosol est activée comme un CCN pour une température en-dessous de 0°C . Elle forme une gouttelette qui va congeler au cours du processus de condensation [Pruppacher and Klett, 1997]. Ici, le temps de résidence de l'IN dans la gouttelette est moindre que dans le cas du mode de nucléation par immersion [Niedermeier et al., 2010]. Le volume d'eau dans lequel l'IN se retrouve immergé est aussi moins conséquent que pour le mode par immersion, c'est uniquement une mince couche d'eau qui est adsorbée en surface de l'IN.
4. la congélation par *contact* (Fig. 2.6d) : le contact entre un IN insoluble et la surface d'une gouttelette d'eau surfondue déclenche la congélation instantanée de cette dernière.

Bien que son existence soit reconnue depuis plusieurs dizaines d'années, la nucléation hétérogène n'est, à ce jour, formalisée par aucune théorie générale. En dehors de leurs mise en équations peu aisée, les modes-mêmes de nucléation par lesquels elle intervient font encore débat au sein de la communauté des microphysiciens. Ceux énoncés ci-dessus (congélation par dépôt de vapeur, condensation, immersion ou contact conventionnel) sont les plus communément cités, mais leur importance respective reste jusqu'alors très mal évaluée. De plus, la divergence entre les quantités de cristaux observés et les quantités de cristaux prédits, amène

à envisager l'hypothèse de nouveaux modes de nucléation [Fridlind et al., 2007], comme l'"inside-out contact" décrit ci-dessous. L'état des connaissances pour les modes de congélation par contact et par immersion/condensation, dont les formulations sont encore sujettes à débat, va maintenant être discuté.

b - Congélation par contact

La congélation par contact décrit conventionnellement la collision entre un IN insoluble interstitiel et une gouttelette d'eau surfondue, qui, lors du contact entre l'IN et la surface de la gouttelette, entraîne la congélation de cette dernière. Récemment un nouveau mécanisme de nucléation par contact a été proposé, qui met en jeu un IN au sein d'une gouttelette. Ces deux mécanismes de contact sont représentés sur la figure 2.7.

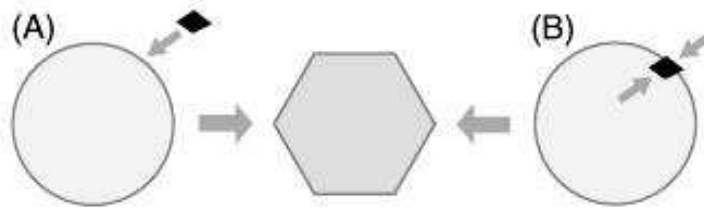


FIG. 2.7 – Deux alternatives de congélation par contact : A) Contact conventionnel, un IN extérieur entre en contact avec la surface, B) "Inside-out contact", l'IN est à l'intérieur de la goutte et c'est l'évaporation de celle-ci qui provoque le contact avec la surface. Source : Durant and Shaw [2005].

"Inside-out contact" Le contact *inside-out* a été observé par Durant and Shaw [2005] au cours d'expériences en laboratoire. Ici l'IN qui entre en collision avec la surface de la gouttelette provient de l'intérieur de celle-ci (cf figure 2.7).

Contrairement au mode de contact conventionnel, ici l'IN n'est pas interstitiel, mais il est supposé immergé au préalable dans la gouttelette. Ce mode de nucléation est aussi appelé "evaporation freezing" : lorsque la gouttelette s'évapore, le volume de celle-ci se réduit et l'interface eau-air migre vers le centre de la gouttelette jusqu'à entrer en contact avec l'IN immergé ; ce contact entre la surface et l'IN immergé déclenche la congélation du volume d'eau, à des températures plus chaudes que celles effectives lors de la congélation par immersion [Durant and Shaw, 2005].

Les études menées par Cotton and Field [2002]; Field et al. [2001] l'envisagent comme un nouveau mode de nucléation qui permettrait d'expliquer les importantes concentrations en cristaux observées dans les nuages lenticulaires ("wave clouds").

Toutefois, si ce phénomène a été recréé en laboratoire (pour des tailles de gouttes très grandes peu réalistes), il n'a pas été observé lors d'évènements nuageux réels.

Limites du contact conventionnel Le contact conventionnel impliquant une collision entre un IN insoluble, extérieur à la gouttelette, et la surface de celle-ci, est l'un des modes de nucléation hétérogène largement étudié au cours des dernières années [Cotton et al., 1986; Diehl et al., 2006; Fridlind et al., 2007; Hoose et al., 2008b; Lee et al., 2008; Lohmann and Diehl, 2006; Meyers et al., 1992; Young, 1974a]. Néanmoins son expression sous forme de paramétrisation est toujours en suspens, car il demeure peu aisé de synthétiser à la fois les différentes influences susceptibles de provoquer le contact (mouvement brownien, forces inertielles, forces électrophorétiques), et les propriétés intrinsèques du noyau à l'origine de la congélation.

Young [1974a] est à l'origine d'une paramétrisation de la fraction des IN *actifs par contact* qui est communément utilisée (reprise par Cotton et al. [1986]; Lohmann and Diehl [2006]; Young [1974b]) dans les modèles. Toutefois, cette paramétrisation ne tient pas compte des propriétés individuelles des IN : la même température de congélation est assignée à tous les IN et un réservoir d'IN constant est considéré. Ainsi dans ce type de paramétrisation, la concentration en nombre d'IN actifs par contact dépend uniquement de la température sans refléter les capacités nucléantes des aérosols impliqués.

En outre, et comme cela est discuté dans la section suivante, plusieurs auteurs envisagent qu'une part non-négligeable de la population des IN soit en fait constituée d'une fraction soluble, visible sous forme de couche soluble adsorbée par une partie de la surface de ces noyaux [Khvorostyanov and Curry, 2004]. Or, il est acquis que cette couche soluble, sur toute -ou une partie de- la surface, modifie les propriétés de l'IN : les propriétés de surface en jeu pour la nucléation. Hoose et al. [2008b] estiment d'ailleurs que ces IN enrobés vont plus facilement nucléer des cristaux par immersion ou condensation. Toutefois, les paramétrisations du mode de contact ont été établies à travers des expériences en laboratoires pour des IN entièrement insolubles.

La question est de savoir en quelle mesure il peut alors être pertinent de persévérer à utiliser des paramétrisations pour le mode de nucléation par contact dont l'expression est largement limitée par notre connaissance du processus (e.g. elles sont établies pour des IN entièrement insolubles, et considèrent que tous les IN ont une unique température de congélation) ?

De plus, au regard des récentes études publiées [de Boer et al., 2010; Khvorostyanov and Curry, 2009; Niedermeier et al., 2010; Phillips et al., 2008], la congélation par contact ne semble pas être le mode de nucléation dominant. Contrairement à la congélation par immersion, les effets de la congélation par contact sont surtout observables sur un petit domaine de températures en-dessous de zéro, sur lequel ce mode de nucléation n'entre pas en compétition avec les autres modes plus prolifiques en cristaux (comme la congélation par immersion).

Ce type d'interrogations nous laisse envisager la nucléation par contact comme un mode secondaire de formation de cristaux.

c - Congélation par immersion/condensation

Solubilité des IN Les mécanismes de nucléation hétérogène précédents ont d'abord été pensés pour des IN entièrement insolubles, i.e. pour des particules sèches, provenant de différentes sources (cf section 2.1).

Cela étant, le nombre d'observations et d'expériences considérant qu'une partie des IN a une double capacité nucléante, i.e. que certains IN sont à la fois CCN par leur partie soluble et IN par leur partie insoluble, s'accroît [Santachiara et al., 2010]. Twohy et al. [2009] montrent que lorsqu'un nuage (un petit cumulus par exemple) est pollué par un panache de poussières ("dust"), la quantité de gouttelettes formées est augmentée. Les mesures attestent que les gouttes échantillonnées contiennent ces poussières. Cela montre que ces poussières, ordinairement envisagées comme des IN, peuvent endosser un rôle de CCN dans les nuages contenant de l'eau liquide.

Dans leur introduction, Khvorostyanov and Curry [2004] estiment, en s'appuyant sur les travaux de Chen et al. [1998]; Rogers et al. [1998, 2001]; Young [1993], que les IN ne sont pas *nécessairement* des particules complètement insolubles, et que la plupart des IN sont composés d'une fraction soluble; selon eux, les expériences qui ont décelé une fraction soluble sur certains IN, utilisaient une instrumentation (analyse par rayons X) qui ne permettait pas de détecter les frac-

2.2 Pas de nuages sans aérosols...

tions solubles inférieures à 10%. Leur idée est que, si l'on effectuait des mesures avec un seuil de détection plus fin de la fraction soluble, alors la quantité de particules détectées ayant une double aptitude de nucléation, serait considérablement accrue.

La faculté de cette catégorie d'IN, de servir préalablement de CCN s'ils se retrouvent dans la partie chaude du nuage, peut être soit due à leur fraction soluble naturelle, soit à un enrobage de surface déposé au cours de leur transport après interactions avec les gaz atmosphériques [Twohy et al., 2009]. Dans le cas des IN enrobés ("coated IN", en anglais), on considère que ce sont des particules d'aérosols insolubles dont la surface aurait adsorbée un dépôt soluble, en général, du sulfate ou du nitrate [Hoose et al., 2008b]. Sur la figure 2.8 sont présentés des exemples de processus chimiques, débouchant sur l'enrobage de particules de suies par des espèces organiques ou des sulfates, au moment de l'émission.

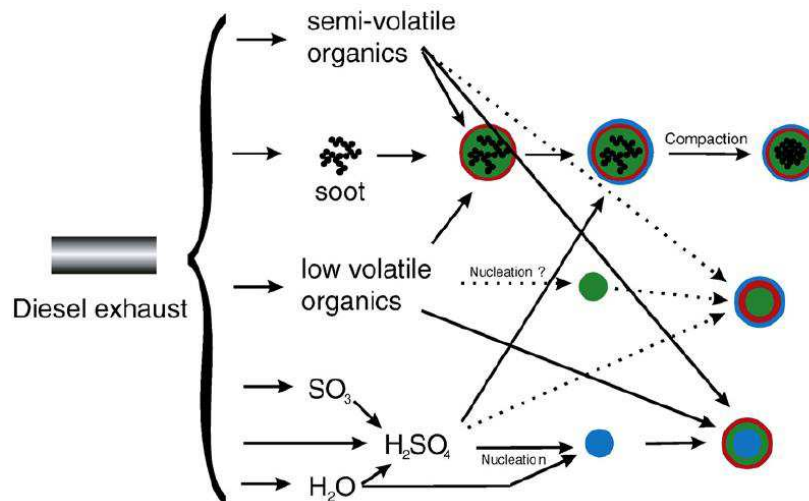


FIG. 2.8 – Schématisation des processus impliqués au cours de l'enrobage des particules de suies dans le panache d'émission d'un moteur diesel. Source : Andreae and Rosenfeld [2008].

Ce type de particule est doublement intéressant dans notre problématique de formation des hydrométéores. Il agit d'abord en tant que noyau de condensation, en initiant une gouttelette d'eau nuageuse qui contient le matériau insoluble. Ensuite, si la gouttelette est transportée à des températures suffisamment négatives, cette partie insoluble pourra servir de noyau glaçogène et provoquer la congélation de l'eau surfondue qui l'entoure. Ces IN sont a priori actifs par immersion ou condensation [Hoose et al., 2008b], et non pas par contact ou dépôt de vapeur, qui semblent être des modes de nucléation qui requièrent des aérosols insolubles.

Au regard des faibles concentrations que compte la population des IN par rapport à celle des CCN, on imagine aisément que si une partie des CCN peut être considérée comme active en tant qu'IN, il pourrait y avoir là matière à expliquer les différences observées [Fridlind et al., 2007] entre quantité de cristaux et IN apparents.

Le schéma microphysique élaboré au cours de cette thèse, considère à la fois l'activation des IN entièrement insolubles en cristaux de glace primaire (section 7.3) et l'activation des IN partiellement solubles (section 7.4).

Hypothèses de nucléation On distingue la congélation par immersion et par condensation, de la congélation par contact et par dépôt de vapeur, car les premiers sont des modes de nucléation impliquant un IN immergé dans une solution, quand les seconds interviennent, a priori, à partir d'un IN sec.

Comme nous l'avons expliqué précédemment, la formation d'un germe de glace au sein d'un volume d'eau surfondue, est facilitée par l'intervention d'un noyau glaçogène; l'introduction du substrat immergé permettant d'abaisser la quantité d'énergie nécessaire à la formation du germe de glace. Cela étant, la diminution de la barrière énergétique est plus ou moins efficace selon la *nature* de l'IN. Il apparaît donc crucial de considérer le rôle de la composition singulière de chaque IN dans le déclenchement du processus de congélation. La plupart des études Eidhammer et al. [2009]; Khvorostyanov and Curry [2004]; Marcolli et al. [2007]; Vali [1994, 2008] utilisent les *caractéristiques de surfaces* de l'IN comme les propriétés pertinentes pour initier la nucléation hétérogène.

Toutefois, la description du processus de congélation impliquant un IN immergé dans une phase liquide n'est pas unifiée. Deux types d'approches sont communément utilisées [Vali, 1994] :

★ Hypothèse stochastique

La première description souscrit à l'hypothèse *stochastique*, et considère un taux de congélation fonction du temps, et identique pour toutes les gouttes de même volume. Vali [2008] explique que ce taux de nucléation par unités de temps et de surface de substrat, a été formulé pour un IN de *surface uniforme*. Selon lui, il est possible de pallier l'insuffisance d'une telle approximation, et d'étendre cette formulation à une surface comportant des hétérogénéités cristallographiques (e.g. dislocations). Cela peut être réalisé en introduisant une loi de probabilité des *sites actifs* par unité de surface; on désigne par *sites actifs*, les aspérités de la surface

sur lesquelles la nucléation va se déclencher préférentiellement. Une des conclusions de l'étude de Marcolli et al. [2007] est qu'une particule de diamètre supérieur à $0.1\mu\text{m}$ possède au moins un site actif à sa surface. Et pour une nature d'IN donné, plus l'IN est gros plus on estime qu'il a de chance d'avoir des sites actifs efficaces à sa surface [Phillips et al., 2008]. L'élaboration d'une loi de distribution des sites actifs, qui soit transposable à différentes natures d'IN, demeure un problème. Connolly et al. [2009] ont dérivé expérimentalement des densités de sites actifs pour trois types de noyaux glaçogènes, tous majoritairement composés de "dust" mais issus de différentes zones géographiques (poussières sahariennes, asiatiques ou de l'Arizona); en guise de discussion, ils soulignent l'importante variabilité des caractéristiques de congélation, d'un échantillon à l'autre. Ils insistent aussi sur le fait que la surface des particules peut être altérée par des réactions chimiques au cours du transport, et qu'ainsi, les lois de répartition des sites actifs (en surface des IN) sont hautement variables d'un lieu géographique à un autre. Le dégagement d'une tendance de répartition de ces sites en surface des IN fait défaut pour la mise au point d'une paramétrisation générale applicable à tous les IN.

Du reste, cette approche nous paraît limitée par une seconde hypothèse plus ou moins implicite, selon laquelle la quantité de substrat contenue par une goutte est proportionnelle à sa taille [Vali, 2008]. En conséquence de quoi, le taux de congélation s'exprime comme le produit du taux de nucléation (i.e. une probabilité de nucléation par unité de temps) par le volume de la gouttelette considérée. Vali [1994] résume cette hypothèse comme l'expression d'un taux de nucléation *uniforme* pour toutes les gouttelettes de volume identique. Les observations ne semblant pas confirmer une telle hypothèse, une description alternative a donc été conceptualisée :

★ Hypothèse de singularité

La seconde description, qui s'appuie sur l'hypothèse *de singularité*, identifie les propriétés de surface de chaque IN comme le déclencheur de la nucléation. Cette hypothèse s'appuie sur l'idée qu'une loi de probabilité des sites actifs par unité de surface ne peut tenir compte de la véritable disparité de composition de ces sites, et donc de leur efficacité propre de nucléation. Il faudrait pour cela définir une loi de distribution des efficacités de nucléation des sites actifs en surface d'un IN. On considère, qu'en plus de ne pas être uniforme en raison des irrégularités, la surface d'un noyau glaçogène n'est pas homogène, car différents matériaux peuvent composer sa surface. L'idée est ici que chacun de ces sites a sa propre température caractéristique de congélation. Sur une surface donnée, le site actif ayant la tem-

pérature de congélation la plus chaude sera le premier à déclencher la nucléation *instantanée* d'un germe de glace, à l'intérieur du volume de la gouttelette surfondue; ainsi, expérimentalement, c'est la température de *ce site précurseur* qui sera enregistrée comme la température de congélation de la gouttelette. Cela revient à considérer un taux de nucléation *indépendant du temps* : la gouttelette gèle uniquement si la température s'abaisse en-dessous de la température caractéristique de congélation la plus chaude, de tous les sites actifs en surface de l'IN.

Plusieurs études récentes [Durant and Shaw, 2005; Marcolli et al., 2007; Moehler et al., 2006; Vali, 1994] semblent souscrire à cette hypothèse. Ainsi, certaines paramétrisations, comme celles de Diehl and Wurzler [2004]; Phillips et al. [2008], essaient d'intégrer l'idée que chaque IN puisse avoir une température de congélation singulière, fonction de ses propriétés de surface.

d - Propriétés de nucléation des IN

La congélation hétérogène de la glace, i.e. via l'intervention de noyaux glaçogènes, ne connaît pas de théorie équivalente à celle que Köhler a formulé pour l'activation des CCN.

L'activation des CCN fonctionne comme un phénomène volumique, tous les CCN en partie solubles peuvent être ramenés à des volumes de solutions aqueuses, ayant des propriétés de courbure et de solubilité diverses. Köhler est parvenu à rassembler l'ensemble de la sous-population d'aérosol que constituent les CCN, par des caractéristiques communes, exprimées par les termes de Kelvin et Raoult (cf section a -). Quant à l'établissement d'une théorie semblable pour les noyaux glaçogènes, le problème demeure encore entier.

Faire l'hypothèse de la singularité de chaque IN (cf section précédente) revient à considérer l'initiation de la glace comme une fonction des propriétés intrinsèques aux sites actifs qui se trouvent en surface de l'IN. La congélation est indépendante du temps et est instantanée pour la température de congélation de l'IN, qui, elle, correspond à la température la plus élevée, de formation d'un germe sur l'un des sites actifs en surface de l'IN. La formation de glace autour des IN semble intrinsèquement liée aux propriétés surfaciques des IN. **Or**, les IN ont des natures variées, et par conséquent, de très diverses propriétés de surface. Cela complique fortement l'établissement d'une théorie unificatrice de l'activation des IN; Vali [1994] estime que nos connaissances actuelles ne nous permettent pas de modéliser ces caractéristiques de surface. Il considère ainsi que le savoir nécessaire à la formulation

d'un taux de nucléation uniquement fonction des températures qui caractérisent la surface de l'IN (donc indépendant du temps), nous échappe encore. Dans cette optique, seules restent objectives les paramétrisations établies sur l'observation des comportements de plusieurs types d'IN, pour de larges domaines de variations des conditions atmosphériques. C'est en ce sens que nous avons choisi d'adapter la paramétrisation empirique de Phillips et al. [2008], qui synthétise les propriétés de nucléation de divers types d'IN, en contraignant les lois d'activation par des observations de campagnes expérimentales.

e - Paramétrisations de la nucléation hétérogène de la glace

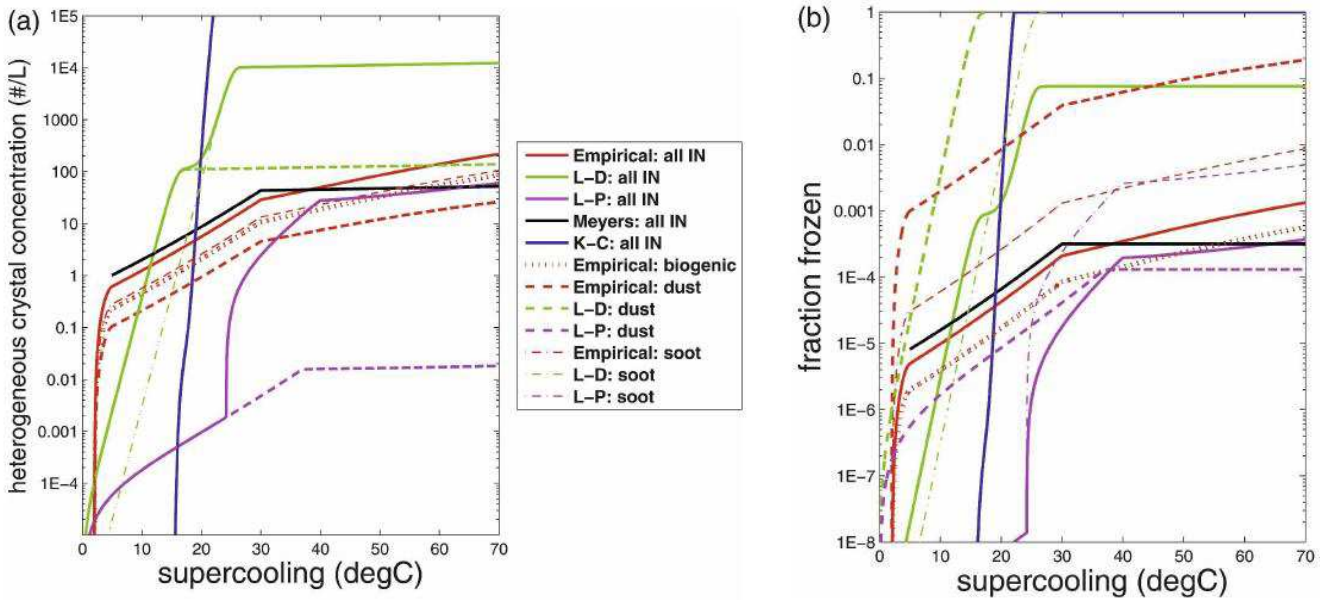


FIG. 2.9 – Résultats comparés de 5 paramétrisations pour la nucléation hétérogène de la glace en fonction du taux de refroidissement : a) Concentration en nombre de cristaux nucléés, b) Fraction d'IN activés (concentrations issues de a) par rapport à la population initiale d'IN interstitiels de chaque espèce ("soot", "dust", "biogenic"). La légende au centre contient les codes de couleurs des deux figures : le schéma noté "Empirical" correspond au schéma original de Phillips et al. [2008], celui noté "L-D" à la paramétrisation proposé par Lohmann and Diehl [2006], "L-P" dénote la paramétrisation de Liu and Penner [2005], "K-C" la formulation de Khvorostyanov and Curry [2004] et "Meyers" celle de Meyers et al. [1992]. Les traits pleins représentent un IN complet (la somme de ces composés), les différents pointillés représentent chacun la contribution d'une seule espèce ("dust", "soot" ou "biogenic"). Source : Phillips et al. [2008].

Dans leur étude Phillips et al. [2008] ont réalisé une intercomparaison de schémas de nucléation hétérogène de la glace, que nous reprenons en figures 2.9a) et

b). Cette comparaison exclut tous les processus de formation de cristaux de glace autre que la nucléation hétérogène, et ne tient pas compte de la congélation par contact. Il y figure :

★ **"Meyers"** La formulation classique de Meyers et al. [1992] : cette formulation de la nucléation hétérogène proposée par Meyers et al. [1992] reste assez rudimentaire, en ce sens qu'elle ne prend en compte *ni les concentrations* d'IN effectivement disponibles pour initier ce processus *ni les propriétés* de nucléation attachée à chaque type d'IN. Meyers et al. [1992] diagnostiquent une concentration en IN activés, i.e. en cristaux de glace nucléés, à partir des seules caractéristiques, en température et humidité relative, de l'atmosphère. De plus, comme le montre la figure 2.9, en-deçà de -30°C tous les cristaux sont nucléés, et ce, quelles que soient les caractéristiques effectives (concentrations, propriétés) des IN interstitiels. De la même façon, les paramétrisations de Cooper [1986]; Fletcher [1962] sont uniquement dépendantes de la température de l'atmosphère et ignorent la variabilité spatio-temporelle des IN. La figure 2.10, issue de DeMott et al. [2010] montre la grande variabilité de la concentration en IN activés à une température donnée, en compilant les mesures de plusieurs campagnes (cf supplément de l'article de DeMott et al. [2010]).

★ **"L-D"** Celle issue d'études expérimentales en laboratoire de Diehl and Wurzler [2004]; Hoose et al. [2008b]; Lohmann and Diehl [2006] : bien qu'elle affiche le souhait de considérer plusieurs espèces d'IN ("black carbon", "montmorillonite" et "kaolinite"), cette formulation de l'immersion présente un pallier assez abrupte de nucléation (cf figure 2.9) qui laisse penser que tous les IN congèlent à une même température-seuil. Or ce pallier illustre précisément le biais de cette paramétrisation : la formulation de Diehl and Wurzler [2004], reprise par Lohmann and Diehl [2006], considère le taux de congélation par immersion comme une fonction du volume de la gouttelette, dans laquelle l'IN est immergé, et non comme une fonction des propriétés (taille et concentration en matériaux insolubles) de l'IN. Lors des expériences, plusieurs IN de types différents se sont trouvés prisonniers dans une même gouttelette, de sorte que seule la signature des plus grosses particules de l'espèce ayant la température de congélation la plus basse a pu être enregistrée (puisque c'est elle qui a déclenché la congélation la première).

★ **"K-C"** La formulation thermodynamique théorique de Khvorostyanov and Curry [2004] : Khvorostyanov and Curry [2004, 2009] essaient de formuler une

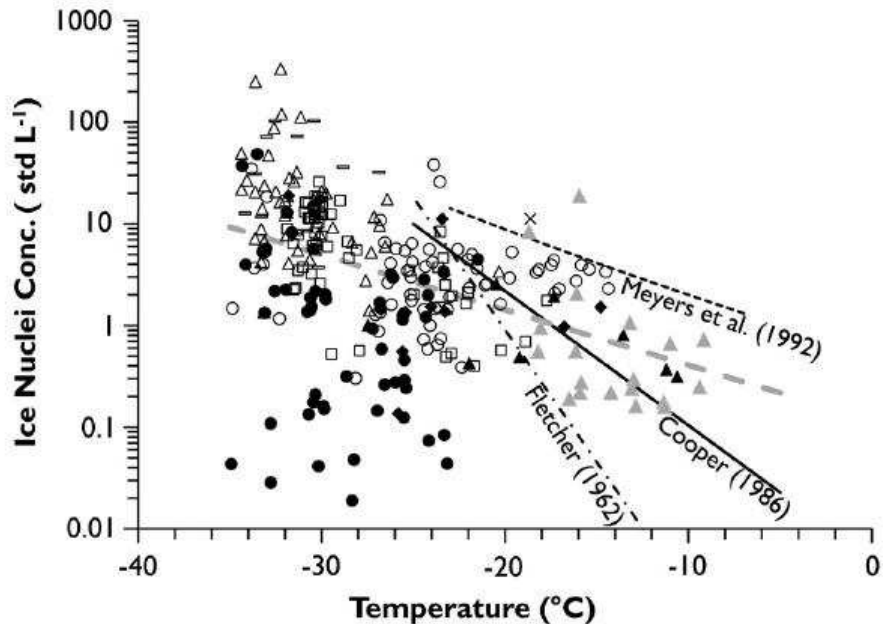


FIG. 2.10 – Concentration en nombre d’IN activés à, ou au-dessus de, la saturation par rapport à l’eau, en fonction de la température. Ces mesures ont été effectuées lors de différentes campagnes : WISP-94 (triangles gris), Alliance Icing Research Study-2 (croix), AMAZE-08 (carrés), Cloud Layer Experiment-10/Canadian Cloudsat/Calipso Validation Project (cercles vides), Ice in Clouds Experiment-Layer Clouds (cercles pleins), Ice Nuclei SPECTroscopy-1 (tirets), Ice Nuclei SPECTroscopy-2 (losanges), Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment (triangles noirs) et Pacific Dust Experiment (triangles vides). La ligne en pointillés gris correspond à un fit de toutes les données [$0.117 \exp(-0.125 * (T - 273.2))$] ayant un coefficient de corrélation $r^2 = 0.2$. Source : DeMott et al. [2010].

théorie pour l’activation des IN, basée sur la théorie classique de la nucléation. Les propriétés de nucléation des IN sont représentées par des sites actifs en surface de l’IN, d’angles de contact et de surfaces variables ; plus l’angle de contact est faible, plus chaude sera la température pour laquelle le site actif sera apte à déclencher la congélation. Une bonne utilisation de cette paramétrisation nécessite alors de définir des distributions d’angles de contact en surface des IN, afin de rendre compte des disparités de d’efficacité d’activation au sein d’une population d’IN. Cela demeure un problème qu’Eidhammer et al. [2009] résument en ces termes : “*It is uncertain what this distribution might be in reality.*”. Pour résumer, la principale limitation au travail de Khvorostyanov and Curry [2004, 2009] est la quantité de variables thermodynamiques à renseigner : l’implantation d’une telle paramétrisation dans un modèle nécessite de connaître des variables qui caractérisent très finement la particule d’aérosol et qu’aucune observation actuelle ne

renseigne, comme les tensions de surface entre la partie liquide de l'IN et sa partie insoluble ou la distribution des angles de contact en surface des IN.

Dans leur intercomparaison de ces mêmes schémas, Eidhammer et al. [2009] notent que les paramétrisations "L-D" et "K-C" surestiment les concentrations en cristaux formés par plusieurs ordres de magnitude par rapport aux mesures. Ils concluent que ces écarts sont dus au fait que ces paramétrisations ne sont pas contraintes par des mesures expérimentales.

★ **"L-P"** Celle que Liu and Penner [2005] ont développé pour l'étude des cirrus dans les modèles globaux : ils traitent l'immersion des particules de suies (l'équivalent des IN enrobés par une fraction soluble) par la théorie classique de Pruppacher and Klett [1997], et la congélation par dépôt de vapeur pour des "dust" secs en surface par Meyers et al. [1992].

★ **"Empirical"** La paramétrisation empirique de Phillips et al. [2008], qui est l'objet de l'article à l'origine de l'intercomparaison, est celle adaptée dans cette thèse. Elle est décrite de façon approfondie au chapitre 7. Cette formulation a été établie sur des mesures de campagnes, qui ont ensuite été contraintes et étendues par des études en laboratoire. Elle considère que 3 groupes d'espèce peuvent composer un noyau glaçogène : le "black carbon", les "dust" et les composés organiques. Dans cette paramétrisation sont définies des caractéristiques différentes pour chacun de ces groupes d'espèces, qui sont ensuite intégrées aux propriétés de surface de l'IN ; ces propriétés de nucléation sont pondérées par la fraction de chacun des composants dans l'IN entier. Cette formulation de la nucléation hétérogène s'appuie sur la relation observée entre la surface totale d'une distribution de particules de tailles supérieures à $0.1\mu\text{m}$, et la quantité d'IN effectifs dans un même échantillon [Eidhammer et al., 2009]. La concentration en cristaux formée par nucléation hétérogène est limitée par la concentration en IN interstitiels, i.e. effectivement disponibles dans l'atmosphère. Les propriétés des IN sont vues ici comme les propriétés pertinentes de déclenchement de la nucléation de cristaux. Cette approche considère en fait la sensibilité des différentes propriétés de nucléation des IN aux conditions atmosphériques.

2.3 ...et l'aérosol s'en trouve modifié

Si les aérosols permettent de former les nuages à travers l'initiation des hydrométéores, ils peuvent être modifiés en retour par leur passage au sein de la structure nuageuse. Au sein d'un nuage non-précipitant, plusieurs processus peuvent modifier les caractéristiques physico-chimiques de la distribution des aérosols, comme les réactions chimiques en phase aqueuse, les collisions entre aérosols interstitiels et hydrométéores, et la coalescence entre les hydrométéores [Seinfeld and Pandis, 1998]. Ces modifications des aérosols par le nuage sont regroupées sous l'expression "*aerosol processing by clouds*". Si, de surcroît, le nuage précipite, les aérosols incorporés dans les hydrométéores, pourront être déplétés de l'atmosphère, c'est le mécanisme du *dépôt humide*.

2.3.1 Dépôt humide

Le principal puits d'aérosols dans l'atmosphère est le *dépôt humide*. Le dépôt humide est l'élimination des polluants atmosphériques par les précipitations. Ce mécanisme fait intervenir le lessivage des gaz solubles et des particules d'aérosol dans la phase condensée des nuages précipitants. Le lessivage des particules d'aérosol intervient à travers la nucléation des gouttelettes d'eau nuageuse et des cristaux de glace primaire (lessivage *par nucléation*), et à travers la collision avec un hydrométéore (lessivage *par impaction*). Le terme de *lessivage* est employé dès lors qu'une particule d'aérosol est incorporée dans une particule de nuage. Deux types de lessivage sont distingués selon leur localisation par rapport au nuage. Le terme *washout* regroupe les processus de lessivage ayant lieu à *l'intérieur* du nuage : lessivage par nucléation (activation des aérosols-noyaux) ou par impaction (par les gouttelettes, les gouttes, la glace primaire...). Par opposition, le terme *rainout* évoque le lessivage des aérosols par les hydrométéores précipitants (pluie, neige, grêle, grésil), qui a lieu *sous* le nuage. Des mesures de dépôt humide sont obtenues au sol, à partir d'instruments qui collectent les précipitations, et donc les espèces incluses dans les hydrométéores. Des analyses chimiques sont ensuite effectuées pour caractériser ces espèces, et, au regard d'analyses antérieures et de résultats de modélisations qui permettent d'estimer la composition moyenne de l'aérosol ambiant, on peut évaluer les concentrations en aérosols lessivées par dépôt humide pour un évènement précipitant moyen.

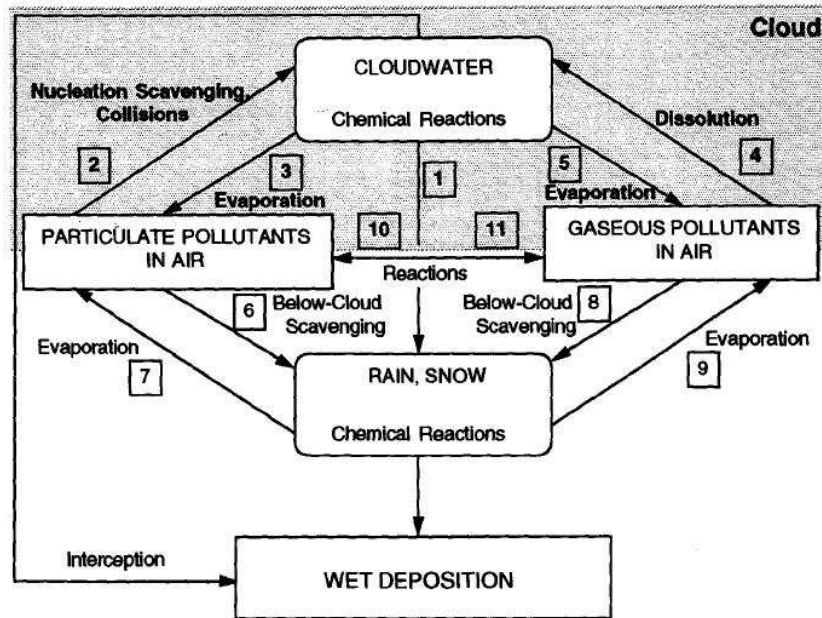


FIG. 2.11 – Schéma de synthèse des principaux processus de dépôt humide. Source : Seinfeld and Pandis [1998].

Comme le montre la figure 2.11, une des caractéristiques des processus englobés par le dépôt humide est qu'il implique des interactions entre de nombreuses phases : particules d'aérosol, eau (eau nuageuse et pluie), glace (glace primaire, neige...) et gaz, qui interviennent selon des processus de différentes résolutions spatiales (cf Fig. 2.12).

2.3.2 "Aerosol processing by clouds"

Les processus à l'origine des évolutions physico-chimiques des aérosols au cours de leur passage dans le nuage ont été regroupés par Flossmann [1998]; Feingold and Kreidenweis [2000] sous l'expression "cloud processing" (ou "aerosol processing" par Hoose et al. [2008a]). Ce processus correspond aux modifications physico-chimiques des aérosols suite à l'évaporation des hydrométéores qui les hébergent.

Deux types de transformations de l'aérosol peuvent intervenir : physiques ou chimiques. Au cours d'un cycle nuageux, la masse d'aérosol contenue par une gouttelette est susceptible d'augmenter après évaporation, si la gouttelette qui l'héberge collecte des aérosols interstitiels ou si elle est sujette à des processus de collision/coalescence.

2.3 ...et l'aérosol s'en trouve modifié

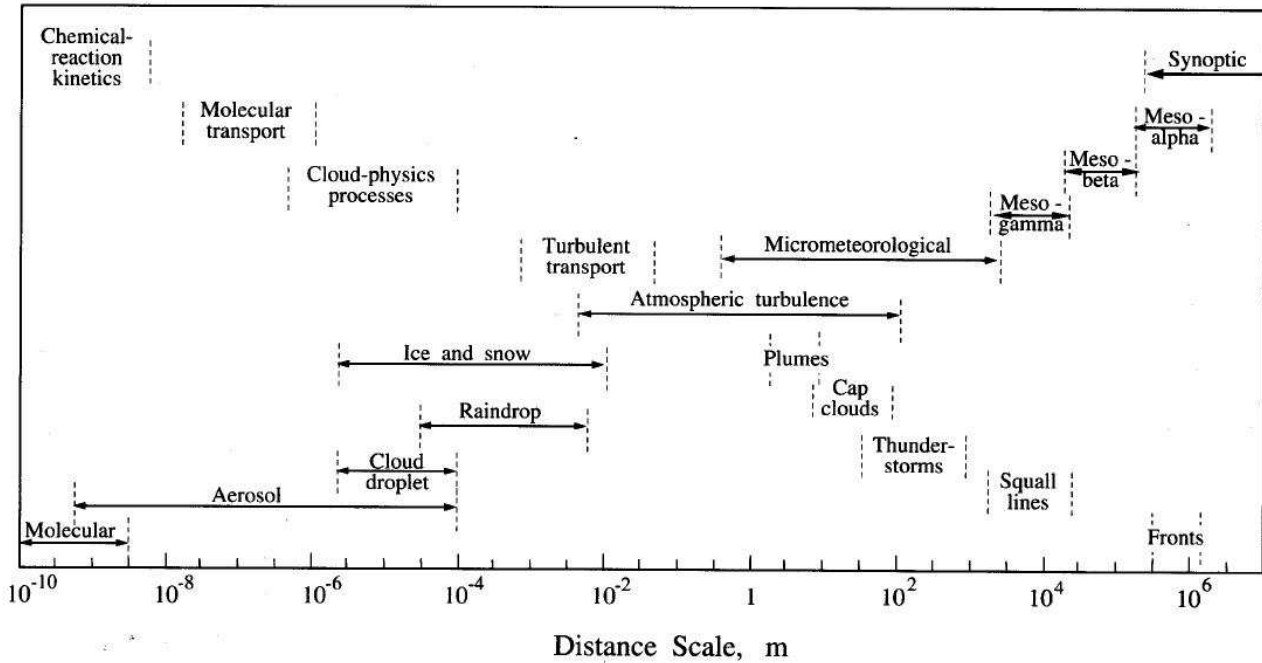


FIG. 2.12 – Echelle spatiale d'intervention des processus de dépôt humide. Source : Seinfeld and Pandis [1998].

La masse d'aérosol après évaporation va aussi augmenter suite aux réactions chimiques en phase aqueuse qui font intervenir les gaz solubles lessivés dans la goutte et les composés solubles issus de la phase particulaire. La goutte est donc aussi le siège de nombreuses réactions chimiques qui vont modifier la composition de l'aérosol après évaporation. Quand l'hydrométéore s'évapore, les gaz les plus volatils s'évaporent avec, et l'aérosol restant sera souvent caractérisé par une forte hygroscopicité. En effet, la réactivité chimique en phase aqueuse conduit à la formation de composés plus oxydés et moins volatils, par exemple la conversion du dioxyde de soufre en sulfate ou la formation d'acide dicarboxylique à partir de l'oxydation des composés organiques.

Ainsi, lorsque les hydrométéores s'évaporent, ils restituent une particule d'aérosol de composition et de taille différente de celles de la particule d'origine. L'"aerosol processing" au sein du nuage, modifie donc la distribution dimensionnelle des particules d'aérosol et leurs propriétés physico-chimiques (composition chimique, tension de surface, ect.).

2.4 Modélisation de l'interaction aérosol-nuage

L'étude des interactions aérosol-nuage par simulations numériques est principalement opérée à deux échelles : à l'échelle du globe ou à mésoéchelle. Un troisième type de modèle résout, en plus des interactions directes entre aérosols et nuages, très finement les processus liés aux particules d'aérosol hors du nuage, i.e. la microphysique des aérosols et leur évolution chimique. Dans cette section, on souhaite faire un inventaire rapide des méthodes employées pour la description des processus de nucléation des gouttelettes et des cristaux de glace, aux différentes échelles de résolution.

2.4.1 Quelle résolution spatiale ?

a - Echelle globale

Ce sont principalement les modèles de circulation générale ("General Circulation Model") qui sont utilisés afin d'estimer les effets radiatifs des aérosols sur le climat. D'un point de vue microphysique des nuages, ce type de modèles, à très large échelle spatiale, est limité par une résolution insuffisante pour la description des processus de condensation sous-maille, processus clef de formation et de développement d'une structure nuageuse. Ces modèles sont contraints d'utiliser des paramétrisations de la vitesse verticale, qui est une variable déterminante des processus d'activation des CCN/IN en gouttelettes/cristaux de glace. A l'échelle d'une maille de ce type de modèle l'estimation d'une variable si locale que la vitesse verticale limite la description des processus d'activation. Cela étant, la plupart de ces modèles ont développé des schémas d'activation d'aérosol. Dans cette rubrique, on présente le schéma d'activation d'aérosol le plus récent implanté dans deux d'entre eux.

LMDZ Dans ce modèle, la quantité de gouttelettes nucléées est déterminée via le spectre d'activation de Twomey [1959] (cf 2.2.1 b - et 6.1) :

$$\left. \frac{dN_c}{dt} \right|_{activation} = C^{2/(2+k)} \left(\frac{1.63 \cdot 10^{-3} w^{1.5}}{kB(\frac{3}{2}, \frac{k}{2})} \right)^{\frac{k}{k+2}}$$

où k est la constante de Twomey [1959], B la fonction Bêta et C la concentration en aérosols à 1% de sursaturation. Comme la valeur de la vitesse verticale moyennée

sur une maille est toujours très faible (car la maille est très grande), dans ce modèle une paramétrisation de w , purement technique [Quaas, 2003], est utilisée, dont les valeurs peuvent difficilement être validées.

Au cours de sa thèse, Quaas [2003] a développé un schéma microphysique dans le modèle LMDZ qui considère les processus d'activation des CCN en gouttelettes d'eau nuageuse et la formation de cristaux de glace, soit par nucléation homogène soit en reprenant la formulation de Meyers et al. [1992] pour exprimer la nucléation hétérogène par dépôt de vapeur sur un IN.

ECHAM5-HAM Un module d'aérosol (HAM) peut être ajouté au modèle global ECHAM5, pour tenter d'appréhender les interactions entre aérosols et systèmes nuageux à l'échelle du globe.

Un traitement pronostique des concentrations en nombre de gouttelettes et de cristaux de glace primaire existe dans ECHAM5-HAM. Le module de microphysique est décrit par Hoose et al. [2008c]. Ce module tient compte d'une superposition de sept modes d'aérosols, distribués selon des lois lognormales : le mode de nucléation est entièrement soluble, trois modes le sont partiellement et trois sont insolubles (mode d'aitken, d'accumulation et grossier, à chaque fois). Le taux de CCN activés en gouttelettes suit la paramétrisation empirique de Lin and Leitch [1997] :

$$\frac{0.1 \cdot 10^6 m^{-3}}{\Delta t} \left(\frac{w (N_{>35nm} - N_c^{t-\Delta t}) 10^6 m^{-3}}{w + a(N_{>35nm} - N_c^{t-\Delta t})} \right)^{1.27}$$

où le coefficient $a = 2.310^{-10} \text{ m}^4 \text{ s}^{-1}$, w la vitesse verticale, $N_{>35nm}$ la concentration en CCN interstitielles de rayon humide supérieur à 35 nm et $N_c^{t-\Delta t}$ la concentration en gouttelettes activées au temps précédent. Croft et al. [2009] présente un nouveau module de lessivage des aérosols par impaction avec les gouttes ou la neige, basé sur des "look-up tables", i.e. qui compulse des valeurs préenregistrées de coefficients de collection, pour des tailles de particules données. Hoose et al. [2008a] a ajouté un module de microphysique des aérosols, qui modélise la restitution des aérosols suite à l'évaporation de gouttelettes qui ont lessivé des gaz (e.g. les aérosols sulfatés).

Dans ce modèle, les modes de nucléation hétérogène de la glace par contact et par immersion sont paramétrés séparément. La congélation par contact est basée sur la paramétrisation de Young [1974a]; Cotton et al. [1986], et ne prend en compte que les collisions provoquées par le mouvement brownien des particules ;

la formulation du contact adaptée dans ce modèle dépend de la concentration en particules d'aérosol, mais suppose que toutes ces particules ont une température de congélation identique... Cette formulation est identique à celle proposée par Lohmann and Diehl [2006], sauf qu'elle ne prescrit pas une masse constante pour le cristal nouvellement formé, mais qu'elle évalue sa masse égale à celle de la gouttelette qui l'a initié. Ce modèle tient également compte de la congélation des IN par immersion adaptée à partir de la paramétrisation de Diehl and Wurzler [2004] (cf 2.2.2 e -).

b - Méso-échelle

Weather Research and Forecast Plusieurs modules de microphysique sont disponibles dans ce modèle de méso-échelle. Le module "bulk" de Thompson et al. [2004] ne considère que l'initiation hétérogène de cristaux par dépôt de vapeur et condensation, et, pour ce faire, utilise la paramétrisation de Cooper [1986]; à l'image de la paramétrisation de Meyers et al. [1992], elle a été établie à partir d'observations et ne dépend que des conditions thermodynamiques de l'atmosphère. Elle est indépendante des concentrations d'IN disponibles dans l'atmosphère, ainsi que de leurs propriétés.

Dernièrement, Khain and Lynn [2009] ont inséré un module de microphysique explicite (i.e. "bin") dans WRF. Le spectre d'activation est paramétré selon une loi puissance [Twomey, 1959]. En s'appuyant sur la distribution des aérosols non actifs, qui, dans ce module, est une variable pronostique, ils peuvent déterminer la quantité de CCN activés : la sursaturation, calculée à chaque pas de temps, leur permet de déterminer le rayon critique sur la base de la théorie de Köhler (cf a -); les CCN de tailles supérieures à ce rayon sont activés. L'initiation hétérogène de la glace demeure toutefois assez rudimentaire, elle suit Meyers et al. [1992].

Regional Atmospheric Modeling System Saleeby and Cotton [2004] ont implanté la résolution explicite de la nucléation des gouttelettes à partir des CCN dans RAMS; avant cela, les CCN étaient utilisés comme une variable d'entrée qui servait à définir le nombre de gouttelettes sans que la nucléation et la croissance par dépôt de vapeur soit explicitement traitées. Saleeby and Cotton [2004] calculent une sursaturation critique à partir de la théorie de Köhler. Puis, à partir de valeurs préenregistrées (dans une "look-up table"), ils déterminent le pourcentage de CCN

activés, en fonction de la température, la vitesse verticale, la concentration et le rayon médian de la distribution de CCN.

Walko et al. [1995] présentent le schéma de microphysique froide inclus dans RAMS ; l'approche choisie ici est aussi celle de Meyers et al. [1992].

c - Très haute résolution

Les modèles ayant un module de microphysique "classes par classes", sont construits pour traiter explicitement les interactions aérosol-nuages en résolvant plus finement les processus microphysiques, tant nuageux que les évolutions physico-chimiques des aérosols. Dans ces modèles on observe une continuité des distributions de particules (par exemple pour la phase chaude : aérosols, gouttelettes puis gouttes), puisqu'elles sont rangées par classes de diamètres, à la suite les unes des autres. Ce type de modèle est plus coûteux numériquement, car une ou plusieurs variables pronostiques (concentration en nombre, rapport de mélange, réflectivité radar) sont associées à chaque classe de diamètre. Cela leur permet notamment de traiter avec moins d'approximation que les modèles à microphysique "bulk", les processus de collection/coalescence entre les hydrométéores, puisqu'aucune hypothèse n'est faite quant à la forme des distributions et qu'il n'est pas utile d'avoir recours à des paramétrisations. Aucune hypothèse n'est non plus faite sur la distribution des aérosols et les processus de croissance de ces particules peuvent être résolus.

Toutefois, pour l'instant, ces modèles ne font pas non plus le lien entre aérosols et hydrométéores primaires dans la partie froide du nuage. Dans **DESCAM-3D**, la paramétrisation de Meyers et al. [1992] est utilisée afin de modéliser la congélation hétérogène par dépôt de vapeur et condensation [Leroy et al., 2009]. Dans **MM5**, la congélation par contact est paramétrée par l'approche de Meyers et al. [1992] et l'immersion par l'approche stochastique de Bigg [1953].

2.4.2 Représentation modale des aérosols

Ainsi, il existe deux façons de représenter les aérosols dans les modèles : la première est dite *modale* et décrit la population des particules d'aérosols par des lois de distributions, la seconde approche est dite *classe par classe*, elle consiste à répartir les particules suivant des sections de tailles adjacentes.

L'approche *classe par classe* décrit plus fidèlement la population d'aérosols, car aucune hypothèse n'est faite sur la forme de sa distribution. Ce type de modèle permet une approche plus détaillée de tous les processus dans lesquels interviennent les aérosols. Cela étant, ce haut niveau de description s'avère assez coûteux en temps de calcul. Un tel niveau de détails est utile si l'on s'attache à la compréhension des processus de formation et de transformation des aérosols, c'est à dire à la modélisation de la microphysique de l'aérosol, des processus chimiques et des équilibres thermodynamiques en phases gazeuse et particulaire qui régissent l'évolution des aérosols hors du nuage (nucléation des particules secondaires à partir des composés gazeux de l'atmosphère, ainsi que tous les processus de croissance et de modification des particules pré-existantes).

Par contre, si l'on souhaite déterminer l'effet sur une structure nuageuse, de l'intervention de plusieurs sortes d'aérosols -déjà formés- investis de différentes capacités nucléantes, alors une description fine de la (trans)formation physico-chimique de ces particules d'aérosols n'est pas nécessaire. En effet, en raison de la, relativement, courte durée des événements précipitants simulés, il n'est pas utile de décrire l'évolution physico-chimique des particules d'aérosols (cf chapitre 4). C'est pourquoi, par la suite, le schéma d'aérosols que j'ai développé ne prend pas en compte l'évolution des aérosols par la microphysique des aérosols et la réactivité chimique. En effet, mon étude est spécialement focalisée sur l'intervention des aérosols dans la microphysique nuageuse : ils sont envisagés ici comme les *supports particulaires* qui initient la nucléation. Le niveau de description fourni par une approche *modale* de la population d'aérosol suffit alors, devant la faible quantité d'éléments actuellement à notre disposition permettant de relier les propriétés physico-chimiques des aérosols à l'initiation des hydrométéores primaires.

Le schéma d'aérosols que j'ai développé dans MésoNH est un schéma *modal* à 1-moment. Ce schéma intègre le moment d'ordre 0 de la distribution des aérosols, leurs concentrations en nombre. L'information sur le *nombre* de particules nous importe plus que celle sur la masse, car les propriétés de nucléation d'une particule d'aérosol individuelle sont intrinsèquement liées à sa taille [IAPSAG, 2007] : que la nucléation soit assimilable à un mécanisme "volumique" (comme c'est le cas pour les CCN où ce sont les propriétés du volume d'aérosol humide qui déclenchent la nucléation de gouttelettes d'eau), ou qu'elle soit assimilable à un mécanisme "surfaique" (comme c'est le cas pour les IN, où ce sont les propriétés de surface de l'IN qui déterminent sa capacité nucléante), on observe une forte dépendance des propriétés nucléantes avec la taille (cf 2.2.2 d -). Les hypothèses faites quant aux

2.4 Modélisation de l'interaction aérosol-nuage

formes des lois de distribution qui décrivent les différents modes de la population d'aérosol dans ce modèle, sont décrites dans la section 4.2.

Physique du nuage et développements

Pourquoi MIMA ?

Comme nous l'avons expliqué dans l'introduction générale, l'objectif de ce travail de thèse est d'élaborer un outil numérique sensible aux propriétés de nucléation propres à chaque particule d'aérosol. On souhaite pouvoir évaluer l'impact de ces propriétés de nucléation variables sur la formation, le développement et les propriétés d'une structure nuageuse. L'objet de cette étude est centré autour des propriétés nuageuses. On s'intéresse aux particules d'aérosols parce qu'ils sont déterminants dans l'initiation du nuage. Mais l'évolution physico-chimique des aérosols ne nous préoccupe pas : l'accent est mis ici sur l'amélioration de la résolution des structures nuageuses.

Un schéma microphysique pour les nuages en phase mixte a été élaboré en ce sens : nous l'avons intitulé MIMA, pour "MIxte Multimodal Aerosol". C'est un schéma qui prédit 2 moments pour les hydrométéores, les rapports de mélange et les concentrations. Techniquement, ce schéma pour les nuages en phase mixte, est structuré comme la somme d'un schéma contenant la microphysique des hydrométéores liquides (gouttelettes et gouttes), et d'un second schéma relatif à la microphysique des hydrométéores glacés (glace primaire, neige, grésil et grêle). La partie de ce schéma relative à la phase chaude des nuages mixtes, ou aux nuages chauds, est repérée par l'acronyme WAMA, pour "WArm Multimodal Aerosol". Celle qui régit la partie froide a été conçue pour résoudre des nuages mixtes, et non des nuages entièrement glacés, ainsi, dans la suite de ce travail, on se référera au schéma WAMA si l'attention est portée sur les processus microphysiques de la phase chaude, et à MIMA, sinon.

Le lien entre aérosols et nuage est ici fait à travers la nucléation hétérogène, des hydrométéores primaires, à partir des noyaux particuliers. L'innovation consiste à associer des champs d'aérosols *tridimensionnels, non-homogènes*, comportant *plusieurs modes* (ce qui est traduit par différentes capacités de nucléation), à des variables pronostiques. De plus, dans MIMA, les formulations des processus de nucléation hétérogène des hydrométéores primaires, dépendent des propriétés de nucléation des noyaux (CCN/IN) qui les ont initiés. Ces développements seront détaillées aux chapitres 6 et 7. L'effet du nuage sur les champs d'aérosols est aussi appréhendé dans ce schéma : s'il précipite, le nuage perturbe les champs d'aérosol en les lessivant par collision avec des gouttes en chute libre. Ainsi, le lessivage par impaction des gouttes de pluie avec les aérosols interstitiels doit être simulé, car il

modifie les champs de CCN et d'IN disponibles pour la formation des gouttelettes et des cristaux ; c'est l'objet du chapitre 5.

Au préalable, avant de détailler ces développements, un premier chapitre (chapitre 3) est consacré à l'outil numérique qui les héberge : le modèle de méso-échelle MésoNH. Une attention spéciale est accordée à la microphysique nuageuse puisque c'est là le sujet qui nous occupe. On introduira dans ce chapitre l'originalité de MIMA par rapport aux schémas existants. Ces points originaux, qui résident dans la manière de traiter l'intervention des aérosols dans la microphysique nuageuse, seront ensuite plus amplement développés dans le chapitre 4.

Chapitre 3

Microphysique nuageuse dans MésoNH

Sommaire

3.1 Généralités sur le modèle	52
3.2 Les particules de nuage	54
3.2.1 Classes d'hydrométéores	54
3.2.2 Représentation des hydrométéores	54
3.2.3 Expression des moments pour une loi gamma généralisée	55
3.3 Processus microphysiques	56
3.4 Schémas microphysiques préexistants	58

Les interactions entre les aérosols et la structure nuageuse interviennent à l'échelle du nuage ; il est donc nécessaire d'étudier ces interactions via des modèles de méso-échelle comme MésoNH, afin de pouvoir, dans un second temps, mettre en place des paramétrisations cohérentes et efficaces pour les modèles climatiques, d'échelle globale. Dans ce chapitre, une description générale du modèle MésoNH est d'abord présentée. La représentation des particules de nuages, les espèces prises en compte et les lois de distribution qui les décrivent dans ce modèle, est ensuite abordée. Après quoi, les processus intervenant dans les schémas microphysiques (MIMA y compris), autres que la nucléation hétérogène sont répertoriés. On introduit ensuite les aspects novateurs du schéma MIMA.

3.1 Généralités sur le modèle

Echelle d'utilisation

MésoNH est un modèle de méso-échelle, avec une résolution spatiale allant de l'échelle sous-synoptique (plusieurs dizaines de kilomètres) à une grille méso- γ (quelques dizaines de mètres), généralement utilisée pour les "Large Eddy Simulations".

Documentation

Ce modèle est développé conjointement par le Centre National de la Recherche Météorologique et par le Laboratoire d'Aérodynamique, à Toulouse. Une description de MésoNH peut être trouvée dans l'article de Lafore et al. [1998], ainsi que sur le site web dédié au modèle : <http://www.aero.obs-mip.fr/mesonh>.

Type d'applications

MésoNH est un modèle tridimensionnel de simulation des systèmes nuageux, réels (intégration des analyses du Centre Européen (ECMWF), d'ARPEGE, d'ALADIN...) ou idéalisés (i.e. des cas académiques pour étudier plus spécifiquement un aspect du modèle en simplifiant l'analyse des interactions entre les différents schémas), en 1D, 2D ou 3D.

Bases physiques

Quant à la physique incluse dans ce modèle, plusieurs niveaux de complexité sont à disposition, en fonction des choix de l'utilisateur. Néanmoins MésoNH comprend quelques caractéristiques non modulables, qui sont les suivantes :

- il est *Non-Hydrostatique* (...d'où le nom, MésoNH), c'est à dire que l'on résout l'équation complète du mouvement vertical, et donc que la vitesse verticale est une variable pronostique.
- la dynamique est *anélastique* ; cela revient à décomposer la masse volumique entre un état de référence constant et une perturbation indépendante du temps. Cette approximation nous permet de négliger l'évolution locale de la masse volumique ainsi que les effets dus aux déplacements horizontaux devant ceux liés aux déplacements verticaux, et donc d'estimer la pression P .
- le schéma temporel est un schéma dit *explicite*, i.e. pour estimer la variable pronostique au temps $t + \Delta t$, on utilise une fonction de cette variable à des temps plus anciens, t et $t - \Delta t$.
- Les variables scalaires sont transportées par un schéma *PPM* ("Piecewise Parabolic Method"), et la quantité de mouvement est transportée par un schéma centré du 4^o ordre.

Modules additionnels

Plusieurs modules peuvent être ajoutés à la structure de base du modèle :

- un module de surface, appelé *SURFEX*, qui simule différents types de sols, de végétation, de villes ou de lacs, et permet de calculer les apports de la surface en termes de flux de chaleur latente et sensible, d'émissions de composés chimiques...
- des paramétrisations pour la convection profonde (qui ne peut être résolue explicitement au-delà de 5 km) et la convection peu-profonde,
- une paramétrisation de la turbulence humide,
- les schémas microphysiques qui seront détaillés à la section 3.4,
- le code de transfert radiatif du Centre Européen,
- ...

Performances numériques

Le code de MésoNH est vectorisé et parallélisé, ce qui en fait un outil rapide, d'une grande puissance, et facilement portable.

3.2 Les particules de nuage

3.2.1 Classes d'hydrométéores

Comme nous le verrons à la section 3.4, plusieurs schémas microphysiques sont disponibles dans MésoNH, à 1 ou 2 moments, pour les phases chaude et froide uniquement ou pour le nuage en phase mixte. Quel que soit le schéma utilisé pour modéliser la phase chaude du nuage, la vapeur, l'eau nuageuse et la pluie sont considérées (cf cadre en pointillés, en bas à gauche de la Fig. 3.1). Par contre, le nombre d'hydrométéores glacés considérés varie en fonction du schéma microphysique choisi pour la phase froide/le nuage mixte. Pour cette phase froide/ce nuage mixte, le nombre maximal d'hydrométéores glacés est de quatre, et comprend la glace primaire, la neige, le grésil et la grêle (cette dernière est celle qui n'apparaît pas dans tous les schémas). La figure 3.1 illustre les cycles de vie de ces classes d'hydrométéores à l'intérieur d'un système nuageux en phase mixte.

3.2.2 Représentation des hydrométéores

MésoNH est doté de schémas microphysiques "bulk", dans lequel les hydrométéores suivent des lois de distributions en taille, fixées à l'avance. A contrario, les modèles dont la microphysique est représentée selon des classes de diamètres, sont appelés des modèles "classes par classes". Quelque soit le schéma microphysique utilisé dans MésoNH, l'expression des moments caractérisant ces différents hydrométéores est invariante. Les six classes d'hydrométéores (eau nuageuse, pluie, glace primaire, neige, grésil et grêle) sont modélisées par des lois de distribution de forme gamma généralisée :

$$n(D)dD = N_h g(D)dD = N_h \frac{\alpha_h}{\Gamma(\nu_h)} \lambda_h^{\alpha_h \nu_h} D^{\alpha_h \nu_h - 1} e^{-(\lambda_h D)^{\alpha_h}} dD$$

où $g(D)$ est la loi de distribution normalisée dépendant des paramètres α_h , ν_h et λ_h , relatifs à la classe h d'hydrométéores considérée. N_h est la concentration en nombre

3.2 Les particules de nuage

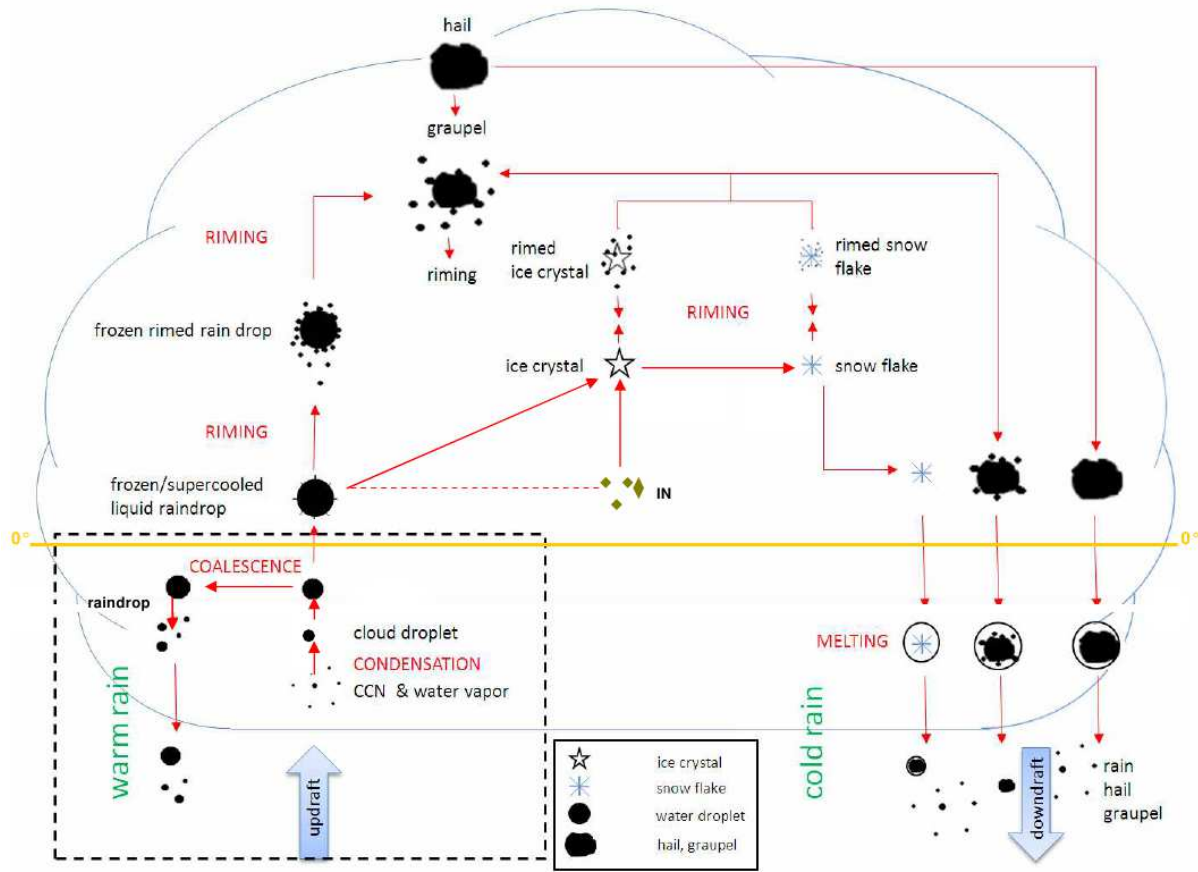


FIG. 3.1 – Cycle des différentes classes d’hydrométéores présentes dans le modèle MesoNH. Source : adapté de W. Langhans, *Ecole d’été COPS 2007*.

totale de l’hydrométéore h , variable pronostique pour l’eau nuageuse, la pluie et la glace primaire, et diagnostique pour les autres hydrométéores glacés.

3.2.3 Expression des moments pour une loi gamma généralisée

Le moment d’ordre p pour des hydrométéores distribués selon une loi gamma généralisée, se calcule comme

$$\begin{aligned} \mathcal{M}_p &= \int_0^\infty D^p g(D) dD = \int_0^\infty D^p \frac{\alpha_h}{\Gamma(\nu_h)} \lambda_h^{\alpha_h \nu_h} D^{\alpha_h \nu_h - 1} e^{-(\lambda_h D)^{\alpha_h}} dD \\ &= \frac{1}{\lambda_h} \frac{\Gamma(\nu_h + \frac{p}{\alpha_h})}{\Gamma(\nu_h)} \end{aligned}$$

où N_h $M_0 = \int_0^\infty n(D)dD = N_h$ est la concentration de la classe d'hydrométéore, M_1 donne le diamètre moyen de la distribution, et $\frac{4}{3}\pi N_h M_3 = \int_0^\infty m(D)n(D)dD = \rho_{air}q_h$ permet de calculer le rapport de mélange de l'hydrométéore considéré.

3.3 Processus microphysiques

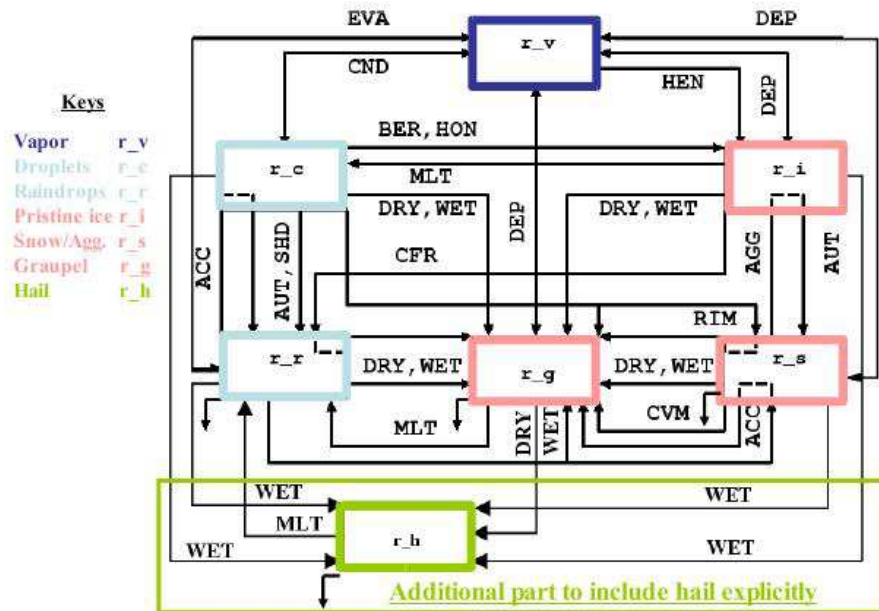


FIG. 3.2 – Processus microphysiques pour un nuage en phase mixte, dans le modèle MésoNH. Avec r_v , le rapport de mélange de la vapeur, r_c celui de l'eau nuageuse, r_r de la pluie, r_i de la glace primaire, r_s de la neige, r_g du grésil et r_h de la grêle.

La figure 3.2 reprend les processus d'initiation, de croissance et de transformation des particules de nuage illustrés par la figure 3.1, en détaillant les processus microphysiques associés. Certains types d'hydrométéore peuvent être initiés et croître via plusieurs processus microphysiques.

Phase chaude

Les gouttelettes d'eau nuageuse sont formées suite à l'activation des noyaux de condensation. Elles croissent par condensation (*CND*), et sont converties en gouttes de pluie par des processus de coalescence comme l'accrétion (*ACC*) et l'autoconversion (*AUT*). Ces gouttes peuvent être évaporées (*EVA*) lorsque l'atmosphère

est sous-saturée; le traitement des processus de condensation/évaporation des gouttelettes résulte de l'ajustement à saturation. Lorsque la taille des gouttes est suffisamment grande, les gouttes sédimentent (*SED*).

Phase froide

Les cristaux de glace primaire sont initiés par nucléation hétérogène (cf section 2.2.2) ou par congélation homogène (cf annexe B). Ces processus sont respectivement repérés par *HEN* (pour "HEterogeneous Nucleation") et *HON* (pour "HOmogeneous Nucleation") sur la figure 3.2.

Une fois ces cristaux formés, on distingue deux modes de croissance : le dépôt de vapeur (*DEP*) ou autrement appelé la condensation solide, et l'effet Bergeron-Findeisen (*BER*) qui équivaut à un transfert de masse des petites gouttelettes environnantes vers ledit cristal pour $T \geq -12^{\circ}\text{C}$ (car pour une atmosphère donnée, la pression de vapeur saturante par rapport à la glace est atteinte avant celle par rapport à l'eau liquide).

L'autoconversion (*AUT*) de ces cristaux de glace primaire en neige a été adaptée à partir de Harrington et al. [1995], qui considère la condensation solide (*DEP*) comme le processus de croissance des cristaux le plus efficace. Une fois que ces cristaux atteignent un diamètre critique de $100\mu\text{m}$ environ, correspondant au seuil de conversion, ils sont assimilés à des cristaux de neige. Les cristaux de neige, eux, croissent par condensation solide (*DEP*), givrage de gouttelettes d'eau nuageuse (*RIM*), accréation de gouttes de pluie (*ACC*) ou suite à l'agrégation de particules de glace (*AGG*); les noyaux de collection initialement définis par Long [1974] pour l'accréation de la pluie, ont ici été transposés à l'agrégation des cristaux de glace primaire en neige.

La collecte de gouttelettes et de gouttes par les cristaux de glace (*CFR*) ou de neige (*CVM*) est basée sur des noyaux de collection continus [Pruppacher and Klett, 1997; Seinfeld and Pandis, 1998], et on autorise la conversion d'une partie de la glace/neige en grésil, au-delà d'un diamètre critique. Le grésil est aussi formé suite au givrage de la neige (*RIM*) et il croît par dépôt de vapeur (*DEP*) ou accréation (*ACC*); en fonction de la température de l'atmosphère, le grésil est sujet à deux modes de croissance distincts, la croissance sèche (*DRY*) ou humide (*WET*).

L'initiation de la grêle est basée sur un taux de conversion, du grésil en grêle, qui dépend d'un facteur de poids calculé à partir des tendances de croissance, sèche (*DRY*) ou humide (*WET*), du grésil.

3.4 Schémas microphysiques préexistants

Phase chaude

Jusqu'alors MésoNH contenait trois schémas microphysiques pour la phase chaude. Le plus simple (KESS) s'appuie sur le schéma de Kessler [Kessler, 1969], c'est un schéma à 1 moment qui prédit uniquement les rapports de mélange de l'eau nuageuse et de la pluie. Deux schémas à 2 moments, i.e. prédisant à la fois les rapports de mélange et les concentrations en hydrométéores, ont ensuite été développés. L'un, KHKO, est spécialement dédié aux nuages faiblement précipitants que sont les stratocumulus, tandis que le second, C2R2 [Cohard and Pinty, 2000], a été établi pour la globalité des nuages précipitants.

Le schéma C2R2 a été utilisé comme base au développement de WAMA. Les schémas microphysiques classiques diagnostiquent la concentration en gouttelettes formées, à partir d'une population monodispersée et constante de CCN, répartis de façon homogène dans l'espace. Pour ces schémas, l'atmosphère est un réservoir infini de CCN. De la même façon, le schéma C2R2 estime la quantité de gouttelettes nucléées à partir d'un mode homogène de CCN. Toutefois, dans C2R2 la concentration en CCN *activés* est une variable pronostique, ce qui permet de contraindre le nombre de CCN *activés* au nombre de CCN effectivement disponibles dans l'atmosphère environnante.

Le schéma WAMA a été conçu pour appréhender une population polydispersée de CCN. Chacun des modes correspond à un champ 3D, et est initialisé de manière non-homogène. Afin de considérer simultanément n spectres d'activation de n modes de CCN, chacun avec ses propres propriétés de nucléation, le suivi des concentrations en CCN *interstitiels* et *activés* a été organisé dans WAMA; $2n$ variables sont donc associées aux CCN.

Phase froide

De la même façon que pour la phase chaude, la modélisation de la microphysique froide est passée par divers stades de développement. Il en résulte des schémas à 1 moment ICE3, puis ICE4 dans lequel on a ajouté la prise en compte de la grêle. Ainsi que le module complémentaire à C2R2, pour la phase froide ou les nuages en phase mixte, qui se nomme C1R3. L'association $C2R2 + C1R3 = C3R5$ correspond à un schéma pour les nuages en phase mixte, dont 5 rapports de mélange (l'eau nuageuse, la pluie, la glace primaire, la neige, le grésil, avec la grêle en option) et 3 concentrations (pour l'eau nuageuse, la pluie et la glace primaire) sont pronostiques. Si les processus de croissance et de transformation des espèces glacées dans MIMA sont identiques à ceux existants dans C1R3, l'initiation des cristaux de glace primaire a, elle, été entièrement révisée. Et, à l'image de l'activation des aérosols dans WAMA (phase chaude), le suivi de concentrations 3D pour les IN *interstitiels* et *activés* a été organisé dans MIMA, afin de pouvoir envisager simultanément plusieurs modes d'IN non homogènes, aux propriétés de nucléations différentes.

Chapitre 4

Bilan des aérosols dans MIMA

Sommaire

4.1 Equation de continuité	63
4.2 Lois de distributions	65
4.3 Activation	67
4.4 Lessivage par impaction	70

L'un des objectifs de cette thèse est de réaliser un bilan des aérosols aptes à fonctionner comme des noyaux de nucléation. L'intervention de ces *supports particuliers* est déterminante pour les processus de formation des précipitations. Plus largement, c'est elle qui conditionne la microstructure et les propriétés radiatives d'un système nuageux.

La description classique des aérosols utilisée dans les modèles de climat, pour modéliser le rôle des CCN/IN dans les nuages, est remise en question dans le rapport de l'IAPSAG [2007], par les auteurs superviseurs du chapitre 3 (M. O. Andreae, D. A. Hegg et U. Baltensperger). Ces auteurs [IAPSAG, 2007] déclarent : “*the conventional mass-based treatment of aerosol fluxes does not take into account that the properties of aerosol particles can vary strongly with **particle size**, and that the cloud-physical effects of aerosols depend on **number** concentration, not on mass concentrations*”. Ainsi, les connaissances actuelles montrent que les capacités nucléantes des aérosols sont fortement dépendantes de la taille des noyaux considérés, c'est pourquoi il s'avère nécessaire de suivre les concentrations *en nombre* des sous-populations atmosphériques de CCN/IN *non-activés*, i.e. d'aérosols capables d'initier la nucléation d'hydrométéores primaire.

Le schéma microphysique élaboré au cours de cette thèse assimile les concentrations en nombre des différents modes d'aérosols, *interstitiels* et *activés*, à des champs pronostiques. Les valeurs de ces concentrations sont donc stockées en mémoire à tous les instants de la simulation. Une équation de conservation régit l'évolution de ces champs pronostiques de noyaux particuliers, en inventoriant les principaux processus les affectant. Cette équation sera l'objet de ce chapitre.

A travers la dépendance en taille des propriétés de nucléation, ce sont les propriétés physico-chimiques singulières de chaque CCN et de chaque IN que l'on souhaite prendre en compte. Cela équivaut à déterminer l'efficacité propre à chaque CCN/IN de nucléer une particule de nuage, donc son impact sur la microphysique du nuage. Pour les raisons explicitées dans la suite, nous considérons ici les particules d'aérosol comme porteuses de propriétés physico-chimiques fixes sur toute la durée d'un événement nuageux. En revanche, plusieurs types physico-chimiques de particules d'aérosol sont autorisés à perturber simultanément un même nuage (cf sections 4.2). Les populations de CCN et d'IN sont constituées par des individus ayant des propriétés physico-chimiques variables d'un mode de la population à un autre, mais qui n'évoluent pas au cours du temps.

Ce chapitre explique la construction du bilan, ainsi que la signification physique des différents termes qui le composent. Le principe du lessivage par impaction est introduit dans la section 4.4 et le lessivage par nucléation dans la section 4.3. Les processus de formation et de transformations des particules d'aérosol n'apparaissent pas dans ce bilan, pour les motifs développés dans la section 4.1.

4.1 Equation de continuité

Le fait, qu'en moyenne globale, un même aérosol passe plus d'une fois dans un nuage [Hoose et al., 2008a] est important si l'on modélise de longues échelles de temps, comme c'est le cas pour les simulations globales ou même pour des simulations longues avec des modèles de mésoéchelle (où plusieurs cycles nuageux sont simulés successivement : les aérosols (trans)formés au cours du premier évènement nuageux servent de noyaux de nucléation au suivant...). Toutefois, l'échelle temporelle d'un évènement précipitant est suffisamment courte pour ne pas considérer l'évolution physico-chimique des aérosols : si un seul cycle nuageux est simulé, on n'envisage pas l'avenir (en tant que noyaux) des aérosols (trans)formés au cours du cycle.

Ici, on veut être à même de considérer plusieurs types d'aérosol, simultanément ou non, pour mesurer l'impact des aérosols sur l'initiation d'un système nuageux, via les processus de nucléation. Ainsi, les processus de (trans)formation des particules d'aérosol antérieurs à l'évènement nuageux ne nous intéressent-ils pas.

D'autre part, leur évolution physico-chimique au cours de l'évènement nuageux, est négligeable dans le cadre de notre étude. Le schéma microphysique décrit dans cette thèse est dédié spécifiquement à l'étude de nuages fortement précipitants. Dans ces nuages, dès lors que les aérosols ont nucléé des gouttelettes, celles-ci subissent différents processus de coalescence, jusqu'à former une goutte de diamètre suffisamment élevé pour sédimenter. Cette goutte de pluie résulte de la coalescence d'un très grand nombre de gouttelettes, et a donc ingéré tous les aérosols à l'origine de ces gouttelettes. Par ailleurs, une goutte de pluie pouvant atteindre une taille supérieure au millimètre avant de sédimenter, on compte 10^6 gouttelettes de taille moyenne ($10 \mu\text{m}$) dans une goutte d'un millimètre ; si la goutte venait à s'évaporer, elle ne restituerait qu'une particule d'aérosol devant le millier qui a participé à sa formation. On considère ici que la transformation physico-chimique de cet aérosol est négligeable devant la quantité lessivée. Contrairement aux nuages faiblement

précipitants (stratus), pour lesquels l'évaporation de gouttelettes au sein du nuage peut être un processus important, dans les nuages en phase mixte, la faible occurrence de ce processus nous autorise à ne pas tenir compte de la modification physico-chimique des aérosols qu'il implique.

Cette thèse se focalise sur le rôle des particules d'aérosols dans l'initiation des hydrométéores, sur leurs efficacité variables à nucléer les hydrométéores primaires, et donc sur leur rôle dans la détermination des propriétés précipitantes et radiatives du nuage. Dans cette optique les processus affectant les champs de noyaux de nucléation (CCN/IN) sont : la nucléation des hydrométéores, le lessivage par impaction et le transport (advection et turbulence).

Puisque l'activation/nucléation est un processus diagnostique, il est nécessaire de suivre les concentrations en noyaux *activés* afin de ne pas activer plusieurs fois les mêmes aérosols. D'autre part, la prise en compte de populations multimodales nécessite de suivre les concentrations en noyaux *interstitiels*; cela permet d'initialiser des profils inhomogènes d'aérosols. L'évolution temporelle des n modes de CCN (ou d'IN) est donc régit par $2n$ équations-bilan, n pour les noyaux de nucléation *interstitiels* et n pour les noyaux *activés*. Les équations de conservation d'un mode i de CCN ou d'IN ($N_{CCN/IN,i}$) s'écrivent comme :

$$\begin{aligned} \left. \frac{d\rho_{air}N_{CCN/IN,i}}{dt} \right|_{\text{interstitiels}} &= -Q_{\text{activation},i} - Q_{\text{lessivage par impaction},i} + Q_{\text{transport},i} \\ \left. \frac{d\rho_{air}N_{CCN/IN,i}}{dt} \right|_{\text{activés}} &= +Q_{\text{activation},i} + Q_{\text{transport},i} \end{aligned}$$

où $Q_{\text{activation},i}$, $Q_{\text{lessivage par impaction},i}$, $Q_{\text{transport},i}$ sont les taux (définis positifs) d'activation, de lessivage par impaction et de particules transportés (par advection et turbulence) des aérosols du mode i .

Et puisque les gouttelettes sont nucléées par l'activation de la somme des modes i de CCN, leur équation de continuité devient alors :

$$\begin{aligned} \frac{d\rho_{air}N_c}{dt} = & + \sum_i Q_{\text{activation},i} - Q_{\text{coal/conv}} - Q_{\text{évaporation}} + Q_{\text{transport}} \\ & - Q_{\text{homogène}} - Q_{\text{givrage}} - Q_{\text{hétérogène}} \end{aligned}$$

où $Q_{\text{coal/conv}}$ les taux d'auto-conversion, de coalescence et de conversion en gouttes, $Q_{\text{évaporation}}$ le taux d'évaporation et $Q_{\text{transport}}$ représente leur transport. Les 3 derniers termes sont ajoutés en cas de microphysique en phase mixte : $Q_{\text{homogène}}$ le taux de gouttelettes congelées par nucléation homogène, Q_{givrage} le taux de goutte-

ettes qui sert à la conversion de particules glacées en grésil, et $Q_{\text{hétérogène}}$ pour le taux de gouttelettes congelées par nucléation hétérogène via les modes d'immersion et de condensation.

Symétriquement un terme d'activation de tous les modes i d'IN apparaît dans l'équation de continuité des cristaux de glace primaires :

$$\frac{d\rho_{\text{air}}N_i}{dt} = + \sum_i Q_{\text{activation},i} + Q_{\text{HM}} + Q_{\text{homogène}} - Q_{\text{évaporation}} - Q_{\text{conversion}} - Q_{\text{givrage}} + Q_{\text{transport}}$$

où $Q_{\text{activation},i}$ est le taux d'activation des IN du mode i par nucléation hétérogène, $Q_{\text{homogène}}$ le taux de nucléation de la glace par congélation homogène des gouttelettes ne contenant pas d'IN et Q_{HM} , le processus de production secondaire de cristaux de Hallett-Mossop. Q_{conv} est le taux de conversion de la glace primaire en neige, $Q_{\text{évaporation}}$ le taux d'évaporation des cristaux, Q_{givrage} le taux de givrage (taux de conversion en grésil), et $Q_{\text{transport}}$ représente le transport de la glace primaire.

4.2 Lois de distributions

CCN

On sépare la sous-populations des noyaux de condensation (CCN) en deux sous-populations.

Les CCN dits *interstitiels* ou *non-activés*, correspondent aux noyaux de condensation encore disponibles dans l'atmosphère pour déclencher le processus de nucléation d'une gouttelette d'eau nuageuse. Ces aérosols ont les caractéristiques physico-chimiques requises pour initier la formation d'une gouttelette lorsque les conditions thermodynamiques de l'atmosphère sont favorables (températures et sursaturations par rapport à l'eau liquide, principalement). Ces aérosols sont de potentiels noyaux de condensation.

La seconde sous-population est constituée par les CCN *activés*; ce sont les noyaux de condensation qui ont déjà initié la formation d'une gouttelette d'eau nuageuse et qui se retrouvent immergés dans cette gouttelette. On dit de ces aérosols qu'ils sont activés.

Dans le modèle MésoNH, les CCN interstitiels sont décrits comme une somme de distributions log-normales. $n_{ai}(d_a)dd_a$ représente la distribution log-normale associée aux CCN interstitiels du modes i . La distribution complète de ces aérosols interstitiels s'exprime comme une somme sur les différents modes :

$$dN_a = \sum_{i=1}^l n_{ai}(d_a)dd_a = \sum_{i=1}^l \frac{N_{ai}}{\sqrt{2\pi}d_a \ln\sigma_{ai}} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_{ai})}{\sqrt{2}\ln\sigma_i}\right)^2} dd_a \quad (4.1)$$

où l est le nombre de modes de la distribution et i son indice ($l = 3$ de façon courante, avec un mode de noyaux dits "d'Aitken", un mode d'accumulation et un mode grossier); d_a correspond au diamètre de l'aérosol, ici le CCN interstitiel. N_{ai} est la concentration en nombre de ces CCN interstitiels, σ_{ai} , la largeur à mi-hauteur de la distribution log-normale, et, \bar{d}_{ai} son diamètre médian.

Comme nous le verrons au chapitre 4, les concentrations en nombre de CCN *activés* sont diagnostiquées à partir de celles en CCN *activables*, fournies par le spectre d'activation. De ce fait, et puisque la distribution des CCN *interstitiels* est connue, il ne nous est pas nécessaire de connaître la loi de distribution des CCN *activés*.

IN

Les IN *interstitiels* sont représentés par des lois de distribution log-normales.

$n_{int,i}(d_a)dd_a$ représente la distribution log-normale associée aux IN *interstitiels*, en fonction du nombre de modes i de cette distribution; i est l'indice du mode d'IN interstitiel considéré et d_a correspond au diamètre de la particule d'aérosol (i.e. l'IN interstitiel). Chaque mode i de la distribution des IN s'exprime :

$$\begin{aligned} n_{int,i}(d_a)dd_a &= \sum_{X=1}^j n_{int,i,X}(d_a)dd_a \\ &= \sum_{X=1}^j \frac{\alpha_X N_{int,i}}{\sqrt{2\pi} d_a \ln\sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2}\ln\sigma_X}\right)^2} dd_a \end{aligned}$$

où X repère les différents matériaux composant l'IN du mode i . $\alpha_X N_{int,i} = N_{int,i,X}$, est la concentration en nombre de l'espèce X des IN interstitiels, du mode i . La largeur à mi-hauteur de la distribution log-normale de l'espèce X des IN du mode i (σ_X), et, son diamètre médian (\bar{d}_X) ne dépendent que de l'espèce X .

Et ainsi, la concentration totale en IN interstitiels de la population multimodale est calculée en faisant la somme des concentrations sur les différents modes i (où l est le nombre total de modes) :

$$dN_{int} = \sum_{i=1}^l n_{int,i}(d_a) dd_a$$

Les sommations sur l'espèce X sont modulables, en fonction du type de mélange. La section 7.1 détaille les lois de distributions utilisées dans le cas d'un mélange interne ou externe. Ici on introduit une variable supplémentaire dans les lois de distributions, la fraction α_X de chacune des espèces composants l'IN, dont la somme est toujours égale à $\sum_X \alpha_X = 1$, et ce, quelque soit le type de mélange (dans le cas d'un mélange externe, $X = 1$).

Les concentrations en nombre d'IN *activés* sont diagnostiquées à partir de celles en IN *activables*, calculées à partir du spectre d'activation (cf 4). De ce fait, il suffit seulement de connaître la distribution initiale des IN *interstitiels* pour déterminer la quantité d'IN *activables* dans les conditions atmosphériques variables, et il ne nous est pas nécessaire de faire d'hypothèses sur la forme de la distribution des IN *activés*.

4.3 Activation

On appelle activation, le processus par lequel une particule d'aérosol ayant des propriétés nucléantes données (CCN ou IN), initie la formation d'un hydrométéore primaire (gouttelette ou cristal de glace, respectivement).

CCN

Conservation du spectre d'activation Dans notre schéma, le principe de l'activation des CCN repose sur le suivi simultané des champs 3D de CCN *interstitiels* et *activés*. La figure 4.1a) schématise la manière dont est déduite la concentration en CCN *activés* à l'instant t , à partir de la concentration en CCN *activables* à t , à laquelle on retranche la concentration en CCN *déjà activés* au pas de temps précédent (à $t - dt$) (cf Eq. 6.8).

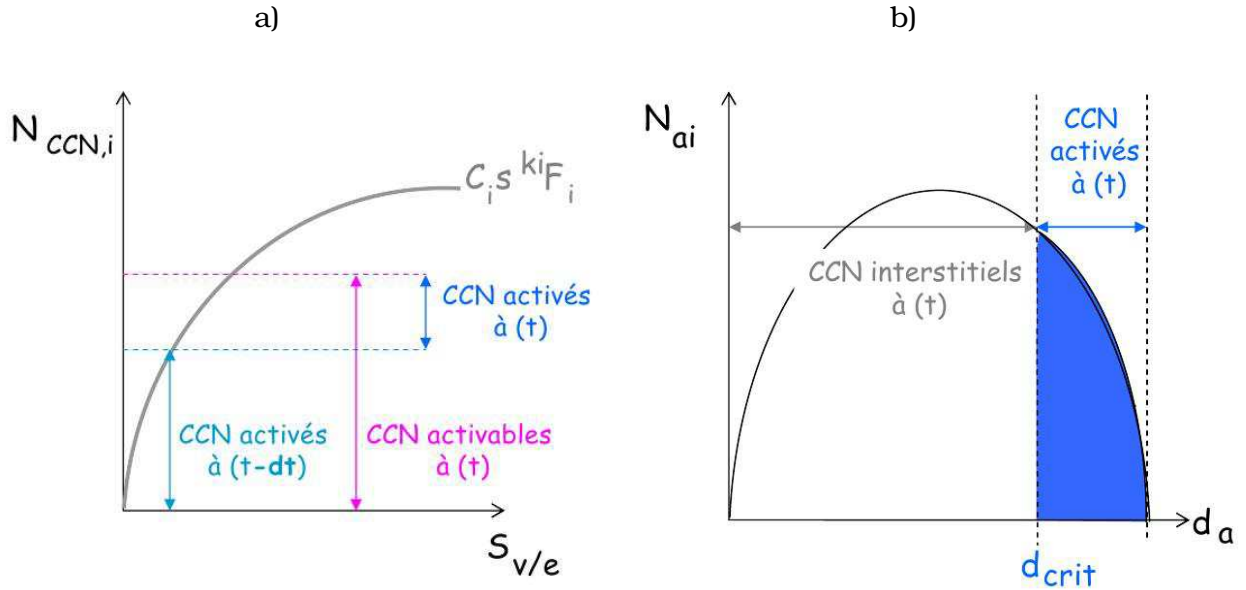


FIG. 4.1 – a) Schéma d'un spectre d'activation de forme $C_i S_{v/e}^{k_i} F_i$ (gris), pour un mode i de CCN. La concentration en CCN *activés* à t (vert) est déduite par différence entre la concentration en CCN *activables* à t (rose) et la concentration en CCN *déjà activés* à $t - dt$ (bleu). **b)** Schéma de la loi de distribution log-normale du mode i de CCN interstitiels; d_{crit} correspond au diamètre critique, à partir duquel sont activés les CCN de ce mode. Les axes sont en échelle logarithmique.

La quantité de CCN *activables* est estimée selon le spectre d'activation (ici, la loi de Twomey étendue $C_i S_{v/e}^{k_i} F_i$, cf section 6.1), en fonction des conditions de sur-saturation (par rapport à l'eau) du milieu. Une **hypothèse fondamentale** de cette méthode est la conservation du spectre d'activation, *tout au long de la trajectoire lagrangienne de chaque parcelle d'air*. En d'autres termes, cela signifie que, pour un mode de CCN i donné, on considère que la concentration totale en particules (somme de ses concentrations en CCN *interstitiels* et *activés*), en chaque point, est, à la fois conservée par le transport, et par les processus de nucléation. Cette hypothèse nous permet de reconstituer le spectre d'activation à chaque instant t . La concentration totale du mode i de CCN est ainsi égale à la concentration initiale en CCN interstitiels (figure 4.1b)) :

$$N_{a,i}^t + N_{CCN,i}^t = \int_0^{\infty} n_{ai}(d_a) dd_a \quad (4.2)$$

Cette conservation du spectre d'activation par advection et nucléation, implique que la concentration maximale de CCN interstitiels qui pourra être activée est limi-

tée à la concentration effectivement disponible en ce point, i.e. à la concentration initiale en CCN interstitiels.

Dépendance en taille Pour déterminer la quantité de CCN *activables*, on calcule le maximum de sursaturation $S_{v/e}$ en fonction des paramètres du spectre d'activation, du mode i d'aérosol (cf Eq. 6.7). Ces paramètres de forme k_i, μ_i, β_i sont déduits des caractéristiques physico-chimiques de la distribution du mode i (section 6.1.2), et sont donc fonction de la taille (\bar{d}_{ai}) du mode d'aérosol considéré. Comme l'illustre la figure 4.1b), pour une sursaturation maximale donnée, toutes les particules de diamètres supérieurs à d_{crit} seront activées :

$$N_{CCN,i} = \int_0^{d_{crit}} n_{ai}(d_a) dd_a \quad (4.3)$$

IN

L'activation des noyaux glaçogènes est fondée sur la même *hypothèse d'invariance du spectre d'activation* par transport et nucléation, que pour les CCN.

De la même façon que pour les gouttelettes, afin de calculer le nombre de cristaux de glace primaire nucléés, la première étape consiste à déterminer une concentration en nombre d'IN potentiellement *activables* au regard des conditions atmosphériques en température et en humidité relative. L'hypothèse de conservation du spectre nous permet de calculer la concentration en IN *activables* (pour un mode i) à partir de la concentration totale en IN de ce mode (i.e. IN *interstitiels* + *activés*). Le nombre d'IN réellement *activés* au temps t est déduit de la différence entre, le nombre d'IN *activables* à cet instant t comparé au nombre d'IN déjà activés au temps précédent $t - dt$. Si la méthode est semblable à celle utilisée pour les CCN, l'expression du spectre d'activation est, elle, tout à fait différente : cet aspect, introduit en section 2.2.2, sera véritablement discuté au chapitre 7.

Dépendance en taille Le spectre d'activation des IN est empirique et est basé sur l'intégration d'un spectre de référence. Ce spectre de référence est établi pour des particules de diamètres inférieures à $1\mu\text{m}$, et prend en considération l'aire du noyau glaçogène. L'élément clef de l'activation des IN c'est la distribution des sites actifs qui composent la surface de l'IN, et leurs propriétés (cf section 2.2.2 c -). La probabilité d'activation d'un IN augmente avec la quantité de sites actifs visibles à

sa surface. Or plus la surface de l'IN est grande, plus sa probabilité de contenir un site actif est accrue. C'est pourquoi la quantité de sites actifs, et donc, les propriétés de nucléation d'un IN, dépendent fortement du diamètre de l'IN en question.

Dans la paramétrisation de Phillips et al. [2008] dont nous nous sommes inspirés pour modéliser le spectre d'activation des IN, ces sites actifs sont intégrés empiriquement via une dépendance à :

- d_X , le diamètre caractéristique de l'espèce X qui compose l'IN. Puisque chaque mode i d'IN est construit sur une somme de distributions des espèces X , alors le diamètre du mode d'IN dépend indirectement de celui des espèces d_X ,
- la variable $\Omega_{X,1,*}$, qui correspond à une aire de référence distincte pour chaque espèce X composant l'IN de taille comprise entre 0.1 et $1\mu\text{m}$.

4.4 Lessivage par impaction

Les particules d'aérosol en suspension dans l'atmosphère sont sujettes aux déplétions provoquées par les processus de nucléation des gouttelettes et des cristaux à l'intérieur du nuage, où l'aérosol est un noyau pour la formation de l'hydrométéore (cf section 4.3), et se retrouve inclus à l'intérieur de celui-ci. Toutefois les processus de nucléation ne constituent pas l'unique puits de ces particules-noyaux. Celles-ci peuvent également être lessivées par les hydrométéores en chute libre : sur la trajectoire de sa chute, l'hydrométéore entre en collision avec des aérosols en suspension et les collecte par impaction (i.e. suite au choc). Hormis si l'hydrométéore s'évapore au cours de sa descente, on considère que ces aérosols collectés sont déplétés, et qu'ils ne sont plus disponibles pour la nucléation dans l'atmosphère.

Un module de lessivage par impaction des aérosols-noyaux avec les gouttes, a été implanté dans ce schéma d'aérosol afin de fermer le bilan des particules d'aérosol, ayant des capacités de nucléation.

Avec le module de lessivage, l'hypothèse de la conservation de la concentration totale par les processus advectifs (énoncée à la section 4.3), reste valide. Le lessivage par impaction consiste à déléter une partie de la concentration en nombre des aérosols interstitiels, le spectre d'activation est ensuite recalculé à partir de la nouvelle concentration totale (comme illustré par la figure 4.2), et ce dernier spectre est conservé par advection et nucléation.

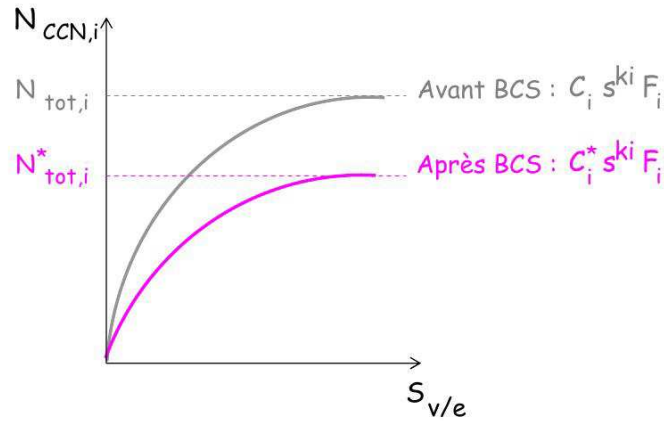


Fig. 4.2 – Représentation schématique de l'impact (courbe rose) du lessivage par impaction ("BCS") sur un spectre initial de CCN en gris.

Dans ce module, on considère le lessivage des CCN et des IN interstitiels par les *gouttes de pluie, dans et sous le nuage*. Le lessivage par *impaction* des aérosols interstitiels avec les *gouttelettes d'eau nuageuse* n'est pas ici pris en compte car on estime que c'est un processus de second ordre devant le lessivage des aérosols résultant de la *nucléation* des gouttelettes.

La paramétrisation adaptée est celle de Slinn [1983]. Cette paramétrisation tient compte des 3 principaux mécanismes de capture entre la goutte et l'aérosol, à savoir le mouvement brownien (dominant pour les particules de plus petites tailles), l'interception (pour des particules dans le "Greenfield gap") et l'impaction inertielle (qui prédomine pour les aérosols de diamètre supérieur à $2\mu m$). Les forces électrophorétiques ne sont pas prises en considération dans cette formulation du lessivage par impaction, car, bien que plusieurs études leur aient été dédiées [Slinn and Hales, 1971; Wang et al., 1978; Tinsley et al., 2005], les expressions de ces processus de capture sont intrinsèquement liées à la valeur de la charge de chacune des particules d'aérosols; d'une part l'évaluation de ces charges demeure encore tout à fait incertaine, et, d'autre part, le calcul de la force électrique nécessite d'estimer l'humidité relative locale tout au long des trajectoires de chacune des particules, ce qui est particulièrement coûteux.

Le coefficient de lessivage calculé ici est une fonction de la taille caractéristique du mode i d'aérosols lessivés, ainsi que de la largeur de la distribution. Il est également sensible au profil vertical de la concentration en aérosols, d'où la nécessité d'utiliser un modèle 3D pour une étude approfondie du lessivage; d'autre part,

l'implantation d'un tel module dans un modèle 3D autorise la résolution de l'interaction non-linéaire entre lessivage et dynamique, comme l'ont montré Berthet et al. [2010] dans leur étude.

Chapitre 5

Lessivage par impaction des aérosols par les gouttes de pluie

Sommaire

5.1 Taux de lessivage des CCN interstitiels	75
5.1.1 Paramétrisation de l'efficacité de collection	76
5.1.2 Intégration par les méthodes de Gauss	79
5.1.3 Taux de lessivage en masse	82
5.2 Lessivage des IN	83

Le module de *lessivage par impaction* décrit dans cette section a été élaboré afin de quantifier le lessivage des CCN non-activés (i.e. les aérosols interstitiels pouvant intervenir dans le processus de nucléation en tant que noyaux de condensation, et donc, initier la formation des gouttelettes d'eau nuageuse), suite à leurs collisions avec des gouttes de pluie.

L'ensemble des mécanismes d'incorporation des espèces chimiques, et particulières, par les précipitations est regroupé sous l'appellation *dépôt humide*.

Le processus de lessivage des aérosols *par impaction* est un mécanisme à part entière du dépôt humide.

Un article a été publié au cours de cette thèse sur l'implantation d'un module de lessivage par impaction des CCN par les gouttes de pluie, dans le modèle 3D MésoNH [Berthet et al., 2010]. L'interaction de ce module de lessivage avec la dynamique du nuage a été étudiée sur un cas idéalisé de ligne de grain ayant un écoulement dynamique. Le lecteur trouvera cet article en annexe C.

Le module de lessivage par impaction développé dans MésoNH permet d'appréhender précisément les quantités d'aérosols interstitiels capturés par les gouttes de pluie ; la capture des aérosols par collision avec une goutte, peut intervenir soit *dans* le nuage, i.e. sur le lieu de formation des gouttes, soit *sous* le nuage, lorsque les gouttes ont atteint une taille propice à la sédimentation. On définit une fonction $E(D_g, d_a)$, appelée *efficacité de collision* [Slinn, 1983; Pruppacher and Klett, 1997; Seinfeld and Pandis, 1998], correspondant à la probabilité pour une goutte qui sédimmente dans l'air, de collecter les aérosols contenus dans son volume de chute. La plupart des études récentes traitant le lessivage par impaction sont basées sur ce concept [Andronache, 2003; Loosmore and Cederwall, 2004; Henzing et al., 2006; Tost et al., 2006; Feng, 2007]. L'efficacité du lessivage par impaction dépend étroitement, et de manière tout à fait non-linéaire, des tailles des particules (aérosol et goutte) impliquées lors de la collision. L'efficacité de collision est maximale pour $E(D_g, d_a) = 1$, quand tous les aérosols existants dans le volume de chute de la goutte ont été collectés ; en général, pour des particules non chargées, $E(D_g, d_a) \ll 1$.

Ainsi, la paramétrisation sélectionnée, et présentée dans cette partie, exprime-t-elle les différentes efficacités de collection $E(D_g, d_a)$ résultant de la collision entre les CCN interstitiels et les gouttes, en fonction des caractéristiques dimensionnelles des distributions.

5.1 Taux de lessivage des CCN interstitiels

L'une des principales difficultés rencontrée lors de l'intégration du processus de lessivage par impaction, est la double dépendance de ce phénomène, à la fois fonction de la distribution des CCN interstitiels ($n_a(d_a)$) et de celle des gouttes ($n_g(D_g)$) :

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial N_a}{\partial t} \right|_{BCS} &= \int_0^{\infty} \left. \frac{\partial n_a(d_a)}{\partial t} \right|_{BCS} dd_a = - \int_0^{\infty} \Lambda(d_a) n_a(d_a) dd_a \\ &= - \int_0^{\infty} \left(\int_0^{\infty} \frac{\pi}{4} D_g^2 U_g(D_g) E(D_g, d_a) n_R(D_g) dD_g \right) n_a(d_a) dd_a \end{aligned} \quad (5.1)$$

La Fig. 5.1 illustre cette double dépendance du processus de lessivage, qui varie à la fois en fonction des propriétés physiques de l'aérosol (ici la diamètre d_a) et du taux de pluie $R = \int_0^{\infty} (\pi/6)(\rho_{eau}/\rho_{air}) D_g^3 U_g(D_g) n_g(D_g) d(D_g)$.

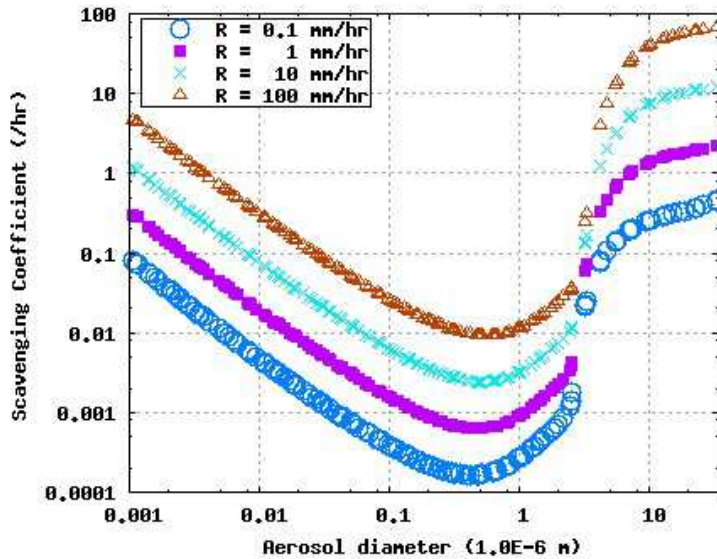


FIG. 5.1 – Illustration de la dépendance croisée du coefficient de lessivage, fonction du diamètre des CCN interstitiels [μm] et du taux de pluie. Source : Berthet et al. [2010]

La difficulté est donc d'ordre mathématique. Afin de déterminer le taux de lessivage en nombre (Eq. 5.1), il est nécessaire d'intégrer successivement, de 0 à l' ∞ , une fonction de l'efficacité de collection $E(D_g, d_a)$ sur les deux distributions, des gouttes et des aérosols. Dans un premier temps, et quelque soit la forme de ces distributions (log-normal pour les aérosols ou gamma-généralisée pour les gouttes

dans MésoNH), on intègre sur le domaine décrit par les diamètres des gouttes, afin d'obtenir le coefficient de lessivage $\Lambda(d_a)$ associé à un aérosol interstitiel de taille d_a . Puis, dans un deuxième temps, on intègre ce coefficient de lessivage ($\Lambda(d_a)$) sur la distribution en taille des aérosols interstitiels, afin de déterminer le taux de lessivage relatif à la population d'aérosol considérée (Eq. 5.1).

Dans l'Eq. 5.1, $U_g(D_g)$ est la vitesse de chute des gouttes de diamètres D_g ; elle est approximée par une simple loi puissance fonction du diamètre, et prend en compte les effets de la densité de l'air [Foote and Du Toit, 1969] :

$$U_g(D_g) = a D_g^b \left(\frac{\rho_{a0}}{\rho_a}\right)^{0.4}$$

L'intégration analytique de l'Eq. 5.1 n'étant pas possible, nous avons eu recours à une méthode numérique, de quadrature dite "de Gauss" [Press et al., 1992]. Les deux intégrales infinies sont ainsi discrétisées en une somme pondérée sur un nombre réduit (~ 20) d'abscisses optimisées; chaque abscisse est déterminée via un changement de variable explicité plus bas.

5.1.1 Paramétrisation de l'efficacité de collection

Puisqu'il n'existe pas de solution analytique de l'équation de Navier-Stokes, nous reprenons ici la formulation semi-empirique du coefficient de collision $E(D_g, d_a)$ exprimée par Slinn [1983]; cette formulation s'appuie sur les trois processus de collection les mieux compris à ce jour, à savoir, la diffusion brownienne, l'interception et l'impaction inertielle (cf section 4.4).

$E(D_g, d_a)$ est exprimée comme suit :

$$\begin{aligned} E(D_d, d_a) = & \frac{4}{Re Sc} \left[1 + 0.4Re^{1/2}Sc^{1/3} + 0.16Re^{1/2}Sc^{1/2} \right] \\ & + 4\phi[\omega^{-1} + (1 + 2Re^{1/2})\phi] \\ & + \left[\frac{St - St^*}{St - St^* + 0.667} \right]^{3/2} \left(\frac{\rho_a}{\rho_{eau}} \right)^{1/2} \end{aligned} \quad (5.2)$$

à partir des cinq nombres sans dimensions suivants :

1. le nombre de Reynolds, qui mesure le rapport des effets inertiels vis à vis des effets de viscosité :

$$Re = \frac{D_g U_g(D_g) \rho_{air}}{2 \mu_{air}}$$

2. le nombre de Schmidt, correspondant au rapport de la viscosité cinématique et de la diffusivité massique de l'aérosol :

$$Sc = \frac{\mu_{air}}{\rho_{air} \mathcal{D}}$$

avec $\mathcal{D} = \frac{k_B T C_c}{3 \pi \mu_{air} d_a}$, le coefficient de diffusivité brownienne de la particule d'aérosol et $C_c = 1 + \frac{2l_{air}}{d_a} \left[1.257 + 0.4 \exp\left(-\frac{1.1d_a}{2l_{air}}\right) \right]$, le facteur correctif de Cunningham (proportionnel au nombre de Knudsen) ; il est proche de 1 si les particules ont une dimension d_a plus importante que le libre parcours moyen de l'air l_{air} .

3. le rapport de l'inertie d'une particule solide et des forces visqueuses, appelé nombre de Stokes :

$$St = \frac{2(U_g(D_g) - u_a(d_a)) \tau_a}{D_g} \quad \text{avec} \quad \tau_a = \frac{d_a^2 C_c \rho_a}{18 \mu_{air}} \quad (5.3)$$

où τ_a correspond au temps caractéristique de relaxation du CCN interstitiel collecté, i.e. le temps nécessaire à la particule de vitesse $u_a(d_a)$, pour s'extraire des lignes de courant créées dans le sillage de la goutte, de vitesse $U_g(D_g)$ [Seinfeld and Pandis, 1998].

4. le rapport des diamètres :

$$\phi = \frac{d_a}{D_g}$$

5. le rapport des viscosités :

$$\omega = \frac{\mu_{eau}}{\mu_{air}}$$

On définit également

$$St^* = \frac{1.2 + (1/12 \ln(1 + Re))}{1 + \ln(1 + Re)}$$

Tous les symboles sont définis en annexe A.

L'Eq. 5.2 est composée de trois termes distincts qui, chacun, représente la contribution d'un des processus de collection (cf Fig. 5.2) ; tous trois sont fortement dépendants de la taille (d_a) de l'aérosol collecté. Le premier terme de l'Eq. 5.2 illustre le mécanisme de capture par *diffusion brownienne* (Fig. 5.2a), qui domine pour les particules d'aérosol de diamètre inférieur à $0.01 \mu m$. Ces petites particules sont sujettes à des mouvements aléatoires, générés par leurs chocs avec les

molécules de gaz composant l'atmosphère. Il en résulte un mouvement très irrégulier des particules d'aérosol qui est à l'origine de la collision avec la goutte. Ces mouvements aléatoires engendrés sous l'effet de l'agitation thermique du gaz environnant, sont, à l'échelle macroscopique, assimilés à un phénomène de diffusion "brownienne", que traduit \mathcal{D} .

Le second terme de l'Eq. 5.2 est appelé *interception* (Fig. 5.2b)) et intervient pour des aérosols de diamètres compris entre 0.01 and $2 \mu m$. Ce domaine de diamètres correspond aux aérosols les moins lessivés par impaction, et est habituellement repéré par le nom du scientifique qui l'a mis en évidence : cette zone est appelée le "Greenfield gap". L'efficacité de capture par impaction étant moindre dans cette zone, les aérosols de cette gamme restent disponibles pour l'initiation de gouttelettes d'eau nuageuse *par nucléation*. L'interception intervient lorsque les aérosols suivants les lignes de courant, dessinées par l'écoulement créé autour de la goutte, sont littéralement "interceptés" par la goutte, en raison de leurs tailles ; pour un aérosol sphérique comme le sont les CCN interstitiels, si la ligne de courant suivie par le centre de cet aérosol passe à une distance de la goutte inférieure au rayon de l'aérosol, alors la particule est interceptée par la goutte.

Le troisième mécanisme est désignée par l'expression : *impaction inertielle* (Fig. 5.2c)). Il apparaît quand les particules d'aérosol sont déviées de leurs trajectoires (i.e. les lignes de courant formées dans le sillage de la goutte), en raison de leur inertie trop importante ($d_a > 2 \mu m$). Ainsi, au voisinage de la goutte, les aérosols s'extraient des lignes de courant, et entre en collision avec elle. Dans ce cas, plus l'aérosol considéré aura une masse importante, moins il sera capable de suivre la forte courbure des lignes de courants au voisinage de la goutte. Ce terme n'existe que si la condition $St > St^*$ est vérifiée dans l'Eq. 5.2 [Feng, 2007].

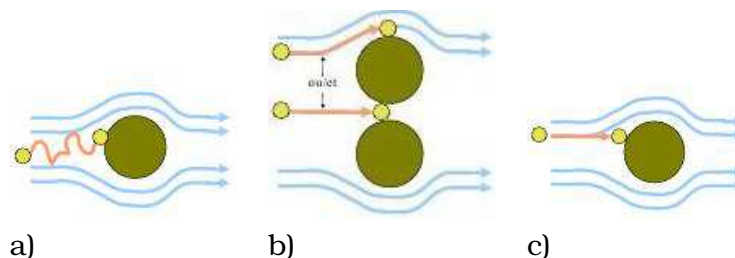


Fig. 5.2 – Principaux mécanisme de capture intervenant dans le lessivage par impaction : a) Diffusion brownienne, b) Interception et c) Impaction inertielle.

Ces trois régimes sont visibles sur la Fig. 5.1 présentée plus haut, sur laquelle il apparaît clairement que ces différents mécanismes modulent l'efficacité de collec-

tion : les particules de grandes tailles ($d_a > 2\mu m$) sont très efficacement lessivées, celles de petites tailles $d_a < 0.01\mu m$ un peu moins et celles appartenant au "Greenfield gap" très peu.

Le coefficient de lessivage $\Lambda(d_a)$ est alors défini comme le nombre de collisions ayant lieu, à l'intérieur des volumes de chute, entre un CCN interstitiel de diamètre d_a et des gouttes de pluie de diamètres compris entre $[D_g, D_g+dD_g]$; il résulte de l'intégration, le long du volume de chute, de l'efficacité de collection $E(D_g, d_a)$ sur la distribution des gouttes :

$$\Lambda(d_a) = \int_0^\infty \frac{\pi}{4} (D_g + d_a)^2 [U_g(D_g) - u_a(d_a)] E(D_g, d_a) n_g(D_g) dD_g \quad (5.4)$$

On simplifie l'Eq. 5.4, ainsi que l'expression du nombre de Stokes (Eq. 5.3), en considérant que les vitesses de chute des gouttes de pluie sont largement supérieures à celles des CCN interstitiels ($U_g(D_g) \gg u_a(d_a)$). Par ailleurs, une seconde approximation est opérée en considérant que $(D_g + d_a)^2 \approx D_g^2$, ce qui modifie l'expression du volume de collision (volume par unité de temps).

L'expression du coefficient de lessivage devient alors :

$$\Lambda(d_a) = \int_0^\infty d\Lambda = \int_0^\infty \frac{\pi}{4} D_g^2 U_g(D_g) E(D_g, d_a) n_g(D_g) dD_g \quad (5.5)$$

5.1.2 Intégration par les méthodes de Gauss

Dans les études antérieures, plusieurs méthodes ont été envisagées pour intégrer le coefficient de lessivage (par impaction) des aérosols de diamètres d_a ($\Lambda(d_a)$), sur la distribution *infinie* des gouttes (Eq. 5.5). La méthode développée dans Loosmore and Cederwall [2004] et Tost et al. [2006], vise à assimiler cette distribution, polydispersée et infinie, des gouttes, à une distribution monodispersée : les auteurs utilisent un diamètre empirique qu'ils définissent comme le diamètre "représentatif" de la distribution. Une autre méthode est employée par Andronache [2003] et Feng [2007] qui, eux, tiennent compte de la nature spectrale de la distribution des gouttes, et réalisent l'intégration jusqu'à une valeur *finie* du diamètre des gouttes, qu'ils choisissent si importante qu'ils la considèrent assimilable à une valeur ∞ .

Dans ce module, afin d'intégrer l'Eq. 5.5 sur le domaine $[0, +\infty[$ le plus précisément possible (sans avoir recours ni à un diamètre "représentatif" ni à l'évaluation d'un diamètre maximal), nous avons eu recours à une méthode de quadrature.

Deux variantes de cette méthode de quadrature, dite de "Gauss", sont utilisées successivement afin d'intégrer le coefficient de lessivage décrit par l'Eq. 5.5 sur la distribution des gouttes, puis d'exprimer un taux de lessivage total pour la population d'aérosol considérée (Eq. 5.1).

Comme l'évaluation de la fonction $d\Lambda$ pour une infinité de points est impossible, une intégration numérique optimisée a été utilisée dans cette étude, qui consiste à remplacer l'intégrale indéfinie de l'Eq. 5.5, par une somme discrète sur un nombre fini de points :

$$I = \int_a^b n(x)f(x)dx \Rightarrow I_N = \sum_{i=1}^N w_i f(x_i) \text{ avec } \lim_{n \rightarrow \infty} I_N = I \quad (5.6)$$

Ici, l'intégrale I de la fonction considérée ($f(x)$) est remplacée par une somme discrète sur N points. La fonction de distribution $n(x)$ (ici les distributions des particules) joue le rôle de la fonction de poids pour la fonction à intégrer $f(x)$. Ainsi $f(x_i)$ est discrétisée sur les abscisses x_i auxquelles sont associés des coefficients de pondération w_i . Une méthode similaire sera détaillée plus bas pour intégrer l'Eq. 5.1.

Les méthodes de Gauss s'appuient sur la construction des polynômes orthogonaux de degré N associés à une fonction de poids $W(x)$:

$$\int_a^b W(x)f(x)dx = \sum_{i=1}^N w_i f(x_i) \quad (5.7)$$

La fonction de poids permettant de déterminer les coefficients de pondération w_i est strictement positive sur l'intervalle de définition de l'intégrale (ici $[0, +\infty[$).

Ces méthodes de Gauss se distinguent des autres méthodes d'intégration numérique parce qu'elles permettent une sommation sur des abscisses (x_i) non régulièrement espacées.

Pour les méthodes utilisant des abscisses régulièrement espacées (regroupées sous la dénomination "méthodes de Côtes"), les coefficients à déterminer sont les poids w_i ; ce type de méthodes autorise, pour une intégration discrète sur N points, l'obtention d'une évaluation exacte de l'intégrale jusqu'à un polynôme de degré $N-1$ si N est pair, et N si N est impair.

Les méthodes de Gauss diffèrent des précédentes, en cela qu'elles considèrent, à la fois les abscisses et les poids, comme des inconnues. Ainsi la formule d'intégration de Gauss à N points devient *exacte* jusqu'à des polynômes de degré $2N - 1$, ce qui augmente la précision de l'évaluation sans qu'il soit nécessaire d'augmenter le nombre de points.

Une fois développée, l'Eq. 5.5 s'écrit comme :

$$\Lambda(d_a) = \frac{\pi}{4} a D_g^b \underbrace{\left(\frac{\rho_{a0}}{\rho_a}\right)^{0.4}}_{U_g(D_g)} \int_0^\infty D_g^2 \underbrace{\frac{N_g \alpha}{\Gamma(\nu)} \lambda_g^{\alpha\nu} D_g^{\alpha\nu-1} \exp(-\lambda_g D_g)^\alpha}_{n_g(D_g)} E(D_g, d_a) dD_g \quad (5.8)$$

Après un changement de variable ($x = (\lambda D_g)^\alpha$), l'algorithme de Gauss-Laguerre [Press et al., 1992] est utilisé pour résoudre l'Eq. 5.5 ; cet algorithme est basé sur le polynôme suivant :

$$\int_0^\infty x^\beta \exp(-x) f(x) dx \simeq \sum_{i=1}^n w_i f(x_i) \quad (5.9)$$

Dans l'Eq. 5.5, la distribution en taille des gouttes $n_g(D_g)$ prend ici le rôle de la fonction de poids $W(x) = x^\beta \exp(-x)$ (Eq. 5.7), afin de discrétiser le produit du coefficient de collision $E(D_g, d_a)$ par le volume de collision V .

Enfin, ce coefficient de lessivage $\Lambda(d_a)$ est intégré à son tour, sur la distribution des CCN interstitiels, mode par mode (i), pour déterminer le taux de lessivage total subi par la population d'aérosols considérée :

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial N_a}{\partial t} \right|_{BCS} &= - \int_0^\infty \Lambda(d_a) \overbrace{\sum_{i=1}^l \frac{N_{ai}}{\sqrt{2\pi d_a \ln \sigma_{ai}}} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_{ai})}{\sqrt{2 \ln \sigma_{ai}}}\right)^2}}^{n_a(d_a)} dd_a \\ &= \sum_{i=1}^l \left[\left. \frac{\partial N_{ai}}{\partial t} \right|_{BCS} \right] \\ &= - \sum_{i=1}^l \left[\int_0^\infty \Lambda(d_a) n_{ai}(d_a) dd_a \right] \end{aligned} \quad (5.10)$$

Là encore, on réalise un changement de variable ($x = \frac{\ln(d_a/\bar{d}_{ai})}{\sqrt{2 \ln \sigma_{ai}}}$) afin d'évaluer l'Eq. 5.10 via l'algorithme de Gauss-Hermitte [Press et al., 1992] pour lequel c'est,

cette fois, la distribution en taille des CCN interstitiels $n_a(D_a)$ qui endosse le rôle de la fonction de poids $W(x) = \exp(-x'^2)$:

$$\int_0^{\infty} \exp(-x'^2) f(x') \, dx' \simeq \sum_{i=1}^n w'_i f(x'_i).$$

5.1.3 Taux de lessivage en masse

Les mesures de dépôt humide les plus couramment disponibles sont des mesures en masse, au sol. Les précipitations sont récupérées au sol; cela permet d'estimer la composition chimique et la masse des différentes espèces composant les gaz et les particules incorporés aux gouttes précipitantes, au cours d'un événement nuageux. Connaissant la durée de l'évènement précipitant et son intensité, on parvient ensuite à déduire un flux d'espèces chimiques. Au regard de la stabilité de ces espèces sous forme gazeuse ou solide, on peut ensuite estimer une composition et une masse moyenne pour l'aérosol lessivé.

Ainsi, afin de pouvoir confronter les quantités d'aérosols lessivées par impaction avec des observations, un taux de lessivage en masse est calculé dans ce module; ce taux en masse d'aérosols capturés par les gouttes, est estimé au niveau du sol. Une unique variable pronostique est dédiée à la masse additionnée de tous les modes i d'aérosols (CCN et IN) lessivés.

Afin d'estimer ce taux en masse, une équation-bilan de la masse d'aérosol lessivée est introduite. Trois termes interviennent dans ce bilan au sol : un terme de source dû à l'apport de masse lessivée par impaction avec les gouttes (re-péré par l'indice "source"), un terme d'advection de cette masse d'aérosol lessivée ("advection") et la sédimentation des gouttes (car la masse lessivée est prisonnière des gouttes et, donc, sédimente à la vitesse de chute des gouttes) ("sédimentation").

$$\frac{\partial m_{\text{lessivée}}}{\partial t} = \left. \frac{\partial m_{\text{lessivée}}}{\partial t} \right|_{\text{transport}} + \left. \frac{\partial m_{\text{lessivée}}}{\partial t} \right|_{\text{source}} + \left. \frac{\partial m_{\text{lessivée}}}{\partial t} \right|_{\text{sédimentation}}$$

La masse d'aérosols lessivés est estimée à partir du coefficient de lessivage calculé plus haut (Eq. 5.5), et en faisant l'hypothèse que les aérosols considérés sont sphériques et de densité invariante. De la même façon que précédemment, le taux en masse d'aérosols lessivés par la pluie est évalué en utilisant l'algorithme de

Gauss-Hermite :

$$\left. \frac{\partial m_{\text{lessivée}}}{\partial t} \right|_{\text{source}} = \frac{\pi}{6} \rho_a \int_0^\infty d_a^3 \Lambda(d_a) n_a(d_a) \mathrm{d}d_a$$

Le taux en masse de particules lessivées qui sédimentent à la vitesse de chute des gouttes, est considéré comme étant proportionnel au taux de sédimentation du rapport de mélange des gouttes de pluie q_r :

$$\frac{1}{m_{\text{lessivée}}} \left. \frac{\partial m_{\text{lessivée}}}{\partial t} \right|_{\text{sédimentation}} = \frac{1}{q_r} \left. \frac{\partial q_r}{\partial t} \right|_{\text{sédimentation}},$$

5.2 Lessivage des IN

Le module de lessivage présenté dans la section précédente pour les aérosols initiant la microphysique chaude du nuage (CCN interstitiels), a été étendu à la microphysique froide (i.e. aux aérosols interstitiels capables de déclencher la formation des cristaux de glace). On décrit ici l'adaptation de la paramétrisation de Slinn [1983] à la déplétion, par la pluie, des aérosols insolubles. Comme évoqué dans la section précédente, le lessivage par impaction est un phénomène très non linéaire, fonction de la taille des particules impliquées dans la collision ; il devient assez important lorsque les particules d'aérosols ont des diamètres supérieurs à $2\mu m$. Au regard des tailles caractéristiques assez élevées de certains des composants des IN, comme le second mode de la distribution des poussières ($d_{a,DM} = 3.0\mu m$), on peut penser que le lessivage par impaction de ces potentiels IN est un terme important de leur équation de continuité.

On procède de façon analogue au lessivage par impaction des CCN interstitiels. La paramétrisation de Slinn [1983] est appliquée à l'identique. La seule différence notable est, qu'au lieu d'intégrer le coefficient de lessivage $\Lambda(d_a)$, mode après mode, sur la distribution totale des CCN (cf Eq. 5.10), il est, en plus, ici, successivement intégré sur les différentes espèces composants l'IN :

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial N_{IN}}{\partial t} \right|_{BCS} &= \sum_{i=1}^l \sum_X \left[\left. \frac{\partial N_{IN,i,X}}{\partial t} \right|_{BCS} \right] \\ &= - \sum_{i=1}^l \sum_X \left[\int_0^\infty \Lambda(d_a) n_{IN,i,X}(d_a) \mathrm{d}d_a \right] \end{aligned} \quad (5.11)$$

Chapitre 6

Activation d'une distribution polydispersée de CCN

Sommaire

6.1 Loi de Twomey étendue	86
6.1.1 Traitement simultané de plusieurs modes	87
6.1.2 Paramètres du spectre d'activation	88
6.2 Equation d'évolution de la sursaturation	90
6.3 Détermination du maximum de sursaturation	92

Le schéma pour la partie chaude WAMA a été élaboré afin de réviser le processus d'activation des CCN préexistant dans le schéma C2R2 ; il reprend le traitement de tous les autres processus microphysiques décrits dans Cohard and Pinty [2000]. L'activation des CCN a été révisée afin de considérer l'activation simultanée de plusieurs modes de CCN, où chacun de ces modes a une efficacité de nucléation propre.

6.1 Loi de Twomey étendue

Afin d'estimer la quantité de CCN activés dans une atmosphère donnée, il est nécessaire de calculer la valeur maximale que peut prendre la sursaturation par rapport à l'eau dans cette atmosphère (cf section 2.2.1 b -). Cette valeur maximale détermine le rayon critique d'activation, i.e. le rayon au-delà duquel les CCN sont considérés activés. L'approche développée par Twomey [1959]; Twomey and Wojciechowski [1969] consiste à supposer que la forme du spectre d'activation des CCN obéit à une loi puissance ($N_{\text{CCN}} = C S_{v/e}^k$), afin de pouvoir l'intégrer et de pouvoir plus facilement en extraire la valeur de la sursaturation maximale. Le problème de la formulation de Twomey [1959] est de supposer un spectre d'activation non borné. Pour remédier à cela, Cohard et al. [1998] ont repris la loi classique de Twomey [1959] en y introduisant une fonction hypergéométrique, qui permet de limiter le spectre d'activation au nombre total de CCN interstitiels disponibles dans l'atmosphère.

À l'image du schéma d'activation exposé dans Cohard et al. [1998], le processus d'activation s'appuie ici aussi sur la formulation étendue de la loi de Twomey, à savoir :

$$N_{\text{CCN},i} = C_i S_{\text{MAX}}^{k_i} F\left(\mu_i, \frac{k_i}{2}, \frac{k_i}{2} + 1; -\beta_i S_{\text{MAX}}^2\right). \quad (6.1)$$

où $N_{\text{CCN},i}$ est la concentration totale en CCN du mode i , *activables* pour une sursaturation ambiante $S_{v/e}$. C_i , k_i , μ_i et β_i , sont les coefficients du spectre d'activation. Nous verrons plus loin que ces coefficients sont calculés à partir des paramètres physiques de la distribution dimensionnelle des CCN considérés (i.e. N_{ai} , σ_{ai} , \bar{d}_{ai}) et de la fraction massique de matériel insoluble composant l'aérosol (ϵ_{ai}). Les propriétés physico-chimiques du mode de CCN i considéré sont donc prises en compte de façon indirecte, via les paramètres du spectre d'activation. $F = F(k_i, \mu_i, \beta_i, S_{\text{MAX}})$

est la fonction hypergéométrique introduite par Cohard et al. [1998]. L'expression exacte de cette fonction est détaillée en appendice de Cohard et al. [1998].

6.1.1 Traitement simultané de plusieurs modes

De fait, le caractère borné de la formulation étendue du spectre d'activation (Eq. 6.1) autorise le traitement simultané de plusieurs modes de CCN ayant des propriétés de nucléation différentes ; les modes i permettent la superposition de différents types d'aérosols aux propriétés physico-chimiques singulières. Dans cette étude, on assume le principe de superposition, qui permet d'exprimer la concentration en nombre totale de CCN activés comme une somme des spectres d'activation associés à chaque mode i de CCN activés :

$$N_{\text{CCN}} = \sum_{i=1}^l N_{\text{CCN},i}(S_{v/e})$$

où $N_{\text{CCN},i}(S_{v/e})$ est la concentration en CCN du mode i activés à une sursaturation $S_{v/e}$.

La superposition de différents modes de CCN est indispensable pour traiter l'aérosol atmosphérique, qui, comme nous l'avons vu en 2.1, est constitué de plusieurs modes (noyaux d'aïtken, mode d'accumulation et mode grossier). Par ailleurs, cette possibilité de simuler simultanément plusieurs modes (le nombre n'est pas limité) est nécessaire si l'on souhaite simuler des cas de nuages pollués par des panaches d'aérosols anthropogéniques ou biogéniques (e.g. les "ship-tracks" [Eyring et al., 2009] ou les "Atmospheric Brown Clouds" [Ramanathan et al., 2008] sont des panaches uniquement composés de particules d'aérosols) ; dans ce type d'évènements les nuages sont formés à partir d'une population d'aérosols dite "de fond" à laquelle se superpose une seconde population d'aérosols, celle apportée par le panache. La Fig. 6.1 schématise cette superposition au travers de deux populations représentant, en rouge, la population d'aérosols de fond et, en vert, celle issue du panache de pollution ; la droite noire, en pointillés, illustre la loi classique de Twomey, qui n'est pas bornée par une concentration maximale de CCN activables.

La représentation des CCN employée dans ce schéma microphysique (au moyen de distributions log-normales), est détaillée dans la section 4.2 ; on rappelle ici, que c'est parce que les concentrations en CCN (interstitiels et activés) ont été assimilées à des champs 3D pronostiques, que l'on est en mesure de superposer simulta-

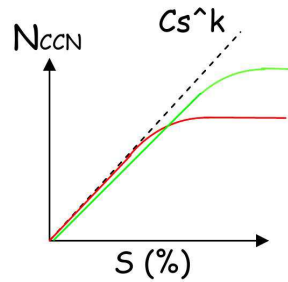


FIG. 6.1 – Schématisation d'un spectre d'activation non borné $N_{\text{CCN}} = C S_{v/e}^k$ suivant une loi classique de Twomey [Twomey, 1959], en pointillés noirs, et, de la superposition de deux spectres de forme $N_{\text{CCN}} = C S_{v/e}^k \cdot F$, suivant une loi de Twomey étendue [Cohard et al., 1998], en rouge et vert.

nément plusieurs populations d'aérosols spatialement inhomogènes et de simuler localement leurs effets respectifs sur le développement du système nuageux.

L'expression "population multimodale" d'aérosols employée tout au long de ce chapitre, désigne tout autant une distribution log-normale de CCN avec i modes, que deux (ou plus) distributions superposées : pour reprendre l'exemple précédent, une population de fond servant de base à la formation d'un nuage, et une autre appartenant à un panache de pollution. Techniquement on ne distingue que des *modes* de CCN; chacun de ces modes est paramétré par le biais d'une loi log-normale (cf section 4.2). L'effet du processus d'activation sur une distribution, i.e. sur le regroupement d'un nombre arbitraire de ces modes, peut être quantifié simplement à partir de calculs opérés indépendamment sur les différents modes.

Cela étant, l'extension du schéma d'activation de Cohard and Pinty [2000] à une population multimodale de CCN, complexifie notablement la détermination du maximum de sursaturation S_{MAX} , nécessaire au calcul de la concentration en CCN activés.

6.1.2 Paramètres du spectre d'activation

Les paramètres du spectre d'activation du mode i des CCN (C_i , k_i , μ_i , β_i et la fonction F) dépendent des propriétés de l'aérosol considéré et peuvent être estimés à partir des paramètres de son spectre dimensionnel, d_{ai}^m et σ_{ai} , et de la fraction massique de matériel insoluble le composant ϵ_{ai} . Pour le cas d'un aérosol de type continental ou maritime (i.e. soit composé de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ soit de NaCl), Cohard et al. [2000] ont exprimé les coefficients du spectre d'activation comme :

$$\begin{aligned}
 k_i &= k_0 \left(\frac{\ln \sigma_{ai}}{\ln \sigma_0} \right)^{\alpha_k^\sigma} \\
 \beta_i &= \beta_0 \left(\frac{r_{ai}^m}{r_0} \right)^{\alpha_\beta^r} \exp \left[\alpha_\beta^\sigma \left(\frac{\ln \sigma_{ai}}{\ln \sigma_0} - 1 \right) \right] \left[\frac{\epsilon_{ai}}{\epsilon_{m0}} \right]^{\alpha_\beta^{\epsilon_m}} \left[\frac{T}{T_0} \right]^{\alpha_\beta^T} \\
 \mu_i &= \mu_0 \left(\frac{\ln \sigma_{ai}}{\ln \sigma_0} \right)^{\alpha_\mu^\sigma}
 \end{aligned}$$

Dans cette étude, nous avons utilisé les valeurs des coefficients $\ln \sigma_0$, r_0 , ϵ_{m0} et T_0 , présentées dans le tableau 1 de Cohard et al. [2000], pour les deux catégories de CCN, continentale ou maritime. Les valeurs des paramètres k_0 , μ_0 et β_0 sont renseignées par le tableau 2 du même article. Enfin, les valeurs des coefficients α_i^j utiles à la détermination de l'expression des paramètres k_i , μ_i et β_i en fonction des paramètres de la distributions (r_{ai}^m , σ_i , ϵ_{ai}) pour ces deux catégories de CCN interstitiels, sont celles données par le tableau 3 de Cohard et al. [2000]. La figure 6.2 montre la sensibilité d'un spectre d'activation à différents k_i , μ_i et β_i .

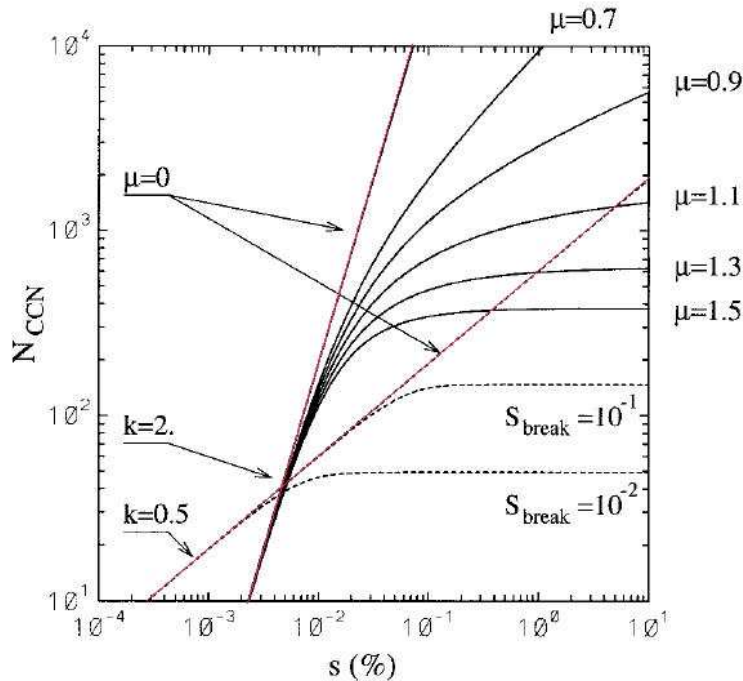


FIG. 6.2 – Sensibilité du spectre d'activation (Eq. 6.1) aux paramètres C_i , k_i , μ_i et β_i . Les courbes noires illustrent différentes valeurs de μ_i , de 0.7 à 1.5, pour $k_i = 2$ et $s_{break} = \beta_i^{-2} = 10^{-1}$. Les courbes en pointillés illustrent deux valeurs de $s_{break} = \beta_i^{-2}$ (10^{-1} et 10^{-2}) pour $k_i = 0.5$ et $\mu_i = 2$. Les deux courbes rouges ($\mu_i \equiv 0$) représentent la loi classique Cs^k pour $k_i = 2$ et $k_i = 0.5$. Source : Cohard et al. [1998].

Le paramètre $C_i = C_i(x, y, z)$ est, lui, calculé en s'appuyant sur le comportement asymptotique de la fonction hypergéométrique F quand $S_{v/e} \rightarrow \infty$ (en respectant toujours $k_i \leq 2\mu_i$). L'équation suivante permet de reconstituer le champ $C_i(x, y, z)$ à partir de la concentration totale en CCN *interstitiels* + *activés* [Cohard et al., 2000] :

$$\begin{aligned}
 \lim_{S_{v/e} \rightarrow \infty} N_{CCN,i} &= \lim_{S_{v/e} \rightarrow \infty} C_i S_{MAX}^{k_i} F\left(\mu_i, \frac{k_i}{2}, \frac{k_i}{2} + 1; -\beta_i S_{MAX}^2\right) & (6.2) \\
 &= C_i(x, y, z) * \frac{\Gamma(\frac{k_i}{2} + 1)\Gamma(\mu_i - \frac{k_i}{2})}{\beta_i^{\frac{k_i}{2}} \Gamma(\mu_i)} \\
 &= N_{CCN,i}(t) + N_{ai}(t)
 \end{aligned}$$

On considère que, quand la sursaturation tend vers l'infini, la quantité maximale de CCN qui pourront être activés, est la concentration totale en CCN disponible dans le nuage, i.e. la concentration initiale en CCN *interstitiels*. Au cours du temps des CCN sont activés, et une partie de la concentration initiale en CCN *interstitiels* est transférée dans le réservoir des CCN *activés*.

Cela étant, dans cette étude, on fait l'hypothèse que le spectre d'activation de chaque mode i de CCN, est conservé au cours de la trajectoire lagrangienne de la parcelle d'air. Cela signifie que, pour chaque mode i de CCN, la somme des deux réservoirs (CCN *interstitiels* et CCN *activés*) est conservée au cours du temps. Le caractère borné du spectre d'activation (Eq. 6.1) permet donc d'égaliser $\lim_{s \rightarrow \infty} N_{CCN,i}$ à la concentration totale en CCN (interstitiels et activés) contenue par le nuage au temps t .

Pour un aérosol dont la composition chimique ne varie pas avec la taille, on peut exprimer $n_{ai}(d_a)$ dans l'espace des sursaturations. La distribution en sursaturation critique $n_{ai}(S_{crit})$ utilisée dans ce schéma est inspirée de celle de Twomey [1959]. Cohard et al. [1998] l'ont modifiée afin de modéliser un spectre d'activation plus réaliste, qui, dans ce schéma, a été étendu à plusieurs modes i . Elle s'écrit comme :

$$n_{ai}(S_{crit}) = \frac{dN_{ai}}{dS_{crit}} = k_i C_i S_{crit}^{k_i-1} (1 + \beta_i S_{crit}^2)^{-\mu_i} \quad (6.3)$$

6.2 Equation d'évolution de la sursaturation

Dans une parcelle d'air, la croissance des gouttelettes par condensation de vapeur participe aux variations d'humidité relative, et donc de sursaturation $S_{v/e}$. Trois termes suffisent à la description de l'évolution temporelle de la sursatura-

6.2 Equation d'évolution de la sursaturation

tion : l'apport d'humidité par l'ascendance convective (1), le puits de vapeur d'eau que constitue la croissance des gouttelettes par condensation de vapeur (2), et le taux de refroidissement (3) (radiatif, par exemple, dans le cas du brouillard) :

$$\frac{dS_{v/e}}{dt} = \underbrace{\psi_1 \omega}_{(1)} - \underbrace{\psi_2 \frac{dq_c}{dt}}_{(2)} \left(+ \underbrace{\psi_3 \frac{dT}{dt}}_{(3)} \right) \quad (6.4)$$

où $\psi_1 = \psi_1(T, P)$, $\psi_2 = \psi_2(T, P)$, $\psi_3 = \psi_3(T, P)$ sont des facteurs fonctions de variables thermodynamiques comme T , la température, et P , la pression ; leurs expressions sont données en annexe A. D'après Pruppacher and Klett [1997], si on exprime le taux de croissance des gouttelettes de diamètre D_c sous la forme :

$$D_c \frac{dD_c}{dt} = 4G(D_c, T, P)[S_{v/e} - y(D_c, T)]$$

où l'expression de $G(D_c, T, P)$ est donnée en annexe A et $y(D_c, T)$ est une fonction qui exprime les contributions des effets de courbures et de solubilité (cf 2.2.1 a -) dans des conditions d'équilibre entre la pression de vapeur et une gouttelette. Son expression détaillée est donnée au chapitre 13 du livre de Pruppacher and Klett [1997].

Alors, le taux de variation temporelle du rapport de mélange de l'eau nuageuse q_c peut être estimé comme :

$$\frac{dq_c}{dt} \simeq 2\pi \frac{\rho_{eau}}{\rho_{air}} (2G(D_c, T, P))^{3/2} S_{v/e} \int_0^{S_{v/e}} n_{ai}(S'_{crit}) \underbrace{\left[\int_{\tau(S'_{crit})}^t S_{crit} dt \right]^{1/2}}_1 dS'_{crit} \quad (6.5)$$

Comme l'explique Cohard et al. [1998], la variation temporelle de ce rapport de mélange ne peut pas être déterminée analytiquement, car son expression dépend de l'intégrale temporelle de la sursaturation. Twomey [1959] propose une limite inférieure à cette intégrale de la sursaturation au cours du temps (terme 1 de l'Eq. 6.5) :

$$\int_{\tau(S'_{crit})}^t S_{crit} dt > \frac{S_{v/e}^2 - S'_{crit}{}^2}{2\psi_1 \omega},$$

qui permet de borner le taux de variation du rapport de mélange de l'eau nuageuse :

$$\frac{dq_c}{dt} > 4\pi \frac{\rho_{eau}}{\rho_{air}} \frac{(G(D_c, T, P))^{3/2}}{(\psi_1 \omega)^{1/2}} S_{v/e} \int_0^{S_{v/e}} n_{ai}(S'_{crit}) (S_{v/e}^2 - S'_{crit}{}^2) dS'_{crit} \quad (6.6)$$

Et en reprenant l'expression du spectre d'activation donnée à l'Eq. 6.3, on peut exprimer la concentration en CCN (du mode i) activés entre les sursaturations S_{crit} et $S_{crit} + dS_{crit}$ comme :

$$\int_0^{S_{v/e}} n_{ai}(S_{crit}) dS_{crit} = \int_0^{S_{v/e}} k_i C_i S_{crit}^{k_i-1} (1 + \beta_i S_{crit}^2)^{-\mu_i} dS_{crit} = N_{CCN,i}(S_{crit})$$

Ce qui, après implantation dans l'Eq. 6.6, permet de l'intégrer en effectuant un changement de variable ($x = S'_{crit}/S_{v/e}$) et d'aboutir à l'expression suivante :

$$\frac{dq_c}{dt} > 2\pi \frac{\rho_{eau}}{\rho_{air}} \frac{G^{3/2}}{(\psi_1 \omega)^{1/2}} k_i C_i S_{v/e}^{k_i+2} B\left(\frac{k_i}{2}, \frac{3}{2}\right) F\left(\mu_i, \frac{k_i}{2}, \frac{k_i}{2} + \frac{3}{2}; -\beta_i S_{crit}^2\right)$$

On peut ensuite évaluer $\frac{dS_{v/e}}{dt} = 0$ (Eq. 6.4), afin de déterminer la racine de la sursaturation maximale S_{MAX} , nécessaire au calcul de la concentration en CCN potentiellement activables par l'Eq. 6.1. Ainsi si l'on substitue la limite inférieure obtenue pour l'évolution du rapport de mélange de l'eau nuageuse ($\frac{dq_c}{dt}$) dans l'Eq. 6.4, on obtient :

$$\sum_{i=1}^l S_{MAX}^{k_i+2} k_i C_i B\left(\frac{k_i}{2}, \frac{3}{2}\right) F\left(\mu_i, \frac{k_i}{2}, \frac{k_i}{2} + \frac{3}{2}; -\beta_i S_{MAX}^2\right) = \frac{(\psi_1 \omega + \psi_3 \frac{dT}{dt})^{\frac{3}{2}} \rho_a}{2\pi \rho_w (G)^{\frac{3}{2}} \psi_2} \quad (6.7)$$

Comme le montre cette équation la fonction hypergéométrique F dépend des propriétés physico-chimiques de la population d'aérosol considérée, via le numéro du mode i (son expression détaillée est donnée en appendice de Cohard et al. [1998]). B est la fonction Bêta.

6.3 Détermination du maximum de sursaturation

La méthode de Ridder [Press et al., 1992] est utilisée pour déterminer la racine de sursaturation maximale S_{MAX} , solution de l'Eq. 6.7. C'est une variante de la "méthode de la position fausse", mais pour laquelle l'interpolation linéaire est remplacée par une interpolation exponentielle.

Cette méthode consiste à rechercher la racine de l'Eq. 6.7 en réduisant, à chaque itération, l'encadrement initial ; cet encadrement initial est basé sur le théorème de la valeur intermédiaire. Ce théorème stipule que, s'il existe un couple (x_{n-1}, x_n) tel que le produit $f(x_{n-1})f(x_n) < 0$, et, si la fonction f est continue, alors la fonc-

6.3 Détermination du maximum de sursaturation

tion doit s'annuler au moins une fois dans l'intervalle $[x_{n-1}, x_n]$. On évalue la fonction au point milieu $x_m = \frac{x_{n-1} + x_n}{2}$ afin de résoudre l'équation en z suivante : $f(x_{n-1}) - 2f(x_m)z + f(x_n)z^2 = 0$. On détermine la solution z positive, puis on applique la "méthode de la position fausse" à $f(x_{n-1})$, $f(x_m)z$ et $f(x_n)z^2$ pour obtenir une approximation de la racine x' dans l'intervalle $[x_{n-1}, x_n]$:

$$x' = x_m + (x_m - x_{n-1}) \frac{\text{signe}[f(x_{n-1}) - f(x_n)]f(x_m)}{\sqrt{f(x_m^2) - f(x_{n-1})f(x_n)}}$$

Si le produit $f(x_m)f(x')$ est négatif, on réduit l'encadrement de la racine recherchée en se plaçant dans le nouvel intervalle $[x, x']$; sinon on considère alternativement les produits $f(x_{n-1})f(x')$ puis $f(x')f(x_n)$, afin de déterminer lequel est négatif et, par conséquent, quel intervalle peut faire figure d'encadrement ($[x_{n-1}, x']$ ou $[x', x_n]$). On recommence le procédé jusqu'à trouver la racine de l'Eq. 6.7.

La méthode de Ridder converge de manière superlinéaire à la vitesse $\sqrt{2}$; elle a la propriété de ne jamais sortir de l'intervalle d'encadrement lors de la recherche de la racine.

Une fois la racine S_{MAX} déterminée, on peut utiliser l'Eq. 6.1 pour calculer la concentration en CCN *activables* (terme (1) de l'Eq. 6.8 suivante) dans les conditions atmosphériques environnantes. Après quoi, la concentration de CCN du mode i , *activés* au temps courant t , est déduite par différence entre les CCN activables à l'instant t et les CCN de ce même mode *déjà* activés :

$$N_{\text{CCN},i}^t = \text{MAX}\left\{\overbrace{C_i S_{\text{MAX}}^{k_i} F\left(\mu_i, \frac{k_i}{2}, \frac{k_i}{2} + 1; -\beta_i S_{v/e, \text{MAX}}^2\right)}^{(1)} - N_{\text{CCN},i}^{t-\Delta t}, 0\right\} \quad (6.8)$$

Comme nous l'avons évoqué plus haut, le spectre d'activation dépend du paramètre C_i , qui est déterminé à partir de l'expression de la limite donnée par l'Eq. 6.2; cette limite est calculée sur la base d'un spectre d'activation *constant*. Car, bien que les concentrations en CCN *interstitiels* et en CCN *activés* soient des champs pronostiques, l'activation est un processus diagnostique, et c'est la conservation du spectre qui nous permet de le reconstituer à chaque pas de temps, pour en déduire les CCN *activés* à t . On ne peut obtenir la concentration en CCN *activés* au temps t que par différence entre les CCN *activables* à t et les CCN déjà activés à $t - \Delta t$.

Ici, le test qui consiste à limiter la concentration activée à l'instant t à la concentration en CCN interstitiels disponible à t :

$$N_{\text{CCN},i}^t = \text{MIN}\{N_{ai}^t, N_{\text{CCN},i}^t\}$$

est rendu obsolète par l'hypothèse de conservation du spectre d'activation (puisque inclus dedans).

Enfin, le nombre de gouttelettes formées au cours de l'intervalle de temps Δt , est ensuite déduit de la concentration en CCN *activés* au temps t , et de celle *déjà activés* au temps précédent $t - \Delta t$, selon :

$$\Delta N_c = \text{MAX}[N_{\text{CCN},i}^t - N_{\text{CCN},i}^{t-\Delta t}, 0]$$

Chapitre 7

Nucléation hétérogène de la glace

Sommaire

7.1 Représentation de la population multimodale des IN insolubles	96
7.1.1 Composition chimique des IN	97
7.1.2 Mélange externe	98
7.1.3 Mélange interne	99
7.2 La paramétrisation de Phillips et al. [2008]	99
7.3 Adaptation aux IN insolubles	102
7.3.1 Spectre de référence	102
7.3.2 Concentration en IN <i>activables</i>	105
7.3.3 Cristaux formés	109
7.4 Adaptation aux IN enrobés	111
7.4.1 IN <i>enrobés</i> ?	111
7.4.2 Puits des IN <i>enrobés</i>	111
7.4.3 Paramétrisation	112
7.4.4 Cristaux formés	113

Dans ce chapitre, on s'attache à la description d'une partie originale de cette thèse, à savoir la formulation des processus de *nucléation hétérogène de la glace* implantés dans le schéma microphysique MIMA. Bien que MIMA soit aussi composé d'autres mécanismes de formation de la glace (la nucléation homogène et le processus de production secondaire de Hallett-Mossop sont repris en annexe B), ainsi que de processus de croissance des hydrométéores glacés, ceux-ci ne seront pas développés ici, car ils sortent du cadre direct de l'étude des interactions entre aérosols et nuages (une liste des processus intervenant dans MIMA a été faite à la section 3.3).

La paramétrisation de Phillips et al. [2008] a été adaptée dans MésoNH pour l'activation de deux grands groupes de noyaux glaçogènes : les IN entièrement *insolubles* et les IN *enrobés* (i.e. ceux caractérisés par une double capacité nucléante, de CCN puis d'IN). Cette paramétrisation de la nucléation hétérogène de la glace a initialement été formulée pour les modèles globaux. Implanter cette paramétrisation dans un modèle à mésoéchelle comme MésoNH nécessite une *adaptation* puisque, dans ce modèle les processus nuageux sont résolus et les champs liés aux particules de nuages et d'aérosols sont des variables pronostiques. En effet, c'est parce qu'on considère des variables pronostiques aussi bien pour les IN *interstitiels* que pour les IN *activés*, que l'on est en mesure d'estimer le nombre d'IN activés, et donc de cristaux formés par nucléation hétérogène. Et, d'autre part, c'est parce que les concentrations en CCN *activés* sont des variables pronostiques, que cette paramétrisation a pu être adaptée à des IN qui ne soient pas entièrement insolubles, les IN *enrobés*, afin de prédire la quantité de cristaux de glace formés grâce au mécanisme de congélation par immersion.

Ces deux adaptations sont présentées dans la suite de ce chapitre. Elles sont précédées par une description de la représentation de la population des IN *insolubles*, suivie d'une présentation générale de la paramétrisation implantée pour la nucléation hétérogène.

7.1 Représentation de la population multimodale des IN insolubles

Dans cette section, on décrit la représentation utilisée pour les IN *insolubles*, qui peuvent être vus soit en mélange *interne* soit en mélange *externe*, afin d'explicitier les modalités de représentation de ces deux types de mélange. Les IN *enrobés* ne

sont pas évoqués ici puisque ceux-ci sont assimilés à des CCN capables de congeler les gouttelettes par immersion.

7.1.1 Composition chimique des IN

Les noyaux glaçogènes *interstitiels* sont décrits soit en mélange *interne* soit en mélange *externe*. Ces IN peuvent être composés de trois types d'espèces :

1. le premier groupe, appelé "DM" (pour "Dust/Metallic" en anglais), inclut les poussières résultants de l'érosion des surfaces, les composés carbonés et métalliques,
2. le second, repéré par l'acronyme anglais "BC" (pour "Black Carbon"), regroupe les suies (i.e. le carbone élémentaire ou inorganique),
3. et le dernier, le groupe "O" (pour "Organics"), représente les particules organiques insolubles (bactéries, pollens, débris de feuilles...). La représentation des IN choisie ici s'appuie sur celle présentée dans Phillips et al. [2008]. L'étude de Jaenicke [2005] montre des concentrations en aérosols pour deux stations de mesures différentes (l'une à Mainz en Allemagne, et l'autre au lac Baïkal en Russie); les pourcentages de particules cellulaires (ou biogéniques, i.e. contenant des protéines) mesurées ne dépassent pas 10 % de la concentration totale des aérosols de diamètres supérieurs à $2\mu m$. Phillips et al. [2008] conclut que, seule une faible proportion des bactéries ont les caractéristiques requises pour nucléer la glace; que les pollens et les fragments de plantes ont ces capacités nucléantes, mais que leurs tailles trop importantes, leurs interdisent de trop longs séjours dans l'atmosphère, et que, les capacités nucléantes de fragments plus petits n'ont pas été examinées à ce jour. Ainsi, le groupe "O" est-il contraint par les observations disponibles pour la bactérie référencée par l'acronyme anglais "INA" (pour "Ice-Nucleation Active"), et par des analyses de matériaux résiduels des cristaux de glace. Ce choix est le résultat des très insuffisantes observations dont on dispose à ce jour, sur l'aérosol organique.

À chacun de ces trois groupes d'espèces X (DM, BC ou O) composant les IN d'un mode (repéré par l'indice i), sont associés les paramètres d'une distribution log-normale (diamètres médians $d_{a,X}^m$, écarts types σ_X), ainsi que leur densités ρ_X . Le tableau 7.1 résume les propriétés des distributions des espèces X , synthétisées à partir de différentes études par Phillips et al. [2008].

Variable	Valeur	Description
d_{a,DM_1}	0.8 μm	Diamètre médian du mode 1 de la distribution DM
d_{a,DM_2}	3.0 μm	idem pour le mode 2 de la distribution DM
$d_{a,BC}$	0.2 μm	idem pour la distribution BC
$d_{a,O}$	0.2 μm	idem pour la distribution O
ρ_{DM_1}	2300 kg m^{-3}	Densité associée au mode 1 de la distribution DM
ρ_{DM_2}	2300 kg m^{-3}	idem pour le mode 2 de la distribution DM
ρ_{BC}	1860 kg m^{-3}	idem pour la distribution BC
ρ_O	1500 kg m^{-3}	idem pour la distribution O
σ_{DM_1}	1.9	Déviatoin standart associée au mode 1 de la distribution DM
σ_{DM_2}	1.6	idem pour le mode 2 de la distribution DM
σ_{BC}	1.6	idem pour la distribution BC
σ_O	1.6	idem pour la distribution O

TAB. 7.1 – Paramètres de distributions des lois log-normales des espèces X composant les IN (la distribution DM est bimodale, BC et O sont monomodales).

L'initialisation de la concentration en nombre de la distribution des IN dépend du type de mélange sélectionné.

7.1.2 Mélange externe

Si on considère des IN en mélange externe, alors chaque mode i composant la population des IN est associé à un mode pur de DM, BC ou O ; la population des IN est ainsi décrite comme une somme de distributions log-normales, représentant chacune un mode pur d'IN, et ayant les propriétés (\bar{d}_X , σ_X et ρ_X) du composé X . Pour les IN interstitiels en mélange externe, les paramètres globaux de chaque mode i de la distribution des IN, sont confondus avec les paramètres de distributions de l'espèce X composant l'IN interstitiel (\bar{d}_X , σ_X et ρ_X).

$$dN_{int} = \sum_{i=1}^L \sum_{X=1}^{\mathbf{1}} n_{int,i,X}(d_a) dd_a = \sum_{i=X=1}^L \frac{N_{int,i}}{\sqrt{2\pi} d_a \ln \sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X}\right)^2} dd_a \quad (7.1)$$

où L est le nombre de modes de la distribution et i son indice. X est l'indice du matériau composant l'IN (pour un mélange externe, X peut aller, de façon courante, jusqu'à 4, avec deux modes purs de DM (un mode moyen et un mode grossier), un uniquement composé de BC et un mode O) ; d_a correspond au diamètre de la

particule d'aérosol, $N_{int,i}$, est la concentration en nombre des IN interstitiels, du mode pur i . La largeur à mi-hauteur de la distribution log-normale de l'espèce X des IN du mode i (σ_X), et, son diamètre médian (\bar{d}_X) ne dépendent que de l'espèce X . Pour un mélange externe, une concentration en nombre par mode doit être initialisée.

7.1.3 Mélange interne

De façon analogue, si on considère des IN interstitiels en mélange interne, on initialise une concentration totale pour le mode i de la distribution de ces IN ($N_{int,i}$). Différemment du cas précédent, ici, cette concentration d'IN sera pondérée par des fractions α_X (vérifiant $\sum_{X=1}^4 \alpha_X = 1$), qui précisent le pourcentage de chaque groupe X (DM (bimodale), BC ou O), dans la composition de l'IN considéré :

$$dN_{int} = \sum_{i=1}^L \sum_{X=1}^4 n_{int,i,X}(d_a) dd_a = \sum_{i=1}^L \sum_{X=1}^4 \frac{\alpha_X N_{int,i}}{\sqrt{2\pi} d_a \ln \sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X}\right)^2} dd_a \quad (7.2)$$

Contrairement à la description utilisée plus haut pour les IN en mélange externe, ici on ne connaît pas les paramètres globaux de la distribution log-normale de chaque mode i de la population des IN. On connaît uniquement la concentration en nombre du mode i des IN interstitiels ($N_{int,i}$) et les fractions α_X associées à leur composition ; les paramètres des distributions (\bar{d}_X , σ_X et ρ_X) des trois groupes d'espèces X composant l'IN sont connus, et ils sont invariants. Ces cinq variables sont les seuls paramètres requis par les paramétrisations du lessivage par impaction et par nucléation des IN ; ces paramétrisations ne nécessitent pas les paramètres globaux de la distribution.

7.2 La paramétrisation de Phillips et al. [2008]

Dans ce schéma microphysique nous avons adapté la paramétrisation de Phillips et al. [2008].

Sa formulation de la nucléation hétérogène des cristaux de glace primaire se distingue de la plupart des approches énoncées à la section 2.2.2 e -, car elle est construite sur une compilation de données de plusieurs campagnes, afin d'inté-

grer la diversité physico-chimiques des IN atmosphériques. Les différentes données qui ont servi à son élaboration sont principalement des mesures d'aérosol troposphérique au Mont Werner (USA) durant INSPECT-1 (first Ice Nuclei SPECTroscopy study; DeMott et al. [2003a]) et INSPECT-2 [Richardson et al., 2007], et des mesures de poussières sahariennes sur la Floride (USA) durant CRYSTAL-FACE (Cirrus Regional Study of Tropical Anvils and Cirrus Layers–Florida Area Cirrus Experiment; DeMott et al. [2003b]).

Les mesures réalisées à l'aide de la chambre à nuages de l'Université du Colorado (qu'on désigne par l'acronyme anglais CFDC, pour "Continuous Flow Diffusion Chamber"), effectuées entre -40°C et -62°C , et sur un domaine d'humidité relative allant de la saturation par rapport à la glace au déclenchement de la nucléation homogène, ont été intégrées puis *étendues* à un domaine plus large, censé refléter l'ensemble des conditions existantes dans la troposphère : la paramétrisation de la nucléation hétérogène de Phillips et al. [2008] est valide de 0°C à des températures plus froides que -70°C , et sur un domaine de saturation allant de la saturation par rapport à la glace jusqu'à la saturation par rapport à l'eau liquide. Elle constitue une sensible amélioration de la paramétrisation de Meyers et al. [1992], en intégrant à celle-ci une *dépendance aux propriétés de nucléation* des différents types d'IN, et en l'étendant aux conditions thermodynamiques rencontrées dans *toute la troposphère*.

L'hypothèse fondamentale sur laquelle est construite la paramétrisation de Phillips et al. [2008] est que, *pour une espèce donnée* d'IN insolubles, le nombre d'IN actifs est proportionnel à la surface totale de ces particules; cela souscrit à l'hypothèse de singularité, puisque les sites actifs déclencheurs de la nucléation en surface d'un IN (voir section 2.2.2 c -), ont une certaine probabilité d'occurrence par unités de surface d'IN. En théorie, chacun de ces sites est caractérisé par une température de congélation singulière. Via cette paramétrisation, on définit des températures de congélation par *espèce* et par *taille* d'IN ("Dust-Metallic", "Black Carbon" ou "Organics"), car on ne peut évaluer la température de congélation de chacun des sites en surface de chacun des IN. Deux IN de même taille et d'une même espèce (ou s'il est en mélange interne, d'une même composition) auront ici les mêmes propriétés de nucléation. Toutefois, cela ouvre à une grande variabilité de propriétés de nucléation, car si chaque IN d'une espèce et d'une taille donnée a une température de nucléation propre, la température de congélation d'un IN en mélange interne dépendra non seulement de sa taille mais aussi de la fraction relative de tous ses composants (ici au nombre de trois).

En confrontant ses observations de poussières sahariennes au-dessus de l'Europe avec celles compilées par Phillips et al. [2008], Klein et al. [2010] observe qu'il est remarquable que la relation établie par Phillips et al. [2008] persiste pour des données obtenues dans des environnements différents, avec des techniques de mesures différentes. La figure 7.1 trace le rapport du nombre d'IN activés sur la surface totale de poussières (de diamètres équivalents inférieurs à $1 \mu\text{m}$) contenue dans l'appareil de mesure en fonction de la sursaturation par rapport à la glace. Cette figure confronte les mesures de poussières sahariennes en Floride (CRYSTAL-FACE) et d'aérosol troposphérique au Mont Werner à l'est des USA (INSPECT) sur la base desquelles a été élaborée la paramétrisation de Phillips et al. [2008] (symboles noirs et blancs), et, en rose, des poussières sahariennes mesurées en Europe au "kleiner Feldberg". Les mesures de Klein et al. [2010] (symboles roses) attestent la proportionnalité des propriétés de nucléation des IN à la surface totale du type d'aérosol considéré et supporte le fait que la paramétrisation établie par Phillips et al. [2008] est spatialement transposable.

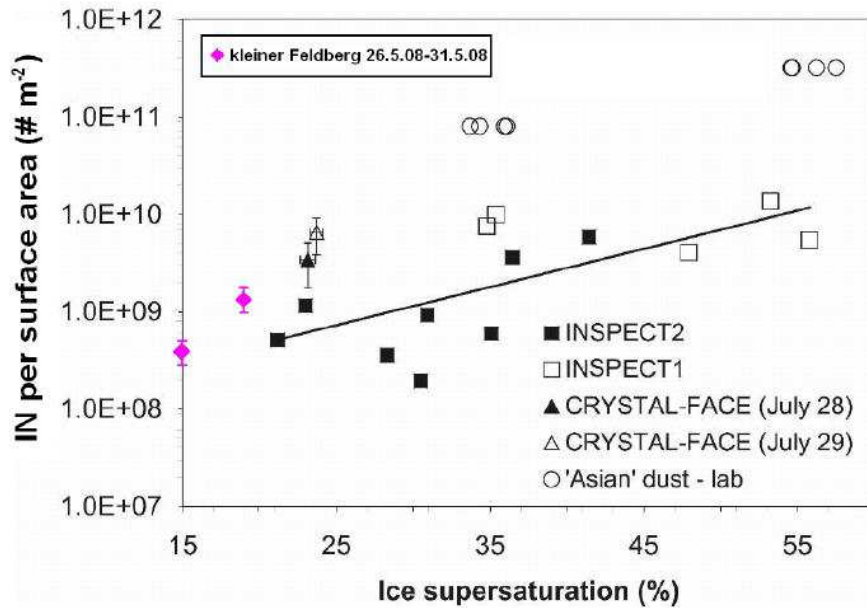


FIG. 7.1 – Rapport du nombre d'IN activés sur la surface totale d'IN de diamètres équivalents inférieurs à $1 \mu\text{m}$, en fonction de la sursaturation par rapport à la glace. Source : Klein et al. [2010].

Cette paramétrisation se présente comme une expression globale de la nucléation hétérogène de la glace. Etant fondée sur des mesures empiriques, cette paramétrisation ne distingue pas les différents modes de nucléation évoqués en 2.2.2 a - (congélation par dépôt de vapeur, condensation et immersion), quand les formulations courantes les paramétrisent séparément.

7.3 Adaptation aux IN insolubles

Phillips et al. [2008] présente sa paramétrisation principale comme étant active pour les modes de congélation par dépôt de vapeur, condensation et immersion ; il propose d'ajouter un terme supplémentaire afin de tenir compte des modes de congélation par contact (conventionnel et "inside-out contact"). Pour les raisons invoquées en section 2.2.2 b - (entre autre à cause de la précarité des descriptions des processus de congélation par contact au regard de leur efficacité par rapport au processus d'immersion), nous avons ici fait le choix de ne pas implanter ce processus dans MIMA pour le moment.

Cette paramétrisation a été adaptée dans MésoNH, en ce sens qu'il nous a fallu modifier la version initialement proposée par Phillips et al. [2008] afin de pouvoir considérer des champs multimodaux et 3D d'IN pronostiques. Par ailleurs, afin de compiler la quantité d'IN *activables*, une intégration non triviale sur les distributions en IN a été mise au point, qui est détaillée en 7.3.2.

7.3.1 Spectre de référence

La première étape de la paramétrisation empirique de Phillips et al. [2008], consiste à prédire un spectre de référence de la concentration moyenne en IN ($N_{IN,1,*}$), en fonction des conditions atmosphériques, à savoir la température T et le rapport à saturation $s_{v/g}$.

Domaines de définition Ce spectre de référence a été établi à partir d'observations réalisées pour des aérosols de diamètre sec inférieur à $1\mu\text{m}$. Ces observations sont fonctions de la température et du rapport à saturation par rapport à la glace, ainsi $N_{IN,1,*} = N_{IN,1,*}(T, s_{v/g})$. Le tableau suivant présente le calcul de ce spectre de référence pour les différents domaines de températures :

Où, dans le tableau 7.2,

- $s_{v/g}(T, q_v)$ est le rapport à saturation de la vapeur d'eau par rapport à la glace,
- $s_{v/g}^e = [P_{v,sat}^e(T)/P_{v,sat}^g(T)]$ est la valeur du rapport $s_{v/g}$ à la saturation par rapport à l'eau : avec $P_{v,sat}^X(T) = \exp(\theta_X - \beta_X/T - \gamma_X \ln(T))$, la pression de vapeur saturante par rapport à la phase $X(T)$,
- $\rho_c \equiv \rho_{air_{CFDC}} = 0.76 \text{ kg m}^{-3}$ est la densité de l'air dans le CFDC pour $P = 500$ mbar,

7.3 Adaptation aux IN insolubles

$1 \leq s_{v/g} \leq s_{v/g}^e$	
$T \leq -35^\circ\text{C}$	$N_{IN,1,*}(T, s_{v/g}) = \frac{c_1 \gamma}{\rho_c} \left[\exp\{12.96(s_{v/g} - 1.1)\} \right]^{0.3}$
$-35^\circ\text{C} \leq T \leq -25^\circ\text{C}$	$N_{IN,1,*}(T, s_{v/g}) = \text{MIN}\{ \bar{N}_{IN,1,*}(T, s_{v/g}), N_{max}(T) \}$ <p style="text-align: center;">avec :</p> $\bar{N}_{IN,1,*}(T, s_{v/g}) = N_2 \left[\frac{N_1}{N_2} \right]^{\delta_1^0(T, -35, -25)}$ $N_{max}(T) = N(T, s_{v/g}^e)$ <p style="text-align: center;">et,</p>
$-35^\circ\text{C} \leq T \leq -30^\circ\text{C}$	$N(T, s_{v/g}) = \frac{c_1 \gamma}{\rho_c} \left[\exp\{12.96(s_{v/g}(T) - 1.1)\} \right]^{0.3}$ $N_1 = \text{MIN}\{ N(T, s_{v/g}), N_{max}(T) \}$
$-30^\circ\text{C} \leq T \leq -25^\circ\text{C}$	$N(T, s_{v/g}) = \Psi c_1 [\exp\{12.96(s_{v/g}(T) - 1) - 0.639\}]$ $N_2 = \text{MIN}\{ N(T, s_{v/g}), N_{max}(T) \}$
$T \geq -25^\circ\text{C}$	$N_{IN,1,*}(T, s_{v/g}) = \Psi c_1 [\exp\{12.96(s_{v/g} - 1) - 0.639\}]$

TAB. 7.2 – Calcul du spectre de référence $N_{IN,1,*}(T, s_{v/g})$ en fonction des conditions atmosphériques (T et $s_{v/e}$). Source : Phillips et al. [2008].

- $\gamma \simeq 2$ un facteur qui permet l'extrapolation des résultats expérimentaux de DeMott et al. [2003a] jusqu'à la saturation par rapport à l'eau liquide [Phillips et al., 2008],
- Ψ est le facteur d'extrapolation de la formule de Meyers et al. [1992]; il est égal à $0,058707 \cdot \gamma / \rho_c \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$,

– et $\delta_a^b(y, y_1, y_2)$ est une fonction d'interpolation cubique. Elle correspond à un polynôme cubique en y , et est calculée selon :

$$\delta_a^b(y, y_1, y_2) = \begin{cases} a, & \text{si } y \leq y_1 \\ a_0 + a_1y + a_2y^2 + a_3y^3, & \text{si } y_1 < y < y_2 \\ b, & \text{si } y \geq y_2 \end{cases}$$

Où les coefficients a_0, a_1, a_2, a_3 sont des fonctions de a, b, y_1 et y_2 . Leurs expressions sont données dans la “liste des symboles”, en Appendice A de l'article de Phillips et al. [2008].

Conservation du spectre d'activation L'activation des IN repose sur la même hypothèse de conservation du spectre d'activation, que celle énoncée pour les CCN (cf section 4.3). La concentration *totale* (IN interstitiels + activés) de chaque mode i d'IN est conservée par les processus d'advection et d'activation. La concentration en IN *activés* au temps t , est déduite par différence entre la concentration en IN *actives* à ce temps t et la concentration en IN *déjà activés* au temps précédent $t - \Delta t$ (cf figure 4.1). La quantité d'IN *actives* au temps t est déterminée par la paramétrisation que nous présentons dans ce chapitre ; la concentration en IN *déjà activés* est, elle, connue à chaque instant, puisqu'une fois déterminée, la concentration en IN *activés* est enregistrée dans une variable 3D pronostique.

c_1 correspond à la concentration en IN interstitiels, initialement disponibles dans l'atmosphère ; au temps “zéro”, on considère qu'*aucun IN n'est encore activé*, tous sont des IN interstitiels, alors, à ce temps “zéro”, c_1 est à la fois la concentration en IN interstitiels et la concentration **totale** en IN d'un mode i . Contrairement à Phillips et al. [2008] qui proposent de conserver c_1 égale à 1000 m^{-3} quelles que soient les conditions, dans notre schéma de nucléation, c_1 correspond à la somme des concentrations *pronostiques* en IN du mode i (IN *interstitiels* + *activés*). L'hypothèse de conservation du spectre d'activation, nous permet de considérer que, pour chaque mode i , la somme de ces concentrations pronostiques est constante au cours du temps ; de fait, on est donc à même de reconstruire le spectre d'activation à chaque instant, et donc de superposer plusieurs modes i , i.e. de modéliser une population multimodale d'IN. Pour une telle population (multimodale), chaque mode i d'IN aura sa concentration totale propre, contrairement à la version originale de Phillips et al. [2008] où la concentration est unique et fixée à $c_1 = 1000 \text{ m}^{-3}$.

7.3.2 Concentration en IN activables

Pour un mode i donné, ce spectre de référence $N_{IN,1,*}$ est utilisé pour prédire la fraction d'IN de l'espèce X (la composition chimique des IN a été abordée en section 7.1), qui est *activable* :

$$N_{IN,i,X}^{\diamond} = \int_{\log[0.1\mu m]}^{\infty} \left\{ 1 - \exp[-\mu_X(d_a, s_{v/g}, T)] \right\} \frac{d[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]}{d \log d_a} d \log d_a \quad (7.3)$$

où, afin de déterminer la quantité de ces IN *activables* pour des conditions thermodynamiques données, on intègre sur le nombre total d'IN dans l'espèce X du mode i :

$$\begin{aligned} dN_{tot,i,X} &= n_{tot,i,X}(d_a) dd_a = d[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \\ \text{car } N_{tot,i,X} &\equiv \text{Cte} = N_{int,i,X}^{(t=0)} = N_{int,i,X}^{(t)} + N_{IN,i,X}^{(t)} \end{aligned}$$

μ_X représente le nombre moyen d'embryons de glace pour une particule insoluble de taille caractéristique d_a :

$$\begin{aligned} &\text{Pour } T < 0^{\circ}C \text{ et } 1 < s_{v/g} \leq s_{v/g}^e, \\ \mu_X &= H_X(s_{v/g}, T) \xi(T) \left[\frac{\alpha_X N_{IN,1,*}}{\Omega_{X,1,*}} \right] \frac{d\Omega_X}{d[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]} \quad (7.4) \end{aligned}$$

où

– $H_X(s_{v/g}, T)$ est une fonction comprise entre 0 et 1, qui rend compte de la réduction de l'activité nucléante dans des conditions de sous-saturation. $H_X = 1$ pour des conditions saturées par rapport à l'eau, et sinon :

$$\begin{aligned} H_X(s_{v/g}, T) &= \min\{f_c + (1 - f_c)\delta_0^1[s_{v/e}(s_{v/g}, T), s_{v/e,0}, 1], 1\} \\ \text{avec } f_c &= \delta_1^{h^X} [T, T_0^X, T_0^X + \Delta T] \delta_0^1[s_{v/g}, s_{v/g,0}^X, s_{v/g,0}^X + \Delta s_{v/g}] / \gamma \end{aligned}$$

Pour des humidités bien en-deçà de la sursaturation requise pour la nucléation homogène, $H_X \simeq 1/\gamma$.

La Table 1 de Phillips et al. [2008] fournit les valeurs nécessaires au calcul de H_X ($h^X, s_{v/g,0}^X, s_{v/e,0}, \Delta s_{v/g}, T_0^X, \Delta T \dots$) pour $X = \{\text{DM,BC}\}$. Pour $X = \{\text{O}\}$, on considère que $H_O \equiv H_{BC}$.

- Le facteur $\xi(T)$ rend compte de la diminution progressive de la nucléation pour les températures les plus chaudes :

$$\xi(T) = \begin{cases} 0, & \text{si } T \geq -2^\circ\text{C} \\ 1, & \text{si } T \leq -5^\circ\text{C} \\ \delta_1^0(T, -5, -2), & \text{si } -5^\circ\text{C} < T < -2^\circ\text{C} \end{cases}$$

- α_X est la fraction d'aérosols du type X ,
- Ω_X la surface totale de tous les aérosols de type X ayant un diamètre *supérieur* à $0.1 \mu\text{m}$,
- et $\Omega_{X,1,*}$ est la composante de Ω_X qui reflète la surface de tous les aérosols de type X ayant un diamètre *entre* $0.1 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$ (sa valeur est donnée dans la Table 2 de Phillips et al. [2008])¹,
- $\frac{d\Omega_X}{d[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]} \simeq \pi d_a^2$ où d_a est la taille de la particule.

a - IN de composition complexe : intégration par espèce

Le calcul de la concentration en noyaux *activables* de l'espèce X d'IN, nécessite d'intégrer l'Eq. 7.3 sur la distribution totale des IN. Pour ce faire, on exprime l'Eq. 7.3 comme :

$$N_{IN,i,X}^\diamond = \int_{0.1\mu\text{m}}^{\infty} \left\{ 1 - \exp[-\mu_X(d_a, s_{v/g}, T)] \right\} \frac{d[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]}{dd_a} dd_a$$

Afin d'intégrer de $0.1\mu\text{m}$ à $l'\infty$, deux méthodes sont adoptées en fonction du domaine de température ($T > -40^\circ\text{C}$ ou $T \leq -40^\circ\text{C}$) sur lequel on se trouve. Ces deux méthodes sont présentées ci-dessous.

b - Pour les températures supérieures à -40°C

Pour $T > -40^\circ\text{C}$, on considère que la fraction de glace formée est faible et, qu'ainsi l'approximation $\mu_X \ll 1$ est valable :

$$N_{IN,i,X}^\diamond \underset{\mu_X \ll 1}{\cong} \int_{0.1\mu\text{m}}^{\infty} \{ \mu_X(d_a, s_{v/g}, T) \} n_{tot,i,X}(d_a) dd_a$$

¹Phillips (communication personnelle du 23/09/09) recommande de multiplier par 4 la valeur de $\Omega_{DM,1,*}$ de son article original)

7.3 Adaptation aux IN insolubles

En reprenant l'Eq. 7.4, on définit un facteur $A(s_{v/g}, T)$:

$$A(s_{v/g}, T) = H_X(s_{v/g}, T) \xi(T) \left[\frac{\alpha_X N_{IN,1,*}}{\Omega_{X,1,*}} \right] \text{ tel que } \mu_X = A(s_{v/g}, T) \cdot \underbrace{\frac{d\Omega_X}{\mathbf{d}[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]}}_{\simeq \pi d_a^2}$$

Ainsi, il vient

$$\begin{aligned} N_{IN,i,X}^\diamond &\cong \int_{0.1\mu m}^{\infty} [A(s_{v/g}, T) \pi d_a^2] \frac{[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]}{\sqrt{2\pi} d_a \ln \sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X}\right)^2} \mathbf{d}d_a & (7.5) \\ &\cong A(s_{v/g}, T) \pi [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \left[\mathcal{M}_2 - \int_0^{0.1\mu m} \frac{d_a}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X}\right)^2} \mathbf{d}d_a \right] \end{aligned}$$

Où l'on utilise *la formule des moments* [Tripoli et al., 1988] pour calculer \mathcal{M}_2 de 0 à l' ∞ . **Pour une distribution log-normale**, cette loi des moments s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{M}_p &= \int_0^{\infty} D^p \frac{1}{\sqrt{2\pi} D \ln \sigma} e^{-\left(\frac{\ln(D/\bar{D})}{\sqrt{2} \ln \sigma}\right)^2} \mathbf{d}D \\ &= \bar{D}^p \exp\left(\frac{p \ln \sigma}{\sqrt{2}}\right)^2 \end{aligned}$$

On procède à un changement de variables, afin de calculer le second terme de l'Eq. 7.5 ; on pose :

$$\begin{cases} x &= \frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X} \text{ et, ainsi, on obtient} \\ d_a &= \bar{d}_X e^{(x \sqrt{2} \ln \sigma_X)} \text{ et} \\ \mathbf{d}d_a &= \sqrt{2} \ln \sigma_X \bar{d}_X e^{(x \sqrt{2} \ln \sigma_X)} \mathbf{d}x \end{cases} \quad (7.6)$$

L'Eq. 7.5 devient ainsi :

$$\begin{aligned} N_{IN,i,X}^\diamond &\cong A(s_{v/g}, T) \pi [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \left[\mathcal{M}_2 - \frac{(\bar{d}_X)^2}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^B e^{(2\sqrt{2} x \ln \sigma_X - x^2)} \mathbf{d}x \right], \\ \text{avec } B &= \frac{\ln(0.1\mu m/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X} \end{aligned}$$

Or, comme $2ab - b^2 = -(a - b)^2 + a^2$, on peut écrire

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^B e^{(2\sqrt{2} x \ln\sigma_X - x^2)} dx &= \int_{-\infty}^B e^{[-(\sqrt{2} \ln\sigma_X - x)^2 + (\sqrt{2} \ln\sigma_X)^2]} dx \\ &= e^{(\sqrt{2} \ln\sigma_X)^2} \int_{-\infty}^B e^{-(\sqrt{2} \ln\sigma_X - x)^2} dx \end{aligned}$$

Et ainsi

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^B e^{(2\sqrt{2} x \ln\sigma_X - x^2)} dx &= e^{(\sqrt{2} \ln\sigma_X)^2} \left[\int_{-\infty}^{+\infty} e^{-(\sqrt{2} \ln\sigma_X - x)^2} dx - \int_B^{+\infty} e^{-(\sqrt{2} \ln\sigma_X - x)^2} dx \right] \\ &= e^{(\sqrt{2} \ln\sigma_X)^2} \left[\underbrace{\int_{-\infty}^{+\infty} \exp[-\alpha x^2] dx}_{\text{car } \int_{-\infty}^{+\infty} \exp[-\alpha x^2] dx = \sqrt{\frac{\pi}{\alpha}}} \underbrace{\sqrt{\pi}}_{=1} - \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left(\underbrace{\text{erf}(+\infty)}_{=1} - \text{erf}(B) \right) \right] \end{aligned}$$

Par conséquent, la solution de l'Eq. 7.5 est donnée comme suit :

$$\begin{aligned} N_{IN,i,X}^\diamond &\cong A(s_{v/g}, T) \pi [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \left[\mathcal{M}_2 - \frac{(\bar{d}_X)^2}{\sqrt{\pi}} e^{(\sqrt{2} \ln\sigma_X)^2} \left(\sqrt{\pi} - \frac{\sqrt{\pi}}{2} + \frac{\sqrt{\pi}}{2} \text{erf} \left(\frac{\ln(0.1\mu\text{m}/\bar{d}_X)}{\sqrt{2\ln\sigma_X}} \right) \right) \right] \\ N_{IN,i,X}^\diamond &\cong A(s_{v/g}, T) \pi [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \frac{(\bar{d}_X)^2}{2} e^{(\sqrt{2} \ln\sigma_X)^2} \left[1 - \text{erf} \left(\frac{\ln(0.1\mu\text{m}/\bar{d}_X)}{\sqrt{2\ln\sigma_X}} \right) \right] \end{aligned} \quad (7.7)$$

où $N_{IN,i,X}^\diamond$ reflète la concentration en noyaux glaçogènes *activables* pour les températures supérieures à -40°C .

c - Pour les températures inférieures ou égales à -40°C

Pour les températures plus faibles $T \leq -40^\circ\text{C}$, l'approximation précédente n'étant pas valide, on est obligé de recourir à une autre méthode d'intégration. Une quadrature de Gauss-Hermitte (cf section 5.1.2 et Press et al. [1992]) est utilisée pour intégrer le terme 1 **de 0 à l'infini**, auquel on soustrait un second terme qui correspond à l'intégration de la même expression **de 0 à 1** :

$$\begin{aligned} N_{IN,i,X}^\diamond &= \underbrace{\int_0^\infty [1 - \exp(A(s_{v/g}, T) \pi d_a^2)] n_{tot,i,X}(d_a) dd_a}_{\text{terme 1}} \\ &\quad - \underbrace{\int_0^{0.1\mu\text{m}} [1 - \exp(A(s_{v/g}, T) \pi d_a^2)] n_{tot,i,X}(d_a) dd_a}_{\text{terme 2}} \end{aligned}$$

Le terme 1 peut s'écrire comme

$$\begin{aligned} \text{terme 1} &\equiv \int_0^\infty [1 - \exp(A(s_{v/g}, T)\pi d_a^2)] \frac{[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]}{\sqrt{2\pi} d_a \ln \sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X}\right)^2} \mathbf{d}d_a \\ &= \int_0^\infty n_{tot,i,X}(d_a) \mathbf{d}d_a - \int_0^\infty \exp(A(s_{v/g}, T)\pi d_a^2) \frac{[N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}]}{\sqrt{2\pi} d_a \ln \sigma_X} e^{-\left(\frac{\ln(d_a/\bar{d}_X)}{\sqrt{2} \ln \sigma_X}\right)^2} \mathbf{d}d_a \end{aligned}$$

Et en procédant au changement de variables décrit par le système d'équations 7.6, le terme 1 devient :

$$\text{terme 1} \equiv [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \left[1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_0^\infty e^{-x^2} \exp\left(-A(s_{v/g}, T)\pi(\bar{d}_X)^2 e^{(2\sqrt{2}\ln\sigma_X x)}\right) \mathbf{d}d_x \right]$$

$$\text{or d'après la quadrature de Gauss-Hermite : } \int_0^\infty e^{-x^2} f(x) \mathbf{d}d_x \simeq \sum_i w_i f(x_i)$$

ainsi le terme 1 vaut :

$$\text{terme 1} \equiv [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \left[1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sum_i w_i \exp\left(-A(s_{v/g}, T)\pi(\bar{d}_X)^2 e^{(2\sqrt{2}\ln\sigma_X x_i)}\right) \right]$$

L'intégration du second terme est, elle, simplifiée en faisant l'hypothèse des petits diamètres $d_a \ll 1$; cela permet de réaliser un développement limité de la fonction exponentielle ($\exp(-X) \sim 1 - X + o(X^2)$). L'intégration est ensuite similaire à celle réalisée sur le précédent domaine de température (pour $T > -40^\circ\text{C}$).

Finalement, l'expression du nombre d'IN *activables* de l'espèce X du mode i , pour des températures $\leq -40^\circ\text{C}$ s'écrit comme :

$$\begin{aligned} N_{IN,i,X}^\circ &= [N_{int,i,X} + N_{IN,i,X}] \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \sum_i w_i \exp\left[-A(s_{v/g}, T)\pi(\bar{d}_X)^2 e^{(2\sqrt{2}\ln\sigma_X x_i)}\right] \right. \\ &\quad \left. - A(s_{v/g}, T)\pi \frac{(\bar{d}_X)^2}{2} e^{(\sqrt{2}\ln\sigma_X)^2} \left[1 + \operatorname{erf}\left(\frac{\ln(0.1\mu\text{m}/\bar{d}_X)}{\sqrt{2}\ln\sigma_X}\right) \right] \right) \end{aligned} \quad (7.8)$$

7.3.3 Cristaux formés

Afin d'obtenir le nombre **total** d'IN *activables*, on ajoute la part des IN *activables* dans chacune des différentes espèces X , et ce, pour chacun des modes i .

a - Mélange externe

Pour un mélange *externe*, la concentration totale en nombre de cristaux de glace formés par nucléation hétérogène des IN sur l'intervalle de temps Δt , se déduit de :

$$\Delta N_i = \sum_{i=X=1}^L \text{MAX}[N_{IN,i}^{\diamond t} - N_{IN,i}^{t-\Delta t}, 0]$$

où l'on détermine isolément, pour chaque mode i de composition homogène X , la concentration en IN activés à l'instant t et, ainsi, le nombre de cristaux formés, à partir de la différence entre les IN potentiellement *activables* à cet instant t ($N_{IN,i}^{\diamond t}$) et les IN *déjà activés* à des temps plus anciens $t - \Delta t$ ($N_{IN,i}^{t-\Delta t}$).

b - Mélange interne

Pour L modes d'IN en mélange *interne*, la concentration en cristaux de glace initiés est déterminée en deux étapes. La concentration en IN du mode i *activés* sur l'intervalle de temps Δt est d'abord calculée selon :

$$\Delta N_{IN,i} = \text{MAX}\left[\sum_X N_{IN,i,X}^{\diamond t} - N_{IN,i,X}^{t-\Delta t}, 0\right]$$

On fait la somme sur les *différentes* espèces X composant chaque mode i . La concentration en IN *activés* pour un mode i correspond donc à la somme des fractions d'IN activés pour chacun de ces composés X .

Enfin, le nombre *total* d'IN *activés* sur l'intervalle de temps Δt correspond à la somme des IN *activés* sur cet intervalle dans chacun des différents modes i . Il est égal au nombre *total* de cristaux formés par nucléation hétérogène des IN *insolubles* en mélange *interne* :

$$\Delta N_{IN} = \sum_{i=1}^L \Delta N_{IN,i} = \Delta N_i$$

7.4 Adaptation aux IN enrobés

7.4.1 IN *enrobés* ?

En plus de l'initiation de la glace par des noyaux entièrement insolubles (cf section précédente), dans notre schéma MIMA, on considère la formation de cristaux déclenchée par des IN hydrophiles. Cette catégorie d'IN représente des noyaux glaciogènes plus âgés, qui, au cours de leur transport dans l'atmosphère, ont pu être enrobés par une fine couche de matériau soluble (par exemple, du sulfate); plus largement, cette catégorie représente tous les IN qui, ayant une fraction soluble, vont être activés comme des CCN, lors de leur passage dans la phase chaude d'un nuage. La fraction soluble (ou l'enrobage selon le cas) de ces noyaux leur confère une double aptitude de nucléation, ils fonctionnent successivement comme un CCN dans la partie chaude du nuage, puis en IN une fois l'isozéro dépassé. On retrouvera ces IN immergés dans des gouttelettes d'eau nuageuse (suite à leur activation en tant que CCN), bien avant que la température ne permette l'intervention du processus de nucléation hétérogène par immersion.

Pour plus de commodité, et pour différencier cette catégorie d'IN des IN entièrement insolubles, on les désignera par la suite comme des *IN enrobés*.

Techniquement, dans notre schéma MIMA, ces *IN enrobés* lorsqu'ils sont *interstitiels*, sont avant tout des *CCN interstitiels*. Ils ne peuvent pas être directement activés comme des *IN enrobés* : ces aérosols n'acquièrent le statut d'*IN enrobés* que lorsqu'ils ont déjà été activés comme des CCN. Par conséquent, ce réservoir d'*IN enrobés* est en compétition avec les autres modes de CCN lors du processus d'activation (cf chapitre 6 : pour une population multimodale, tout ce qui passe comme si les modes de CCN *interstitiels* étaient en compétition les uns avec les autres pour capter la vapeur disponible). Il est doublement plus difficile d'activer un *IN enrobés* qu'un *IN insoluble*, puisque le premier doit satisfaire successivement les conditions de l'activation en gouttelettes, puis de l'activation en cristaux, quand le second ne satisfait qu'à l'activation en cristaux.

7.4.2 Puits des IN *enrobés*

Avant d'acquérir le statut d'*IN enrobés*, ces aérosols sont sujets à une double déplétion, qui réduit leur effectif. Ces aérosols, *potentiels IN enrobés*, sont sujets à la fois :

1. au lessivage *par impaction* par les précipitations ; les particules interstitielles, *non encore activées* comme CCN, sont collectées par les gouttes de pluie lors de leur sédimentation.
2. et au lessivage par *nucléation* des gouttelettes ; les CCN *activés* initient des gouttelettes dans lesquelles ils restent immergés (et les potentiels IN enrobés avec eux...) : si, plutôt que d'être emportée dans la phase froide, la gouttelette suit le cycle classique de la microphysique chaude, alors, après croissance par coalescence, elle sédimente sous forme de goutte, et le potentiel *IN enrobé* qu'elle contient est perdu pour la nucléation de la glace.

Ainsi avant même d'atteindre la phase froide du nuage, dans laquelle ils sont susceptibles de jouer le rôle de noyau glaçogène pour la gouttelette surfondue dans laquelle ils sont immergés, le nombre d'IN enrobés disponibles pour la nucléation hétérogène est diminué.

7.4.3 Paramétrisation

La concentration en nombre d'IN enrobés *activables* par condensation puis immersion est calculée en fonction des conditions thermodynamiques (température et sursaturation par rapport à la glace) et des propriétés de nucléation propres à l'espèce composant l'IN enrobé. De façon similaire au développement précédemment réalisé pour les IN entièrement insolubles, on s'est ici inspiré de la paramétrisation publiée par Phillips et al. [2008]. Son adaptation pour cette catégorie d'IN enrobés suit le même cheminement que celui présenté dans la section 7.3.

Cela étant, deux différences notoires (par rapport à la section 7.3) apparaissent :

- les réservoirs d'IN impliqués ne sont pas identiques : ici on considère que le réservoir des IN enrobés *interstitiels* correspond au réservoir contenant "certains modes" de CCN *activés*. De la même façon que tous les IN ne sont pas tous hydrophiles, tous les CCN ne contiennent pas tous un noyau glaçogène, i.e. qu'ils n'ont pas tous la double aptitude nucléante : dans ce module de microphysique froide, seuls "certains modes" de CCN sont définis avec cette double propriété de nucléation, à la fois CCN et IN. Ces modes spécifiques sont définis par l'utilisateur.
- les IN enrobés sont considérés comme étant des aérosols en mélange externe. Ces IN ne sont apparentés qu'à une seule espèce : soit du pur "Black Carbon", soit du pur "Dust Metallic" ou du pur "Organic".

L'hypothèse de conservation du spectre d'activation des IN enrobés est ici aussi maintenue : la concentration en IN enrobés *activés* au temps t est calculée par différence entre la concentration en IN enrobés *activables* au temps t , et la concentration en IN enrobés *déjà activés* à un temps plus ancien $t - \Delta t$.

La concentration en IN enrobés *activables* $N_{IN,i|enr}^\diamond$ est obtenue en intégrant sur la concentration **totale** en IN enrobés, à savoir :

$$N_{IN,i|enr}^\diamond = \int_{\log[0.1\mu m]}^{\infty} \left\{ 1 - \exp[-\mu_X(d_a, s_{v/g}, T)] \right\} \frac{d[N_{CCN,i} + N_{IN,i|enr}]}{d \log d_a}$$

où l'expression de μ_X se différencie de celle à la section 7.3, car ici, pour un mode i donné d'IN enrobé, $c_1 = N_{CCN,i} + N_{IN,i|enr}$.

7.4.4 Cristaux formés

La concentration totale en IN enrobés *activables* est ensuite obtenue en faisant la somme sur le nombre de modes i de CCN contenant un noyau insoluble :

$$N_{IN|enr}^\diamond = \sum_i N_{IN,i|enr}^\diamond$$

Et le nombre de cristaux formés au cours de l'intervalle de temps Δt , est ensuite déduit du maximum positif entre le nombre total $N_{IN|enr}^\diamond$ d'IN enrobés potentiellement *activables* au temps t , et $N_{IN|enr}$, le nombre total d'IN enrobés *déjà activés* au temps précédent $t - \Delta t$, selon :

$$\Delta N_i = \text{MAX}[N_{IN|enr}^\diamond{}^t - N_{IN|enr}^{t-\Delta t}, 0]$$

**Premières expériences
numériques utilisant le schéma
MIMA**

Chapitre 8

Impact de la représentation de la nucléation hétérogène de la glace sur un nuage orographique

Sommaire

8.1 Initialisation des scénarii	119
8.2 Résultats	121
8.2.1 Meyers versus MIMA	121
8.2.2 Sensibilité à la concentration	128
8.2.3 Sensibilité au mélange interne	130
8.3 Conclusions	133

Le but de ce chapitre est d'illustrer la sensibilité d'un nuage en phase-mixte faiblement précipitant à la paramétrisation utilisée pour la nucléation hétérogène. Le système nuageux présenté ici est un cas de nuage orographique alpin proposé lors du WMO Cloud Modeling Workshop en juillet 2008 à Cozumel (Mexique) (<http://www.rap.ucar.edu/~gthompsn/workshop2008/>) [Muhlbauer and Lohmann, 2008]. L'évènement précipitant modélisé a lieu au-dessus du mont Jungfrau qui culmine à 3500 m et est situé dans les alpes suisses à une latitude de 46.55° N et une longitude de 7.99° E (voir Fig.8.1 a)). Ce site comporte une station de mesures d'altitude qui est souvent immergée dans les nuages orographiques, et qui a permis de mesurer au cours de la campagne CLACE3 ("Cloud and Aerosol Experiment"), les spectres de CCN utilisés ici.

L'évènement nuageux simulé ici est forcé par l'orographie et faiblement précipitant. C'est donc un cas intéressant pour étudier la sensibilité du nuage à la paramétrisation de la nucléation hétérogène de la glace. En effet le développement initial du nuage n'est pas déterminé par sa microphysique, mais par des ascendances verticales préexistantes. Les résultats de la simulation sont principalement analysables sous l'angle de la physique du nuage.

Sept simulations de cet évènement sont analysées dans ce chapitre. Dans un premier temps on compare la sensibilité du nuage à la paramétrisation utilisée pour modéliser les processus de nucléation hétérogène : un premier scénario simule ces processus uniquement en fonction des caractéristiques de l'atmosphère, suivant la paramétrisation la plus communément utilisée par les modèles, celle de Meyers et al. [1992]. Le second reprend le même évènement, mais en modélisant les processus de nucléation hétérogène sur la base de la paramétrisation adaptée au cours de cette thèse que nous avons détaillée au chapitre 7, qui considère que la nucléation de la glace dépend à la fois des caractéristiques thermodynamiques (température et sursaturation) de l'atmosphère, de son *contenu* en noyaux glaçogènes, et de la *composition* interne de ces noyaux.

Dans un second temps, on s'intéresse plus spécifiquement à la sensibilité de cette dernière paramétrisation. On présente les 5 scénarii effectués avec l'adaptation de la paramétrisation de la nucléation hétérogène de Phillips et al. [2008], pour montrer la sensibilité du nuage orographique :

1) à la concentration en IN : un mode d'IN dont les proportions du mélange interne suivent celui préconisé par Phillips et al. [2008] (66,9 % de poussières minérales, 27 % de suie et 6 % de composés biogéniques) est alternativement initialisé à raison de 1, 10 ou 100 particules par litre, et

8.1 Initialisation des scénarii

2) à leur mélange interne : 3 simulations concentrées à 10 particules par litre sont effectuées en mélange externe, i.e. pour des IN composés d'une espèce pure (alternativement des poussières minérales, de la suie ou des composés organiques), afin de comparer la sensibilité du schéma aux propriétés de nucléation des espèces pures et à celles d'un mélange interne (avec le cas du mode d'IN en mélange interne concentré à 10 L^{-1}).

8.1 Initialisation des scénarii

La simulation présentée ici est réalisée selon le transect tracé sur la Fig.8.1 a).

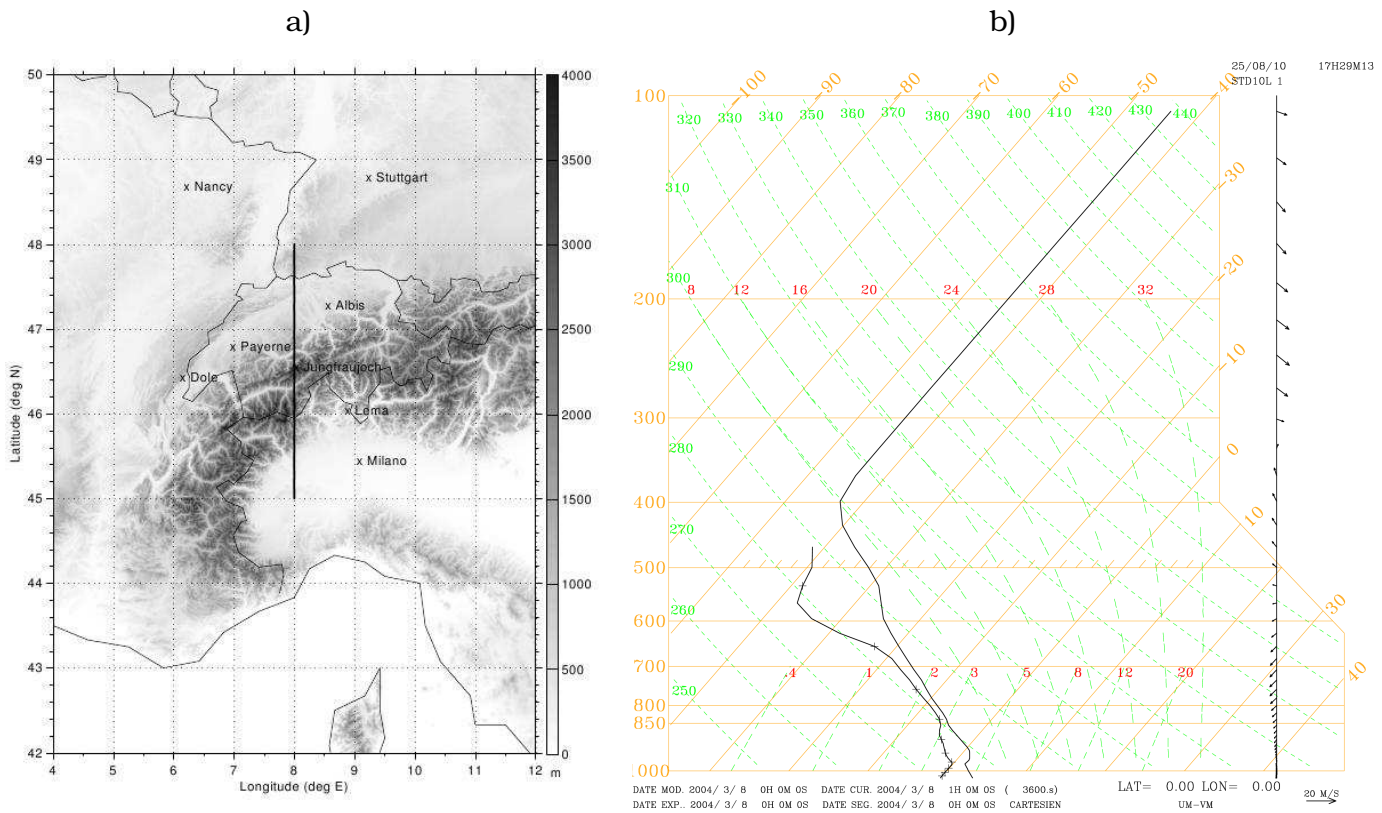


FIG. 8.1 – a) Transect 2D de simulation. b) Sondage à 00 UTC réalisé à Payerne où la température est à droite et la température du point de rosée à gauche. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008].

Le domaine simulé comporte 360 points sur l'horizontale, avec une résolution égale à 2.2 km. 62 niveaux verticaux avec une résolution dégressive sont modélisés : au niveau du sol la résolution est de 10 m et elle est de 1400 m au niveau du toit

du modèle, à 23 km. L'atmosphère est initialisée selon le profil de température et d'humidité montré sur la figure 8.1 b).

Puisque que le processus étudié ici est la nucléation hétérogène de la glace, seule l'initialisation des IN interstitiels change d'un scénario à l'autre. La distribution trimodale des CCN interstitiels a été mesurée à la station de la Jungfrau le 8 mars 2004 à l'aide de deux instruments : un compteur optique de particules (OPC) et le "Scanning Mobility Particle Sizer" (SMPS). Cette distribution est identique quel que soit le scénario et est illustrée par la figure 8.2. Ses caractéristiques sont données dans le tableau de la figure 8.1.

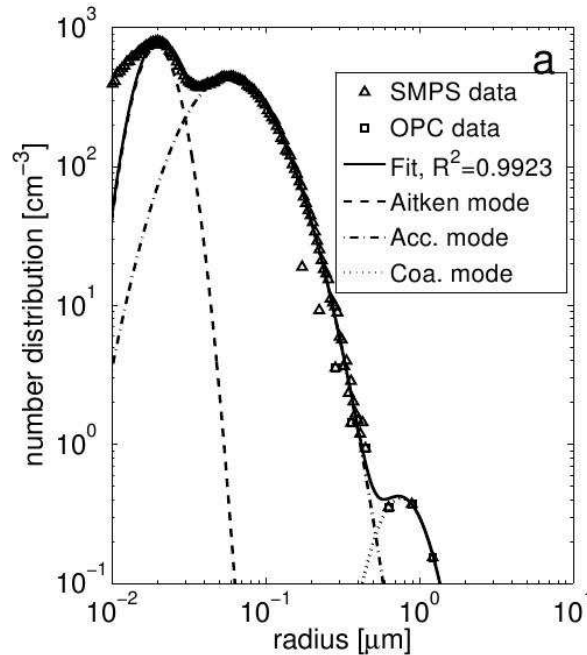


FIG. 8.2 – Distribution en nombre des CCN interstitiels initialisés pour les différents scénarii. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008].

Cette distribution est initialisée selon un profil vertical décroissant avec l'altitude : la concentration est constante dans les 500 premiers mètres au-dessus de la surface, puis décroît exponentiellement jusqu'à ~ 10 km selon :

$$N_{ai}(z) = N_{ai,0}e^{-\lambda z} \quad \text{avec} \quad \lambda = \frac{1}{z_B} \ln \left[\frac{N_{ai,0}}{N_{int,j}} \right] \quad (8.1)$$

où $N_{ai}(z)$ est le profil vertical du mode $i = 1, 2, 3$ de CCN (trimodale ici) et $N_{ai,0}$ la concentrations maximale de ce mode i . Ce profil vertical est défini pour $z \leq z_B$, sachant que pour $z = z_B$, $N_{ai}(z_B) = N_{int,j}$, où $N_{int,j}$ est la concentration en IN du

	Aitken mode	Accumulation mode	Coarse mode
$N_{ai,0}$ [cm^{-3}]	504.	618.	0.35
\bar{r}_{ai} [μm]	0.02	0.058	0.763
σ_{ai}	1.32	1.76	1.41

TAB. 8.1 – Paramètres de la distribution en CCN interstitiels. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008].

mode de fond (monomodale ici) ; cela signifie que la concentration de chaque mode de CCN (mode 1 à 3) décroît exponentiellement jusqu'à $z_B = 10$ km, où elle atteint une concentration proche de celle du mode d'IN, égale à 1, 10, ou 100 particules par litre en fonction du scénario. Cette fourchette de concentrations correspond à peu près à la variabilité de la paramétrisation de Meyers et al. [1992] montrée par la Fig.2.10 au chapitre 2 et issue de DeMott et al. [2010].

La paramétrisation de Meyers et al. [1992] ne considère pas la classe des IN interstitiels. Ainsi, pour cette simulation la distribution des CCN interstitiels décroît exponentiellement jusqu'à $z_B = 10$ km, où elle atteint une concentration proche de 10 particules par litre. Pour les simulations réalisées avec la paramétrisation de la nucléation hétérogène de la glace développée dans MIMA, la distribution d'IN initialisée a été choisie monomodale et spatialement homogène pour simplifier l'analyse des résultats. Les proportions du mélange interne de ce mode d'IN varie avec le scénario de simulation, mais les caractéristiques de distributions des espèces qui le composent sont fixées à celles présentées par le tableau 7.1 au chapitre 7 pour l'ensemble de ces simulations.

8.2 Résultats

8.2.1 Meyers versus MIMA

L'idée est ici d'étudier le développement et l'organisation d'un nuage orographique, résultants de la modélisation du nuage avec deux paramétrisations de la nucléation hétérogène de la glace, celle de Meyers et al. [1992] et celle développée

dans MIMA, qui a été détaillée au chapitre 7. Les deux simulations sont initialisées de manière rigoureusement identiques, hormis pour les champs d'IN interstitiels, puisqu'ils n'interviennent pas dans le cas de la paramétrisation de Meyers et al. [1992] mais qu'ils constituent la base de celle développée dans MIMA. Pour cette dernière la distribution d'IN a une concentration égale à 10 particules par litre, de manière à se situer au milieu de la fourchette de concentration en IN actifs calculés par la paramétrisation de Meyers et al. [1992] : si on extrapole la courbe représentant la paramétrisation de Meyers et al. [1992] sur la figure 2.10 (montrée au chapitre 2), on voit que pour des températures allant de 0 à -40° C, la paramétrisation de Meyers et al. [1992] correspond à des concentrations en IN de 1 à 100 L^{-1} . A l'aide de la paramétrisation adaptée dans MIMA, on simule un mode en mélange interne, composé de 66,9 % de poussières minérales ("dust"), 27 % de suie et 6 % de composés biogéniques, comme préconisé par Phillips et al. [2008].

a - Dynamique

La localisation et l'intensité des régions d'ascendance et de subsidence sont montrées en moyenne entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, sur la Fig.8.3 a), pour le cas du scénario où l'on utilise la paramétrisation de la nucléation hétérogène développée dans MIMA.

Une différence entre l'organisation des régions convectives du cas de la Fig.8.3 a) avec MIMA et le scénario utilisant la paramétrisation de Meyers et al. [1992] est montrée sur la Fig.8.3 b). On voit que l'utilisation de différentes paramétrisations de la nucléation hétérogène de la glace perturbe la distribution du champ de vitesse verticale : bien que le développement initial des nuages se fasse selon un écoulement forcé par l'orographie, après 7 heures de simulations les champs de vitesse verticale différent. Ceci s'explique par le développement différent de la microphysique de la phase froide lié aux deux paramétrisations, qui a des répercussions sur l'organisation spatiale et l'intensité des régions convectives. Toutefois, les différences observées sur la Fig. 8.3 b) ne dépassent pas 10 % et l'étude de ce cas est faite ici à partir de champs moyennés entre la 7ème et la 8ème heure de simulation ¹, afin que l'écoulement ait eu le temps de se stabiliser, mais que l'effet de rétroaction de la microphysique froide sur la dynamique ne soit pas trop avancé, et n'est pas entièrement réorganisé le nuage. On estime que, du fait de l'écoulement forcé, le nuage (et donc la phase froide aussi) a tendance à se dévelop-

¹Toutes les figures de ce chapitre traçant des champs instantanés sont réalisées à cette échéance.

per de manière identique dans un premier temps, et que si dans un second temps la microphysique froide module la dynamique des régions convectives et donc la microphysique chaude, après 7 heures de simulation la phase froide reste moins perturbée que la phase chaude.

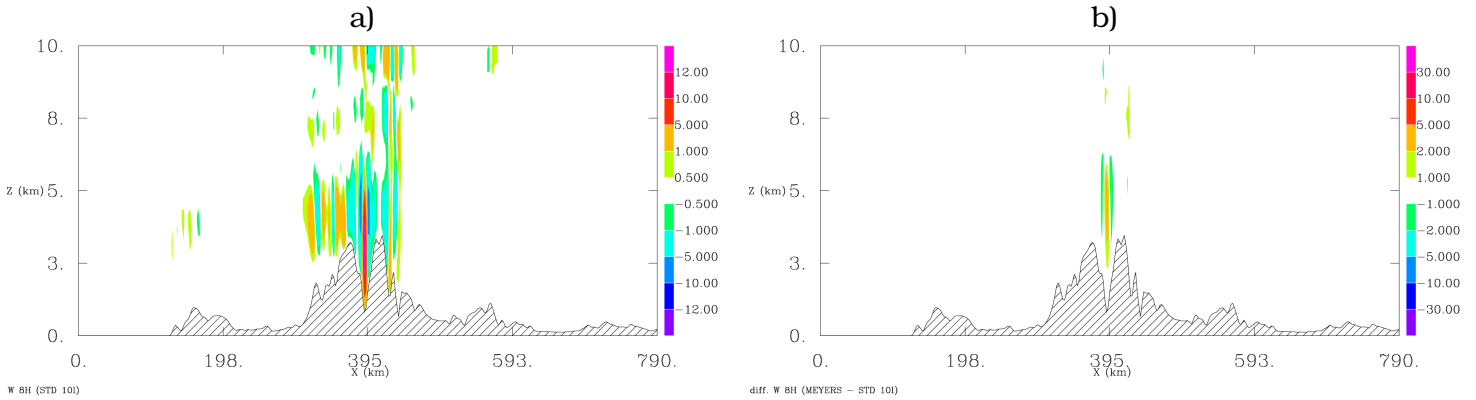


FIG. 8.3 – a) Champ de vitesse verticale moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour le scénario utilisant le schéma développé au cours de cette thèse. **b)** Différence du champ précédent de vitesse verticale avec celui produit pour un scénario utilisant Meyers et al. [1992].

b - Hydrométéores

Phase chaude Comme cela a été évoqué dans la partie décrivant l’initialisation des simulations, afin de pouvoir étudier la sensibilité du nuage à la paramétrisation de la nucléation hétérogène de la glace, seule varie l’initialisation des noyaux glaçogènes entre les différents scénarii. Ainsi, quel que soit le schéma pour la glace (MIMA ou Meyers et al. [1992]), la microphysique de la phase chaude a été initiée par des champs de CCN interstitiels en tout point identiques. La somme des 3 modes composant la distribution de ces CCN interstitiels est représentée sur la figure 8.4 pour le cas utilisant MIMA. Le champ de concentration décroissant avec l’altitude est en couleurs, et la concentration en gouttelettes formées pour ce cas est superposée en isocontours ².

On remarque que la région où la vitesse verticale est la plus forte vers $X = 395$ km (visible sur la Fig.8.3 a)) est caractérisée par une plus faible concentration en CCN interstitiels, due à la très forte intensité de la vitesse verticale qui ne permet

²L’unité des champs de concentrations (gouttelettes, CCN et IN), tracés en couleurs et en isocontours sur les figures correspond à des champs de concentrations en nombre par cm^3 divisés par la densité de l’air ($\rho_{air}(z)$). Dans la suite du texte, le facteur $\rho_{air}(z)$ n’est pas précisé à chaque fois pour alléger.

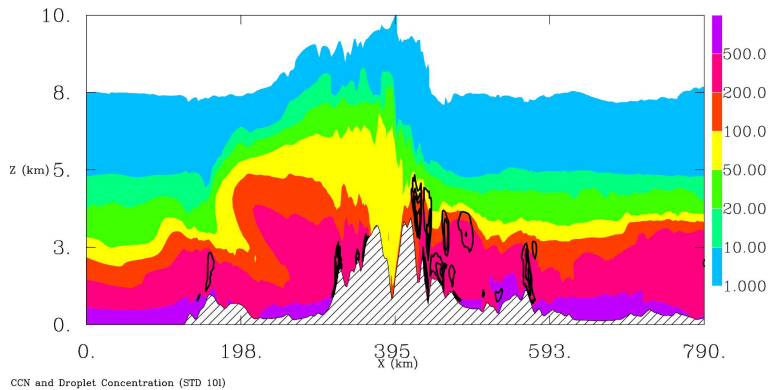


Fig. 8.4 – Champ de concentration [cm^3/ρ_{air}], moyenné entre la 7ème et la 8ème heure, des CCN interstitiels dans le cas de la simulation avec MIMA.

pas aux CCN de stationner dans l'ascendance. Ceux-ci vont donc être activés dans des régions où l'intensité de la vitesse verticale est moindre, comme le montre la localisation des gouttelettes repérées par les isocontours noirs sur la Fig.8.4 qui correspondent à des plus petites vitesses verticales sur la Fig.8.3 a).

La légère modification de l'organisation des courants internes au nuage observée entre les deux scénarii sur la Fig.8.3 b), se répercute sur les champs microphysiques. Malgré l'initialisation d'un champ de concentration en CCN interstitiels rigoureusement identique, les champs de concentration des gouttelettes formées à partir de ces CCN ne sont pas rigoureusement colocalisés. Par exemple, pour le scénario utilisant MIMA, on voit sur la Fig.8.5 b) que plusieurs îlots de concentration en gouttelettes contenant 1 à 100 particules par cm^{-3} apparaissent entre $X = 395$ et 495 km, endroit où est localisée une ascendance convective de moindre intensité (Fig.8.3 a)) qui permet l'activation des CCN. Cela s'explique par une organisation différente des courants ascendants et zonaux, donc par des régions d'activation des CCN différentes, puis par un transport subi par les CCN et les gouttelettes qui se voit modifié par les caractéristiques (spatiales et en intensité) des courants.

Phase froide Contrairement à celle de Meyers et al. [1992], la paramétrisation développée au cours de cette thèse dans le schéma MIMA, prend explicitement en compte la variabilité spatiale du champ d'IN (qui est ici monomodal pour simplifier l'analyse, mais qui peut être multimodal dans MIMA), ainsi que ses aptitudes à nucléer la glace. Le champ de concentration (moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation) des IN interstitiels initialisés pour le scénario utilisant MIMA,

8.2 Résultats

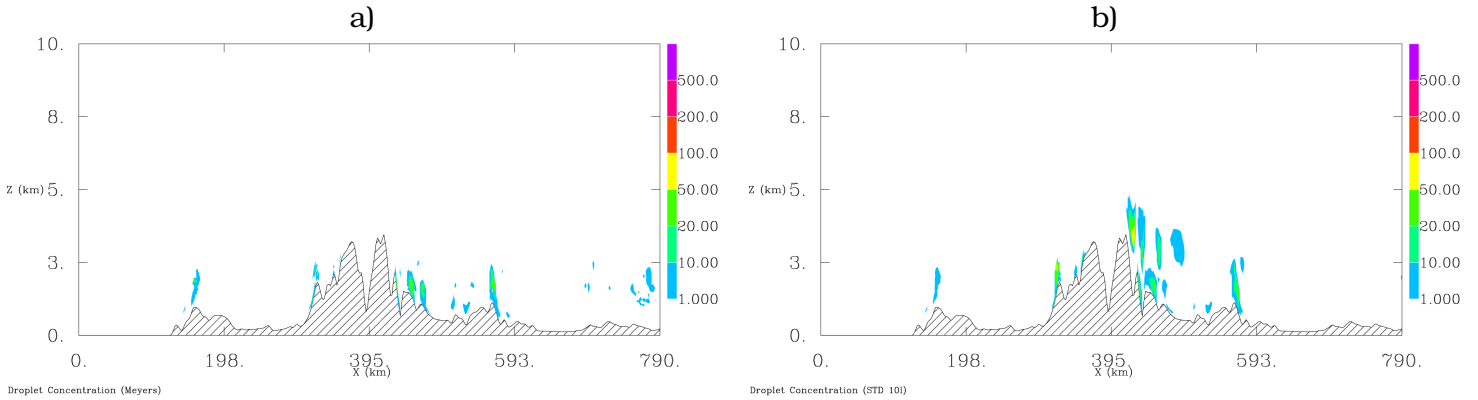


Fig. 8.5 – Concentration en gouttelettes d’eau nuageuse [cm^3/ρ_{air}] moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour le scénario utilisant la paramétrisation **a)** de Meyers et al. [1992] et **b)** développée dans MIMA.

est montré sur la Fig.8.6 en couleurs. Les isocontours noirs montrent la localisation des cristaux [L^{-1}/ρ_{air}] formés par nucléation hétérogène et homogène de la glace ³.

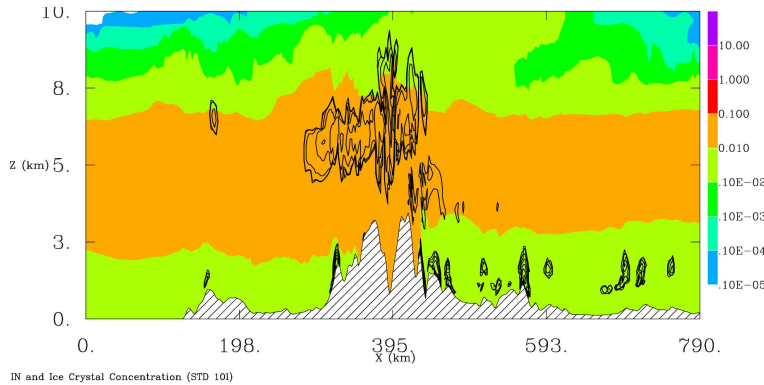


Fig. 8.6 – Champ de concentration [cm^3/ρ_{air}] moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, du mode d’IN interstitiels initialisé pour le cas utilisant MIMA et la concentration en cristaux en isocontours noirs [L^{-1}/ρ_{air}]

Les champs de concentration en cristaux formés pour chacun des deux scénarii sont montrés sur les Figs.8.8 a) et b). A la vue de ces deux figures il apparaît immédiatement que pour le scénario utilisant Meyers et al. [1992], la concentration en cristaux (Fig.8.8 a)) est plus élevée : elle atteint un maximum de 1226.8 L^{-1} dans les hautes couches, alors que le maximum sur tout le domaine ne dépasse pas 2.8 L^{-1} pour les îlots de nucléation les plus près de la surface dans le cas

³L’unité des champs de concentrations en cristaux, tracés sur les figures correspond à des champs de concentrations en nombre par L^{-1} divisés par la densité de l’air ($\rho_{air}(z)$). Dans la suite du texte, le facteur $\rho_{air}(z)$ est volontairement omis pour alléger.

utilisant MIMA (Fig.8.8 b)). Les mesures de concentrations en cristaux issues de la présentation du cas du WMO workshop [Muhlbauer and Lohmann, 2008] qui ont été obtenues à la station de la Jungfrau à l'aide d'un "Cloud Particle Imager" (CPI) sont reportées sur la figure 8.7. Toutefois, il est difficile de les comparer avec nos résultats, car ces mesures estiment une concentration en cristaux oscillant de quelques particules jusqu'à 5000 par litre, et donc une grande variabilité de la concentration des cristaux. De plus, il est reconnu que des artefacts existent sur les valeurs élevées de concentration des petits cristaux. Par exemple l'effet dit de "shattering" a été récemment mis en évidence : les mesures seraient surévaluées de plusieurs ordres de grandeur en considérant les fragments multiples d'un gros cristal qui se séparent suite à des impacts au moment de la mesure par des sondes CIP, FSSP ou OAP-2DC (Korolev and Isaac [2005] et A. Korolev, 13th Conference on Cloud Physics, Portland, 2010).

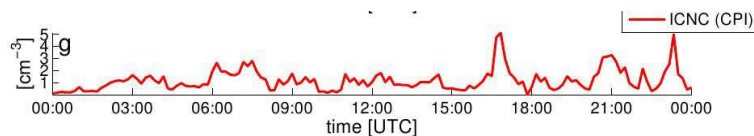


FIG. 8.7 – Observations in-situ de l'évolution temporelle de la concentration en cristaux à la Jungfrau [cm^{-3}]. Source : Muhlbauer and Lohmann [2008].

Cela étant, un certain nombre d'études [Eidhammer et al., 2009; DeMott et al., 2010] sur la paramétrisation de Meyers et al. [1992] montrent que cette dernière a tendance à surestimer la quantité de cristaux formés pour les températures les plus chaudes. La Fig.2.10 au chapitre 2 tirée de l'étude de DeMott et al. [2010], montre qu'en ignorant la grande variabilité spatio-temporelle des IN et les propriétés de nucléation qui s'y rattachent, la paramétrisation de Meyers et al. [1992] estime des quantités de cristaux formés entre -7 et -23°C qui se situent au-dessus de la moyenne des observations les plus récentes.

c - Précipitations

L'impact sur les contenus en glace de cette surestimation du nombre de cristaux nucléés est visible sur la figure 8.9 b) qui présente la différence entre le contenu en glace (somme des rapports de mélange de la phase glace $q_i + q_s + q_g$) de la simulation avec Meyers et al. [1992] et celui de la simulation avec MIMA. Si l'on s'attache uniquement aux disparités liées à la répartition spatiale du champ de contenu en glace, on peut estimer que la production d'un plus grand nombre de cristaux via

8.2 Résultats

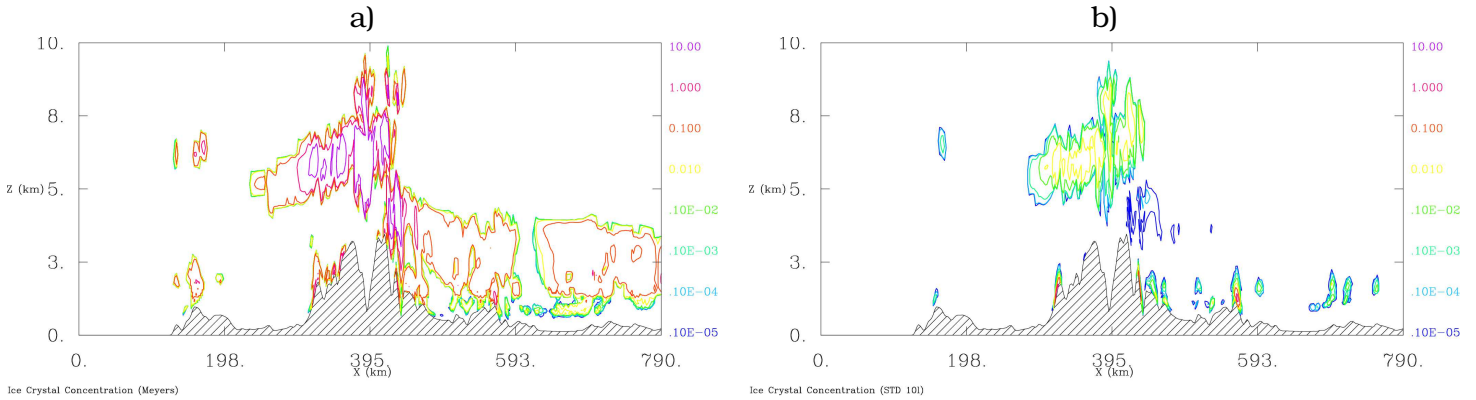


FIG. 8.8 – Concentration en cristaux de glace primaire $[L^{-1}/\rho_{air}]$ moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour le scénario utilisant la paramétrisation **a)** de Meyers et al. [1992] et **b)** développée dans MIMA.

l'utilisation de la paramétrisation de Meyers et al. [1992] perturbe la distribution spatiale des régions convectives et augmente leur intensité (cf Fig.8.3 b)) via une élévation des taux d'évaporation et des transferts de chaleur latente qui modulent l'intensité du champ de vitesse verticale. Cela se répercute sur la quantité de vapeur disponible apportée par les ascendances convectives en général, qui si elle est plus importante autorise une croissance plus rapide des cristaux restants, et donc un contenu en glace plus élevé.

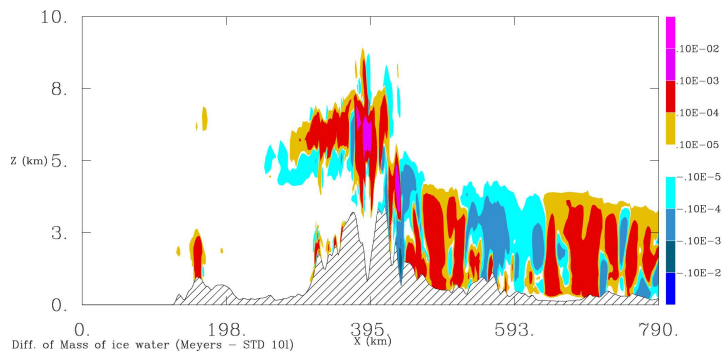


FIG. 8.9 – Différence des contenus en glace moyennés entre la 7ème et la 8ème heure de simulation $[kg/kg]$ entre le scénario avec Meyers et al. [1992] et celui développé au cours de cette thèse.

En conséquence d'une augmentation du contenu en glace du nuage, il semble logique d'observer une augmentation du nombre de cristaux atteignant la taille suffisante pour sédimenter (quelques centaines de microns), et, par suite, un cumul de précipitations au sol plus élevé dans le cas où l'on utilise Meyers et al. [1992], comme le montre de façon quasi-générale la figure 8.10. Ce résultat semble

s'accorder avec l'hypothèse d'un *effet indirect de la glace* : DeMott et al. [2010]; Lohmann [2002] proposent une glaciation plus rapide du système nuageux à la suite d'une augmentation de la concentration en noyaux glaçogènes. L'hypothèse est qu'un plus grand nombre de noyaux glaçogènes disponibles pour la nucléation de la glace facilite les processus de congélation. Cela résulte en une plus grande quantité de précipitations solides formée et donc en une augmentation du taux de précipitation.

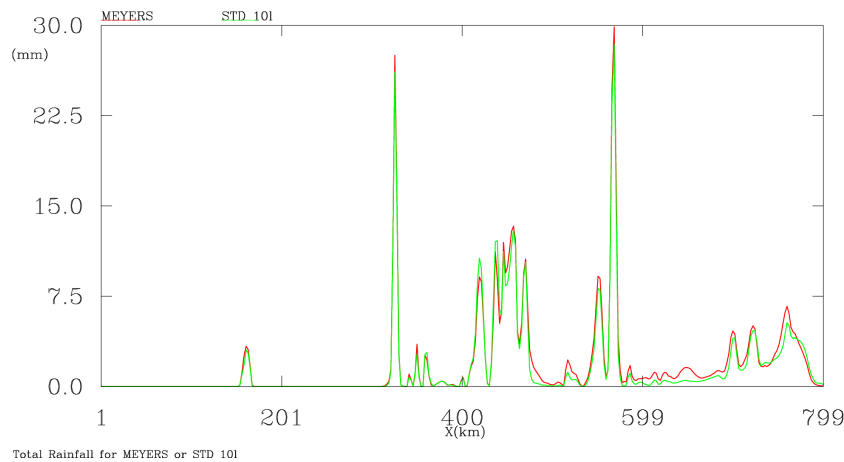


Fig. 8.10 – Cumul des précipitations totales en surface après 24 heures de simulation pour le scénario avec Meyers et al. [1992] en rouge, et celui développé au cours de cette thèse, en vert.

En conclusion, des différences significatives ont été observées quant aux quantités de cristaux formés par ces deux types de paramétrisation que l'on attribue principalement à la prise ou non en compte des champs 3D d'IN interstitiels qui initient les cristaux. La sensibilité du processus de nucléation hétérogène de la glace à la variabilité spatio-temporelle des IN est approfondie dans la partie qui suit.

8.2.2 Sensibilité à la concentration

On évalue la sensibilité de la paramétrisation dans MIMA à des concentrations du mode d'IN, allant de 1, 10, à 100 particules par litre.

Lorsque l'on compare les champs de concentration en cristaux obtenus en moyenne entre la 7ème et la 8ème heure, il est visible que pour la région des hautes couches centrée autour de $X = 395$ km et située entre 4 et 9 km d'altitude, la quantité de cristaux formés augmente avec la concentration en IN interstitiels

8.2 Résultats

disponibles dans l'atmosphère : au maximum un peu moins de $\sim 10^{-3}$ cristaux par litre sont formés pour le scénario où la concentration initiale d'IN est égale à 1 L^{-1} (figure 8.11 a)), entre 10^{-2} L^{-1} et 10^{-1} L^{-1} pour celui où cette concentration vaut 10 L^{-1} (Fig.8.11 b)) et entre 1 et 10 cristaux par litre pour une concentration en IN initialisée à 100 L^{-1} (Fig.8.11 c)). Ces résultats montrent une tendance linéaire de l'augmentation du maximum de cristaux formés dans cette zone (qui augmente de 2 ordres de grandeurs) en réponse à l'augmentation d'un ordre de grandeur de la concentration en IN disponibles dans l'atmosphère.

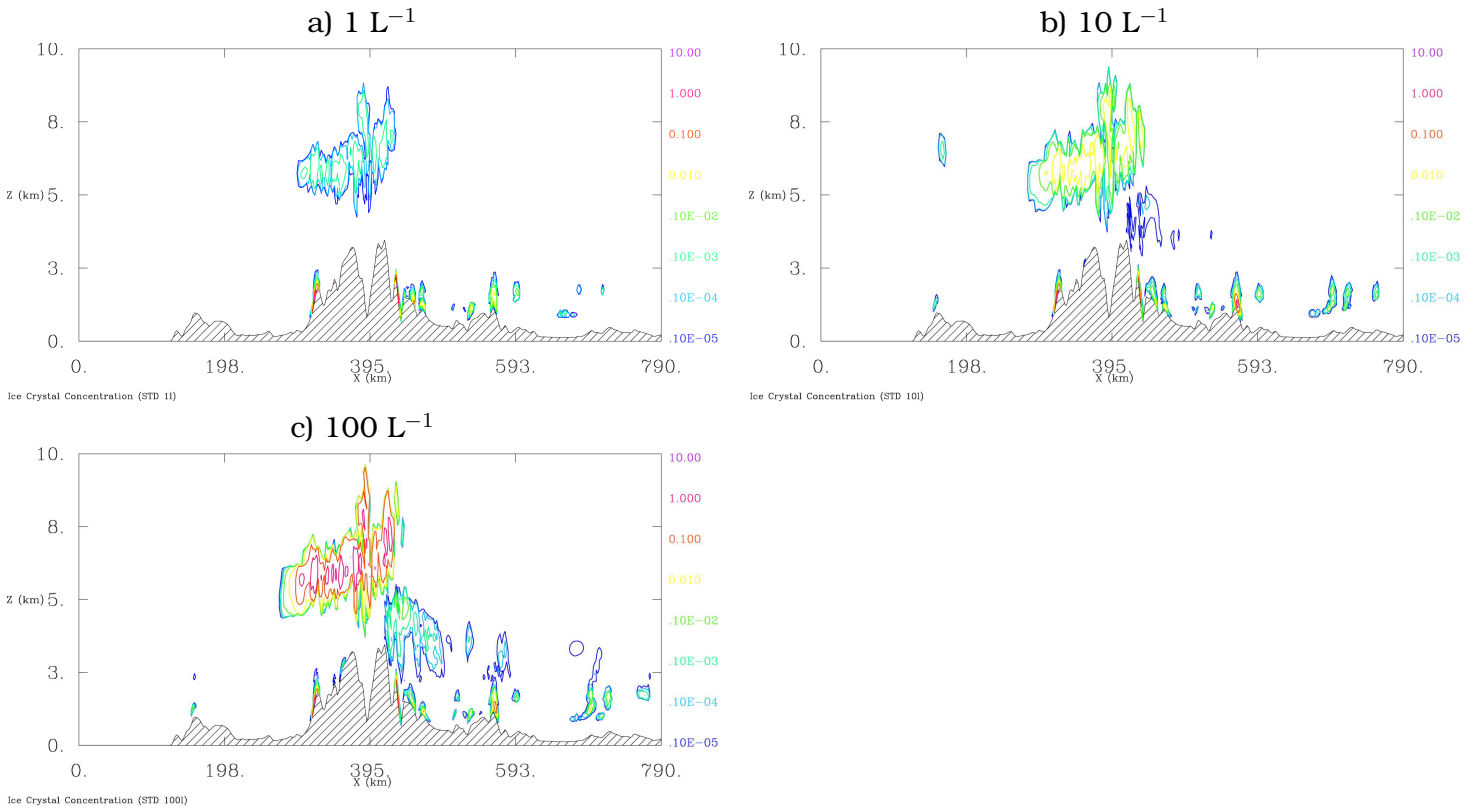


FIG. 8.11 – Concentrations en cristaux formés [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$] moyennées entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, pour un scénario initialisé avec une concentration en IN interstitiels égale à **a)** 1 L^{-1} , **b)** 10 L^{-1} et **c)** 100 L^{-1} .

Toutefois, il est très difficile de valider la sensibilité de cette paramétrisation à la concentration en IN initiale du fait des artefacts qui existent sur les mesures de concentrations en cristaux, comme discuté précédemment.

L'activation des IN interstitiels dans MIMA est une fonction de la température, de la sursaturation par rapport à la glace, des concentrations en IN et du mélange qui les composent. Ce processus d'activation est limité par le nombre d'IN réellement

disponibles en chaque point de l'espace, via l'intégration d'un champ 3D pronostique, mais cette limitation est plus difficilement atteinte que dans le cas des CCN, car les concentrations en IN sont beaucoup plus faibles. C'est pourquoi quand on augmente la concentration de 1 à 100 L⁻¹, la concentration en cristaux croît.

La comparaison des cumuls de précipitation après 24 heures (Fig.8.12) montre finalement que l'hypothèse de l'effet indirect de la glace discuté précédemment ne se vérifie pas forcément. En effet, l'augmentation du nombre de cristaux formés n'est pas obligatoirement corrélée avec une augmentation des précipitations en surface : par exemple on voit que le maximum situé vers 599 km est atteint pour le scénario de concentration en IN égale à 10 L⁻¹.

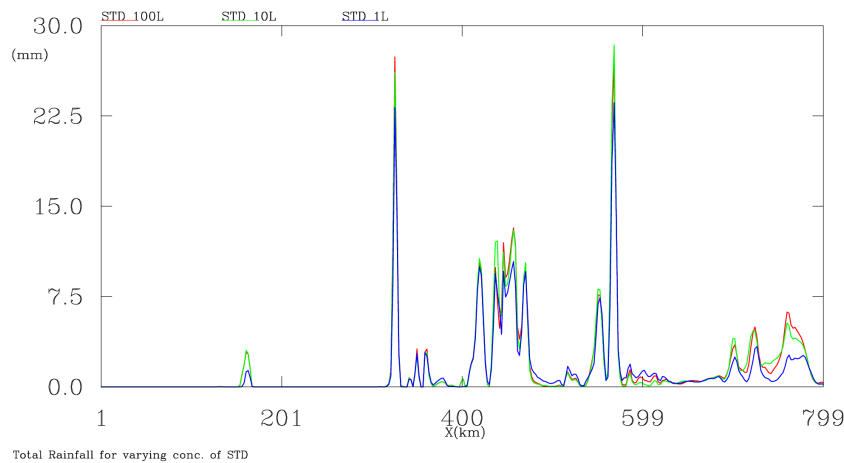


FIG. 8.12 – Cumul des précipitations totales en surface après 24 heures de simulation pour le scénario avec une concentration initiale en IN égale à 100 L⁻¹ en rouge, 10 L⁻¹ en vert et 1 L⁻¹ en bleu.

8.2.3 Sensibilité au mélange interne

Le mode d'IN initialisé est composé d'un mélange interne de trois espèces (poussières minérales, suie et composés organiques) en différentes proportions. Chacune de ces trois espèces est définie par une distribution dimensionnelle résumée par le tableau 7.1 au chapitre 7. Les propriétés de nucléation de chacune des espèces interviennent dans cette paramétrisation notamment à travers un paramètre défini comme la surface totale des aérosols de chaque espèce. Cette paramétrisation est basée sur l'idée que la concentration d'IN de l'espèce X actifs par nucléation est proportionnelle à la surface totale des IN interstitiels de cette espèce.

Grâce aux mesures effectuées par une chambre à nuage (le "Cloud Flow Diffusion Chamber"), les surfaces totales des aérosols ayant un diamètre compris entre 0.1 et 1 μm ont été déterminées pour chaque espèce. Pour chacune de ces espèces, c'est l'association de la surface totale des particules de cette espèce détectées (de taille comprise entre 0.1 et 1 μm) et de leur distribution, qui détermine l'efficacité de nucléation qu'aurait un IN pur, composé uniquement d'une seule espèce. Pour un IN en mélange interne, c'est la proportion de ces trois espèces à l'intérieur d'un IN qui détermine l'aptitude générale de l'IN à nucléer des cristaux, à partir de l'efficacité de nucléation de chacune des espèces pures le composant.

Les simulations présentées sur les figures 8.13 ont toutes été réalisées pour une même concentration initiale du mode d'IN, égale à 10 L^{-1} . Seul change son mélange interne : un cas de mélange standard (voir plus haut) (Fig.8.13 a)) est comparé à des IN de composition pure, i.e. uniquement constitué d'une espèce, et qui sont soit des poussières minérales (Fig.8.13 c)), soit de la suie (Fig.8.13 b)) ou soit des composés biogéniques (Fig.8.13 c)).

On voit sur ces figures que la quantité de cristaux formés varie en fonction du mélange interne composant l'IN. C'est dans le cas où les IN ne sont composés que de poussières minérales que la concentration en cristaux formés est la plus élevée. En effet, cette espèce est celle qui contient les particules de plus grandes tailles, il est donc attendu que la vapeur se dépose en premier lieu sur ces particules. C'est ces IN qui ont la surface totale la plus élevée. Cette espèce est majoritaire (66 %) dans le scénario pour lequel les IN sont en mélange interne standard, cela explique que la concentration en cristaux formés soit plus élevée dans ce cas que dans les deux cas restants (pour lesquels les IN sont composés soit uniquement de suie, soit uniquement de composés biogéniques).

Dans cette première version de la paramétrisation de la nucléation hétérogène dans MIMA, les caractéristiques de distribution des espèces et leurs propriétés de nucléation sont basées sur des mesures de campagne (voir Phillips et al. [2008]). Comme très peu de mesures relatives aux aérosols organiques sont connues à ce jour, toutes les propriétés de ce groupe (caractéristiques de distribution et certains seuils en température et en sursaturation utilisés dans la paramétrisation) sont empruntées à celles de l'espèce "suie", hormis la masse volumique et le paramètre définissant la surface totale des aérosols de cette espèce de tailles comprises entre 0.1 et 1 μm . C'est ce dernier paramètre qui explique les différences de concentrations en cristaux nucléés entre le cas d'un IN purement organique et d'un IN composé uniquement de suie : ici, le nombre moyen d'embryons de glace activés

Impact de la représentation de la nucléation hétérogène de la glace sur un nuage orographique

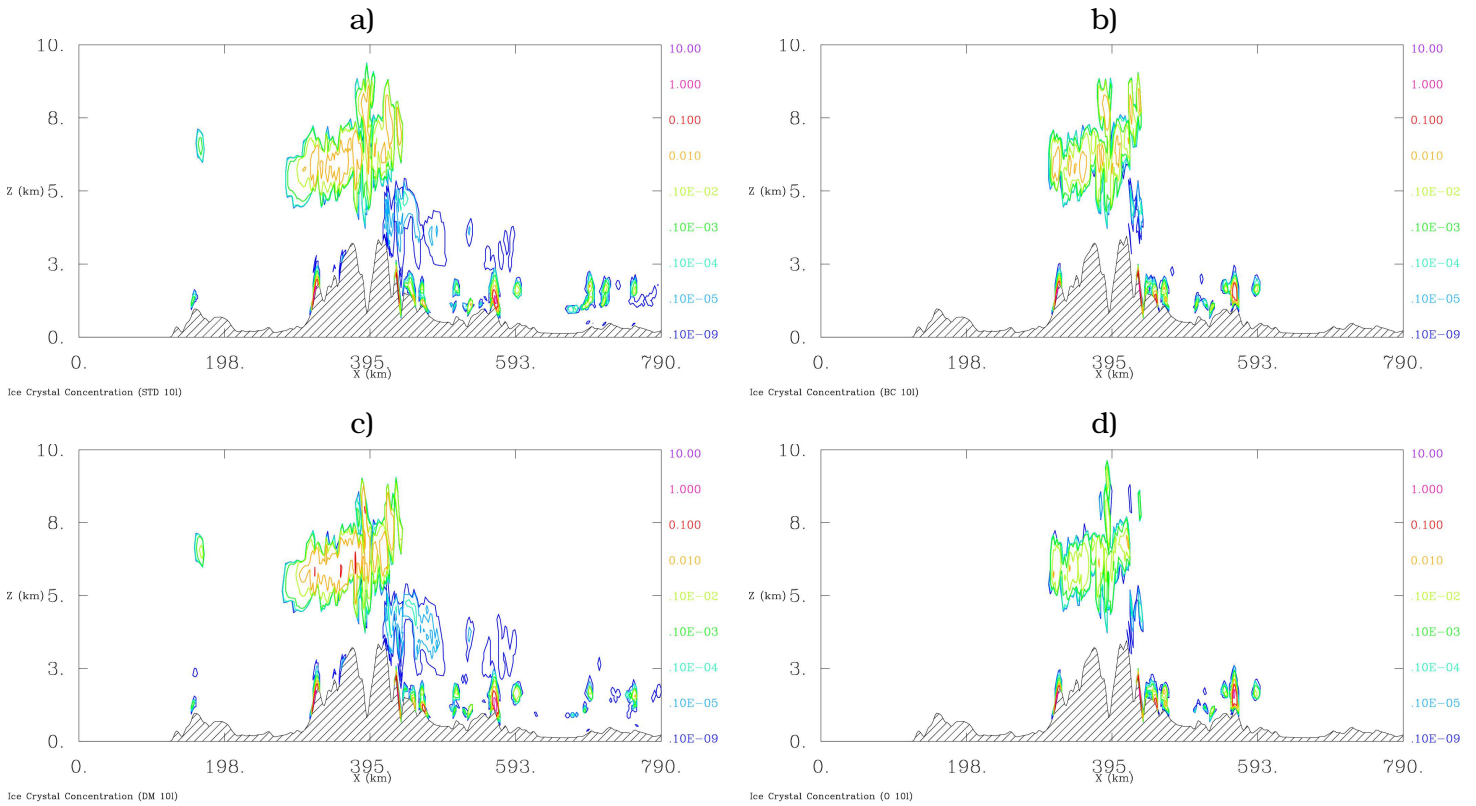


FIG. 8.13 – Concentrations en cristaux formés [L^{-1}/ρ_{air}] moyennées entre la 7^{ème} et la 8^{ème} heure de simulation, pour des scénarii initialisés avec une concentration en IN interstitiels égale à $10 L^{-1}$ **a)** en mélange interne standard, ou composé uniquement **b)** de suie, **c)** de poussières minérales et **d)** de composés biogéniques.

par aérosol est proportionnel à la surface totale de tous les aérosols de cette espèce normalisée par la surface totale des aérosols de cette espèce de tailles comprises entre 0.1 et $1 \mu m$, qui, elle, est plus élevée pour les composés organiques que pour la suie.

Toutefois, bien que la paramétrisation prévoit de distinguer ces trois groupes d'espèces, en raison du peu de mesures encore disponibles et pour la portativité de la paramétrisation, les propriétés de ces espèces (poussières minérales, suie et composés organiques) sont en fait ici des propriétés moyennes de *groupes* d'espèces : par exemple plusieurs types de poussières minérales mesurés au cours de campagnes en divers endroits sont compilés afin d'établir la distribution et les paramètres relatifs à cette espèce dans la paramétrisation de la nucléation hétérogène du schéma MIMA.

8.3 Conclusions

L'étude d'un cas de nuage orographique sur la Jungfraujoeh, à l'aide de différents scénarii pour l'initiation hétérogène des cristaux de glace a permis de mettre en évidence la nécessaire prise en compte des distributions en IN dans la paramétrisation de la nucléation hétérogène.

Si à l'image de celle de Meyers et al. [1992], la paramétrisation de Phillips et al. [2008] reste très empirique, elle a le mérite d'être la première à formuler la nucléation hétérogène en fonction des propriétés des espèces composant les IN atmosphériques. Trois groupes d'espèces sont représentés et l'efficacité de nucléation d'un IN en mélange interne est intrinsèquement lié à la composition de son mélange interne. L'efficacité de nucléation des cristaux de glace est d'autant plus importante que la proportion de poussières minérales dans un IN est grande. A la lumière des résultats de ces différents scénarii dans un contexte de nuage orographique, qui s'appuient sur une paramétrisation intégrant des observations de campagnes, la suie est un composant plus efficace pour nucléer des cristaux que les particules organiques. Toutefois, les mesures relatives à cette dernière espèce sont encore plus incertaines que celles des deux autres catégories, car il est difficile de regrouper des espèces organiques si différentes que le pollen ou les bactéries, avec des tailles très variables, sous une même distribution moyenne de particules.

On a vu ici que l'adaptation qui a été faite de la paramétrisation de Phillips et al. [2008] dans le schéma MIMA permet de réellement introduire une limitation de la quantité de cristaux formés à la quantité d'IN interstitiels, et donc de faire entièrement dépendre le processus d'activation aux distributions des espèces composant l'IN.

Chapitre 9

Sensibilité au lessivage et au profil vertical des CCN : cas d'une ligne de grain

Sommaire

9.1 La ligne de grain COPT	137
9.2 Initialisation des aérosols	138
9.3 Résultats	140
9.3.1 Simulation de <i>référence</i>	140
9.3.2 Effet du lessivage par impaction	144
9.3.3 Effet du profil d'aérosol	148
9.4 Conclusions	152

On souhaite explorer la sensibilité du développement d'un système nuageux, aux différentes structures spatiales des champs d'aérosol, et étudier l'impact du lessivage par impaction des aérosols interstitiels. Pour cela on modélise une ligne de grain en 2D, la ligne de grain africaine COPT observée au cours de la campagne COPT81, le 22 juin 1981 [Caniaux et al., 1994]. La circulation interne de cette ligne de grain ne résulte que de la dynamique propre à ce type de système précipitant, contrairement au cas précédent de la Jungfraujoch, pour lequel le champ nuageux est forcé par un écoulement sur une orographie complexe.

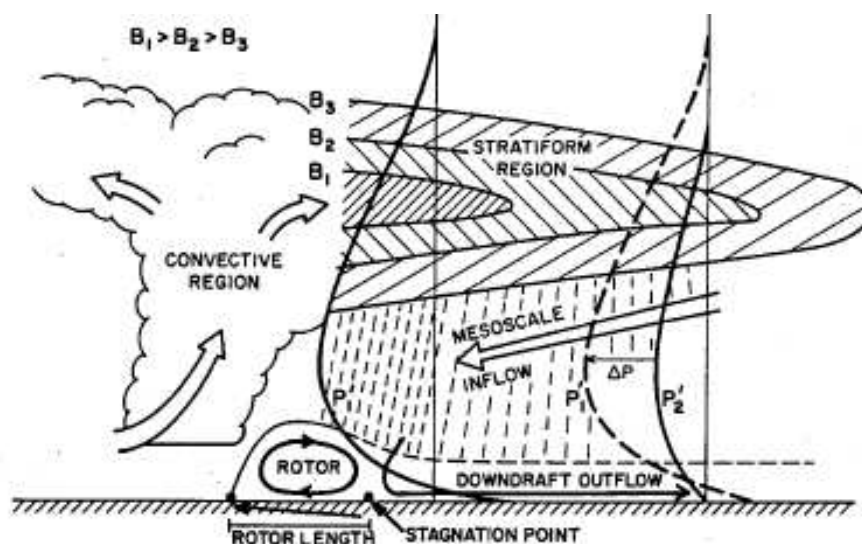


FIG. 9.1 – Coupe verticale schématique d'une ligne de grain. Source : Lafore and Moncrieff [1989].

Dans le cas d'une ligne de grain, les courants verticaux sont uniquement entretenus par la physique du cycle de l'eau dans le nuage. En effet, après le déclenchement de la convection, la persistance et l'intensification des ascendances verticales, sont conditionnées par la formation d'une région froide ("cold pool") à l'arrière du système (cf zone en tiretés sur la Fig.9.1). Cette région froide est formée sous la partie stratiforme, suite à l'évaporation des hydrométéores précipitants (ici la pluie) lors de leur chute dans une atmosphère insaturée. La "cold pool" module indirectement la vitesse verticale des ascendances convectives, car elle régit le "courant de retour" (appelé "mesoscale inflow" sur la Fig.9.1 ou plus communément "rear-to-front inflow" [Houze, 1993; Lafore and Moncrieff, 1989]) situé sous la partie stratiforme. C'est la rencontre de ce "courant de retour" et du flux d'air lié à la propagation du système qui crée une convergence, et entretient les ascendances convectives. Ainsi, dans un tel système, les caractéristiques de la région froide sont intrinsèquement

liées à la microphysique du système convectif (le maintien de cette zone est lié au taux d'évaporation), et détermine la dynamique du nuage (via le "courant de retour"). Le fait que la circulation interne de la ligne de grain COPT est entièrement gouvernée par la physique interne au nuage, en fait un cas bien adapté à l'étude de l'impact net des aérosols sur le développement et les propriétés de ce type de système précipitant.

9.1 La ligne de grain COPT

Ce système idéalisé comporte une circulation interne résolue à l'échelle du kilomètre. Un schéma de transport centré du 4^e ordre est utilisé pour le transport de la quantité de mouvement et le schéma "Piecewise Parabolic Method" [Colella and Woodward, 1984] pour l'advection de tous les champs scalaires. Le schéma de turbulence 2D standard de MésoNH est activé. Les flux radiatifs et les flux turbulents de la couche limite de surface sont ignorés.

Une poche d'air froid permet de déclencher la convection dans une atmosphère initialement homogène : une portion de l'espace simulé est refroidie pendant 10 minutes à raison de 0.01 K/s.

La grille spatiale comporte 320 points dans la direction horizontale, et 46 niveaux verticaux. La résolution horizontale est de 1.25 km. La résolution verticale est variable, elle passe de 70 m au sol à 700 m au niveau du toit du modèle, à 20 km de hauteur. La stratosphère est occupée par un filtre qui absorbe la composante des ondes de gravité à propagation verticale.

On simule les 10 premières heures de formation et de développement de la ligne de grain, en intégrant le modèle avec un pas de temps de 2.0 s.

Afin de stationnariser le mouvement du système nuageux pour qu'il demeure dans le domaine de calcul pendant la durée de la simulation, on retranche une vitesse uniforme de -13.5 m/s à l'écoulement. Cela revient à considérer que le système précipitant se déplace avec une vitesse moyenne de 13.5 m/s, d'est en ouest.

On s'intéresse aux modifications subies par une structure nuageuse suite aux variations spatiales des champs de noyaux de nucléation qui l'initie. Dans ce chapitre, l'accent est mis plus particulièrement sur la sensibilité à la fois au profil vertical initialisé pour les champs de noyaux de nucléation, et au lessivage par les gouttes qui perturbe ces champs. Ainsi, on définit une simulation de *référence* (REF), pour

	Mode 1	Mode 2	Mode 3
$N_{ai,0}$ [cm^{-3}]	300.	140.	50.
\bar{d}_{ai} [μm]	0.23	0.8	2.0
σ_{ai}	2.0	1.5	1.6

TAB. 9.1 – Distribution trimodale des CCN interstitiels **de fond**. Source : Chou et al. [2008]

laquelle est initialisé un aérosol de fond, spatialement non-homogène pour les CCN, et homogène pour les IN. Le lessivage des aérosols interstitiels (CCN/IN) par impaction avec la pluie est considéré. Cette simulation de *référence* (REF) est comparée à deux autres simulations : la première se différencie, parce qu'elle *ne considère pas le lessivage par impaction* (NSC). La seconde joue sur l'initialisation du profil vertical des CCN interstitiels de fond, pour lesquels des conditions *homogènes* sont considérées (simulation HOM).

9.2 Initialisation des aérosols

Le schéma microphysique MIMA est initialisé avec une distribution trimodale de CCN interstitiels issue de Chou et al. [2008]. Cette distribution a été mesurée au Niger pendant la campagne AMMA, et ses propriétés sont répertoriées dans le tableau 9.1 ; ces trois modes constituent l'aérosol soluble de fond.

Ces CCN interstitiels sont constants dans le premier kilomètre au-dessus de la surface, puis décroissent exponentiellement jusqu'à 15 km (cf figure 9.2), suivant la loi de décroissance présentée au chapitre précédent :

$$N_{ai}(z) = N_{ai,0}e^{-\lambda z} \quad \text{avec} \quad \lambda = \frac{1}{z_B} \ln \left[\frac{N_{ai,0}}{N_{int,j}} \right] \quad (9.1)$$

où $N_{ai}(z)$ est le profil vertical du mode $i = 1, 2, 3$ de CCN de fond (trimodale), $N_{ai,0}$ la concentrations maximale de ce mode i . Ce profil vertical est défini pour $z \leq z_B$, sachant que pour $z = z_B$, $N_{ai}(z_B) = N_{int,j}$, où $N_{int,j}$ est la concentration en IN du mode de fond (monomodale ici) ; cela signifie que la concentration de chaque mode de CCN de fond (mode 1 à 3) décroît exponentiellement jusqu'à $z_B = 15$ km, où

elle atteint une concentration proche de celle du mode d'IN de fond (ici égale à 0.1 cm^{-3}).

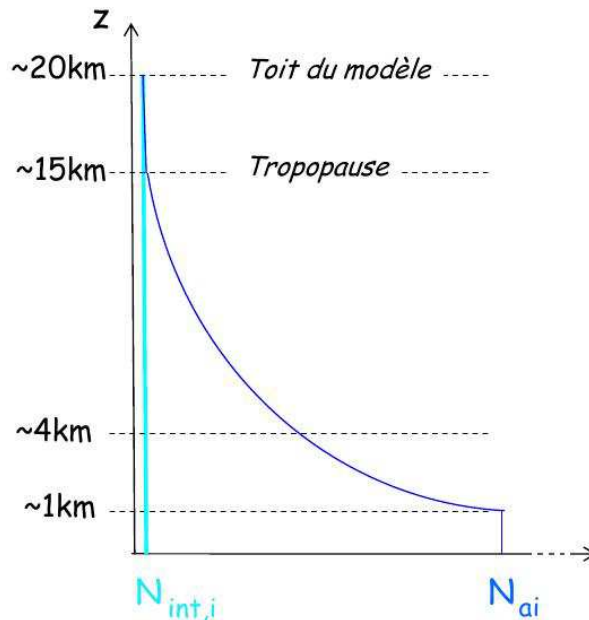


Fig. 9.2 – Représentation schématique de l'initialisation de l'aérosol de fond. Le profil verticalement variable de la distribution trimodale des CCN interstitiels de fond est en bleu foncé, et celui constant, des IN interstitiels de fond en turquoise.

Les concentrations en IN étant très inférieures à celles en CCN ¹; un mode de fond *homogène* de noyaux glaçogène a été initialisé avec une concentration égale à 100 L^{-1} ($= 0.1 \text{ cm}^{-3}$). C'est un mode en mélange interne, composé de 66,9 % de poussières minérales ("dust"), 27 % de suie et 6 % de composés biogéniques, dont les paramètres de distribution sont donnés par le tableau 7.1 présenté au chapitre 7. Ce mode de noyaux glaçogènes de fond est considéré comme étant parfaitement insoluble et contribue à l'initiation des cristaux de glace par les processus de congélation par dépôt de vapeur et par condensation.

Au cours de la simulation, l'aérosol de fond (CCN et IN) est constamment réinitialisé par des conditions aux limites latérales *entrantes*.

¹l'étude récente de DeMott et al. [2010] relève que les concentrations maximales en CCN interstitiels, observées sur le globe, atteignent $10\,000 \text{ cm}^{-3}$, quand celles en IN interstitiels ne dépassent jamais 500 L^{-1}

9.3 Résultats

L'intérêt de cette première série de simulations est d'évaluer l'effet des variations du champ d'aérosols *interstitiels*, sur le développement et les propriétés de la ligne de grain COPT. Différents scénarii sont étudiés, pour lesquels seul le champ d'aérosol est modifié : dans un premier cas, il n'est pas altéré par le lessivage par impaction, et dans un second, il est initialisé de manière homogène le long de la verticale. L'analyse est faite sur le mode de la comparaison entre un scénario de *référence* et ces deux variantes de manière à mettre en évidence l'importance de ces deux points.

9.3.1 Simulation de *référence*

Ainsi, cette simulation définit l'état de *référence* (REF), pour lequel les CCN sont initialisés selon un profil vertical variable et les IN de manière homogène. Dans ce cas REF, le lessivage par impaction des gouttes avec les aérosols interstitiels est activé. Une brève description de la ligne de grain simulée est d'abord présentée. Puis comme les simulations suivantes sont focalisées sur l'étude de l'interaction aérosol-nuage, on ne s'attachera par la suite qu'à décrire des effets directement liés aux modifications des champs d'aérosol.

Afin d'alléger le texte, on précise ici que toutes les figures de ce chapitre présentant des champs instantanés (et non pas des évolutions temporelles ou des cumuls de précipitation) ont été réalisées pour des champs moyennés entre la 7ème et la 8ème heure de simulation. Le choix de cette échéance est motivé par deux points : au bout de 7 heures le système présente un bon développement vertical et il est encore entièrement contenu dans la fenêtre de simulation ; après 8 heures la partie stratiforme sort du domaine de simulation.

a - Comportement général

Le champ de vitesse zonale moyennée entre la 7ème et la 8ème heure de simulation, est présenté en couleurs sur la figure 9.3 a). Les régions où la vitesse verticale est supérieure à 0.4 m/s sont repérées par les isocontours noirs en traits pleins, et celles où elle est inférieure à -0.4 m/s, sont en pointillés. Le trait blanc dessine un contour du nuage que l'on prend pour repère dans l'étude des différents

scénarii : il correspond à un masque sur la somme des rapports de mélange des espèces nuageuses ($q_c + q_r + q_i + q_s + q_g$) égal à 10^{-6} kg/kg.

La ligne de grain se déplace de droite à gauche. L'organisation des courants internes à la ligne de grain est montrée par la Fig.9.3 a). Dans la zone délimitée par le contour nuageux à 10^{-6} kg/kg, les couleurs chaudes (jaune, rouge, rose) montrent le flux d'air incident lié à la propagation du système ("ascending front-to-rear flow", de la gauche vers la droite et qui monte de la surface à ~ 10 km). Sur le bord droit de la fenêtre, le "courant de retour" ("descending rear-to-front flow" [Houze, 1993; Lafore and Moncrieff, 1989]), qui permet d'entretenir les ascendances convectives, est visible au-dessous de 4 km, dans les tons verts. Encore en-dessous, une dernière zone de courant s'étend verticalement jusqu'à la surface, qui figure le courant de densité (ou "downdraft outflow" sur la Fig.9.1).

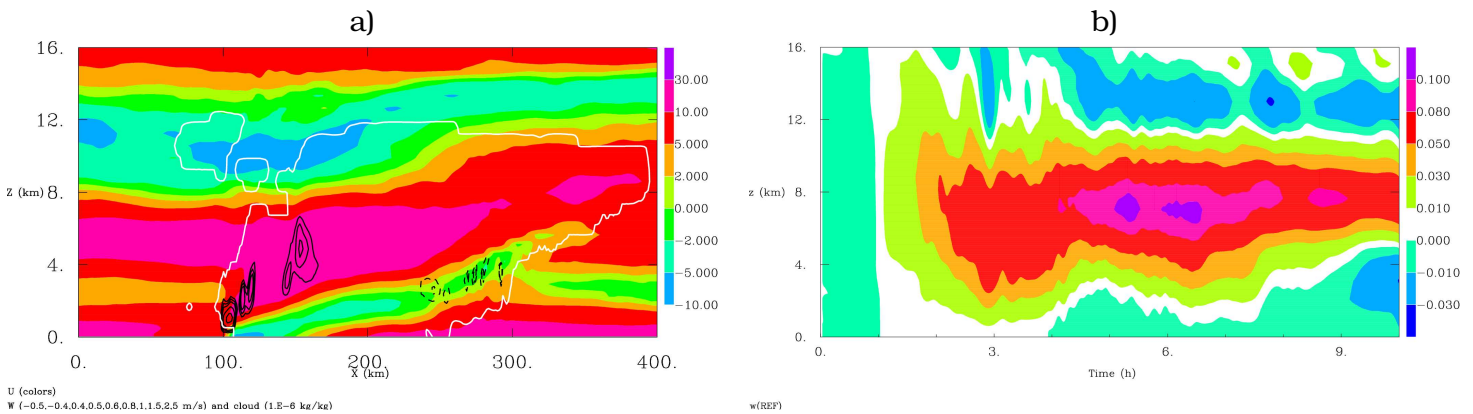


Fig. 9.3 – **a)** Ascendances verticales (isocontours noirs pour -0.5, -0.4, 0.4, 0.5, 0.6, 0.8, 1, 1.5, 2 et 5 m/s) surperposées au champ de vitesse zonale (couleurs) et au contour nuageux à 10^{-6} kg/kg. **b)** Evolution temporelle du profil vertical moyen de la vitesse verticale pour la simulation de *référence* (REF).

Tout au long de chacune des simulations (REF, NSC ou HOM), un profil vertical moyen de la vitesse verticale est calculé à chaque pas de temps. Il est moyenné sur l'ensemble du domaine horizontal de simulation. La figure 9.3 b) représente l'évolution temporelle de ce profil vertical *moyen* de la vitesse verticale pour la simulation REF. On voit qu'entre la 2ème et la 10ème heure, une forte zone de vitesse verticale positive (on rappelle que la moyenne est réalisée sur l'ensemble du domaine) existe entre ~ 4 km et ~ 8 km.

Propriétés précipitantes du nuage Les évolutions temporelles des profils verticaux moyens des contenus en eau du nuage sont tracées sur la Fig.9.4 a), pour le

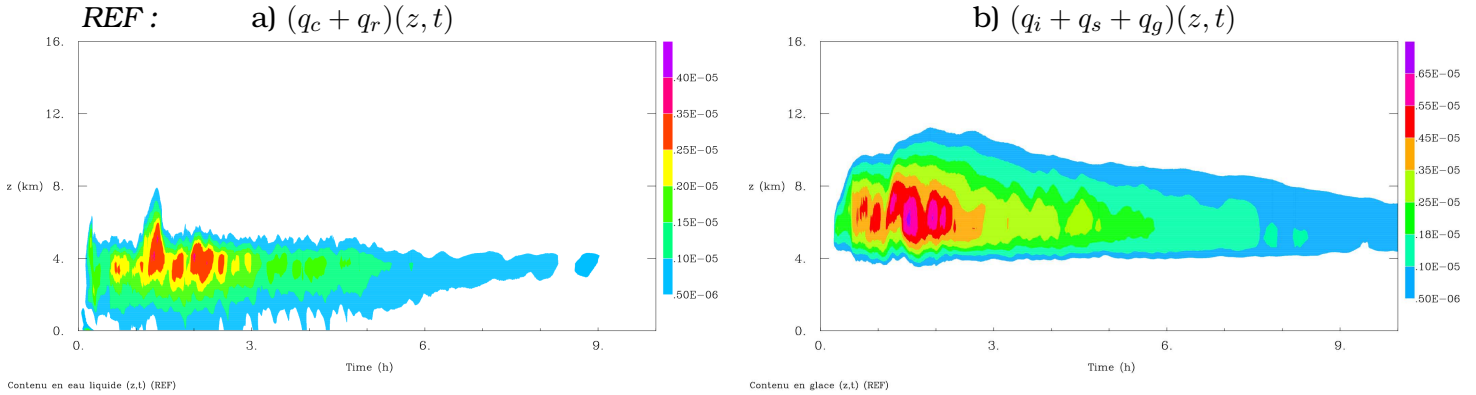


FIG. 9.4 – a) Evolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en eau liquide ($q_c + q_r$) du nuage au cours de la simulation de *référence* (REF) en [kg/kg]. **b)** Evolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en glace ($q_i + q_s + q_g$) du nuage dans le cas de *référence* en [kg/kg].

contenu en eau liquide, et sur la Fig.9.4 b), pour celui en glace. Le contenu en eau liquide est approché par la somme des rapports de mélange de l'eau nuageuse et de la pluie, et, celui en glace, par la somme des rapports de mélange de la glace primaire, de la neige et du grésil. Ces figures montrent que les masses d'eau (liquide et glacée) les plus importantes sont formées entre la première et la troisième heure de simulation.

b - Aérosols

CCN interstitiels et gouttelettes d'eau nuageuse Le champ de CCN *interstitiels* présenté en couleurs ² sur la figure 9.5 a) montre que les 3 modes de CCN initialisés selon le profil vertical de la Fig. 9.2, ont été transportés par les courants au cours du développement du nuage. On observe une forte concentration en nombre (en rouge) dans les plus basses couches de l'atmosphère, entre 0 et 3 km, là où le profil initial était le plus concentré en particules, mais en dehors du contour nuageux à 10^{-6} kg/kg. Dans cette même couche, à l'intérieur du contour nuageux, la valeur du champ de concentration est moindre (en orange), car à cet endroit les CCN *interstitiels* ont à la fois été transportés par les courants verticaux (Fig.9.3 b)), *activés* en gouttelettes d'eau nuageuse, et lessivés par la pluie formée. Une forte concentration (en rouge) est aussi visible en altitude, entre 7 et 12 km, là où le

²Ici on fait la même remarque que dans le précédent chapitre quant à l'unité des champs de concentrations en nombre tracés sur les figures : pour les gouttelettes et les particules d'aérosol, ils sont en [10^{-6} kg $^{-1}$], ce qui correspond à des champs de concentrations en nombre par cm³ divisés par la densité de l'air ($\rho_{air}(z)$). Les concentrations en cristaux sont en [$L^{-1}/\rho_{air}(z)$].

profil initial comptait moins de particules ; celles-là ont donc été transportées par les ascendances convectives et mettent en évidence la sélectivité de l'activation des CCN et le lessivage par la pluie.

La concentration en gouttelettes d'eau nuageuse formées à partir de la distribution en CCN *interstitiels* de fond est représentée par des isocontours noirs sur la figure 9.5 a) ; on voit que cette concentration se superpose bien avec celle du champ de CCN activés, tracé en couleurs sur la figure 9.6 a). On remarque que cette dernière est colocalisée avec les régions de plus forte vitesse verticale (Fig.9.3 a)), qui repèrent les zones convectives. Ici, l'isotherme à 0°C est située aux environs de 4 km. Bien que la majeure partie des gouttelettes formées soit localisée dans la partie chaude, une partie d'entre elles se situe au-dessus de l'isotherme (sous forme d'eau surfondue) : soit qu'elles sont activées dans la partie froide, soit qu'elles y ont été transportées après leur formation.

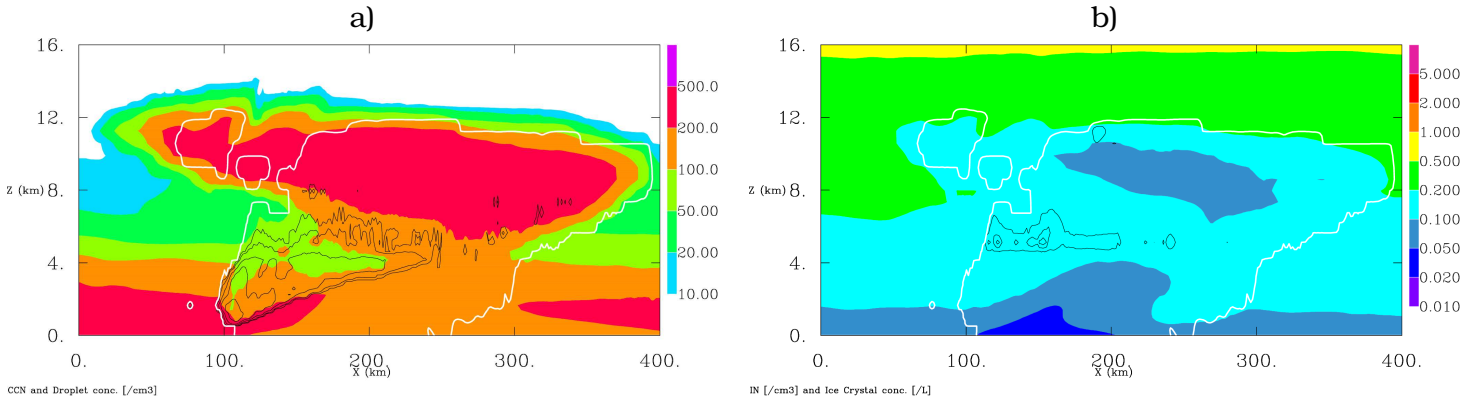


FIG. 9.5 – Pour la simulation de *référence* (REF) : **a)** La somme de 3 modes de la distribution de CCN *interstitiels* de fond ($[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$) est en couleurs, et les isocontours noirs correspondent à la concentration en gouttelettes nucléées ($[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$) ; les isocontours noirs sont sur la même base que l'échelle de couleurs (l'isocontour le plus à l'extérieur vaut $10 [\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$). **b)** En couleurs le mode d'IN de fond ($[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$), et en isocontours noirs la concentration en cristaux de glace nucléés. Les isocontours tracés sont $[0.1, 1, 2, 5, 10, 20, 50] [\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$.

IN interstitiels et cristaux de glace primaire En raison du manque d'observations relatives à la stratification verticale des IN, la concentration en IN interstitiels est ici initialisée selon un profil vertical *homogène*. Toutefois des variations de ce champ sont visibles le long de la verticale (plage jaune en altitude) : elles sont dues au fait que les champs de concentration tracés ici sont divisés par la densité de l'air, i.e. qu'ils sont donnés en nombre par *kg*. La figure 9.5 b) montre une forte concen-

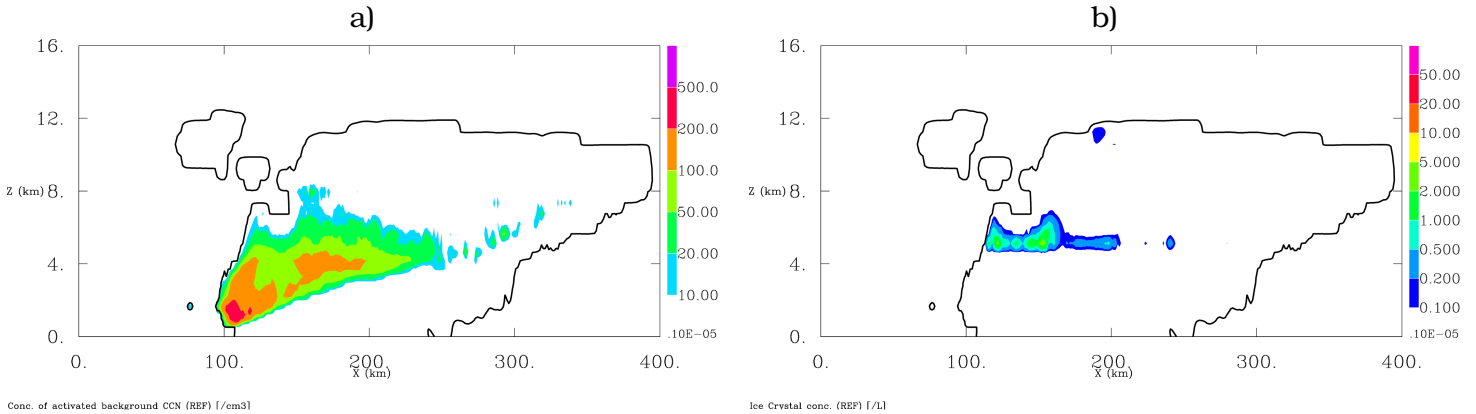


FIG. 9.6 – Concentrations en nombre de : **a)** CCN de fond activés (couleurs) en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ et **b)** cristaux formés (couleurs) en $[\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}]$, dans le cadre de la simulation de *référence*.

tration de cristaux formés dans la partie basse de la phase froide, au-dessus de l'isotherme à 0°C et un îlot isolé au sommet du nuage.

9.3.2 Effet du lessivage par impaction

Des champs de concentration en aérosols interstitiels et hydrométéores primaires, tracés avec les mêmes échelles que dans le cas REF, sont présentés sur les figures suivantes dans le cadre d'une simulation où le lessivage par impaction des gouttes avec les aérosols interstitiels (CCN et IN) *n'est pas pris en compte*. Pour les raisons évoquées au chapitre 5, seul le lessivage par impaction des *gouttes de pluie* est paramétré dans le module de lessivage de MIMA. Ce module de lessivage par impaction est effectif partout où il existe des gouttes de pluie et des aérosols, i.e. aussi bien *sous* le nuage que *dans* le nuage.

CCN et IN interstitiels Si l'on compare le champ de concentration en CCN interstitiels obtenu dans ce scénario (NSC) (Fig. 9.7 a) par rapport à celui du cas REF (Fig.9.5 a)), on remarque que le lessivage modifie peu le champ de CCN interstitiels (sur ces figures, seul un petit îlot rouge à hauteur de 3 km, situé vers $X = 225$ km, diffère nettement). La portion lessivée est très faible devant les importantes concentrations en CCN. Dans ce cas on voit que l'effet du lessivage par impaction est en compétition avec celui du lessivage par nucléation, car tous deux ont lieu dans les régions convectives (car pour le premier c'est là que se situe les maxima

9.3 Résultats

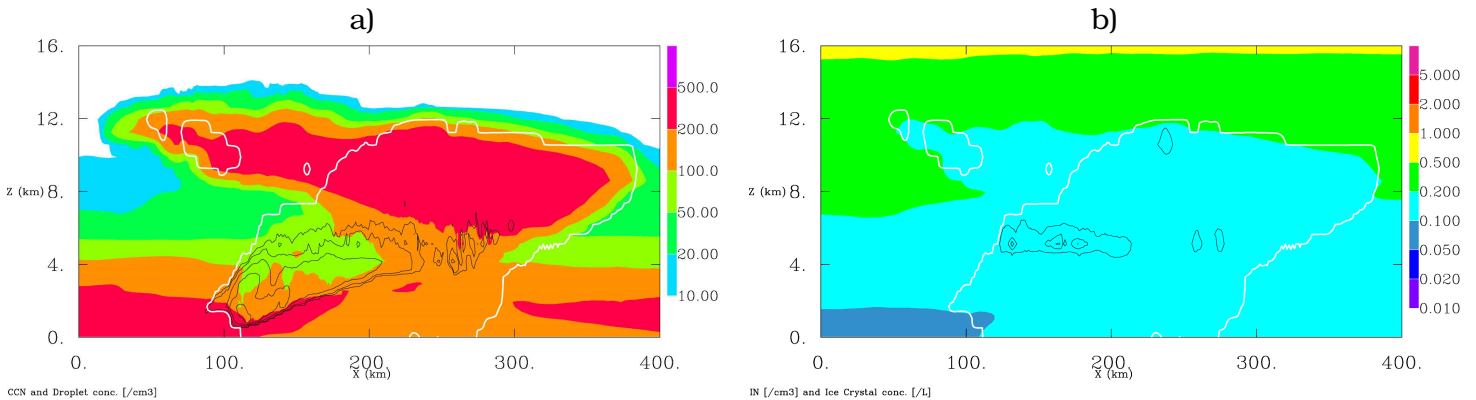


FIG. 9.7 – Légende identique à celle de la Fig. 9.5, mais pour le cas de la simulation *sans lessivage* (NSC).

de précipitations, et pour le second les maxima de vitesse verticale), ce qui explique son faible impact sur le champ de CCN.

En revanche, l'effet du lessivage sur les IN interstitiels est nettement visible si l'on compare les Figs.9.7 b) et 9.5 b) : dans le cas où le module de lessivage par impaction n'est pas activé (NSC), le champ de concentration en IN interstitiels à l'intérieur du contour nuageux vaut entre 0.1 et 0.5 particules par cm^3 , alors que dans le cas REF on observe une diminution des IN interstitiels jusqu'à des concentrations de 0.05 cm^{-3} dans le haut du nuage. L'effet est d'autant plus important dans les plus basses couches entre 100 et 200 km en abscisse (où les concentrations en IN interstitiels sont réduites à 0.02 cm^{-3}), sous la région des ascendances convectives (voir Fig.9.3 a)) où les précipitations sont les plus fortes. En effet c'est dans ces régions convectives que la quantité de gouttes de pluie est la plus élevée, ainsi ces régions représentent-elles des zones à forte probabilité de lessivage des aérosols interstitiels par impaction. Les gouttes lessivent les IN en les collectant au cours de leur chute vers la surface, qui précipitent avec elles et, sauf dans le cas où la goutte s'évapore avant d'atteindre la surface, sont perdus pour la nucléation des cristaux.

D'autre part, bien que le lessivage par impaction pris ici en considération soit le lessivage par les gouttes (et non par les espèces glacées), des différences de concentrations ont été soulignées dans les hautes couches du nuage. Cela s'explique par le transport : dans le cas de *référence*, les aérosols sont lessivés dans les basses couches sous l'isotherme à 0°C , avant d'avoir pu être transportés aux altitudes supérieures. Cet effet d'interaction entre lessivage et dynamique du nuage est visible dans ces simulations car l'écoulement dynamique de la ligne de grain COPT est

auto-entretenu. L'intérêt de simuler l'interaction entre le lessivage par impaction et la dynamique d'un nuage a été étudié et discuté par Berthet et al. [2010] (cf annexe C) pour une couche de CCN initialisée successivement à différentes altitudes de cette même ligne de grain. Dans le cas des CCN, l'effet d'interaction entre le lessivage et la dynamique du nuage modifie surtout la *répartition spatiale* des hydrométéores formés, comme en témoigne l'apparition d'un second îlot d'activation des CCN autour de $Z = 5$ km, entre $X = 250$ et 300 km, sur la Fig.9.8 a).

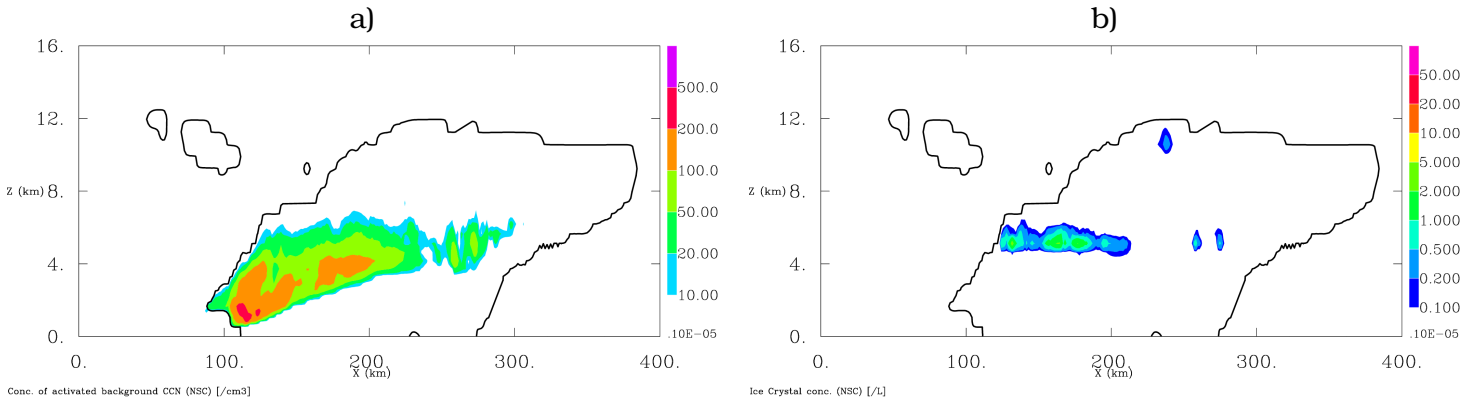


FIG. 9.8 – Légende identique à celle de la Fig. 9.6, mais pour le cas de la simulation *sans lessivage par impaction* (NSC). Attention, les concentrations en cristaux sont en $[L^{-1}/\rho_{air}]$

Bien que l'effet du lessivage soit visible au niveau du champ d'IN interstitiels, le champ de concentration en cristaux moyenné entre la 7ème et la 8ème heure n'est pas fondamentalement différent de celui obtenu dans le cas REF, que ce soit en termes de répartition spatiale ou en terme de quantité. En effet si avec le lessivage par impaction les concentrations en IN diminuent de 100 à 20 – 50 L^{-1} aux endroits les plus touchés, cela n'affecte pas les concentrations en cristaux formés qui sont beaucoup plus faibles, de l'ordre de 1 à 2 cristaux par litre.

Développement du nuage L'effet de modification de la dynamique nuageuse est visible au niveau de l'*enclume avant* ("forward anvil"), en amont de la région convective, en haut, où le contour du nuage à 10^{-6} kg/kg est modifié (trait blanc), alors qu'il est défini par un masque identique dans les deux simulations NSC et REF.

Propriétés précipitantes du nuage Les anomalies des contenus en eau liquide et en glace de la simulation *sans lessivage* par rapport à la simulation REF sont présentées sur les Figs.9.9 a) et b), respectivement.

9.3 Résultats

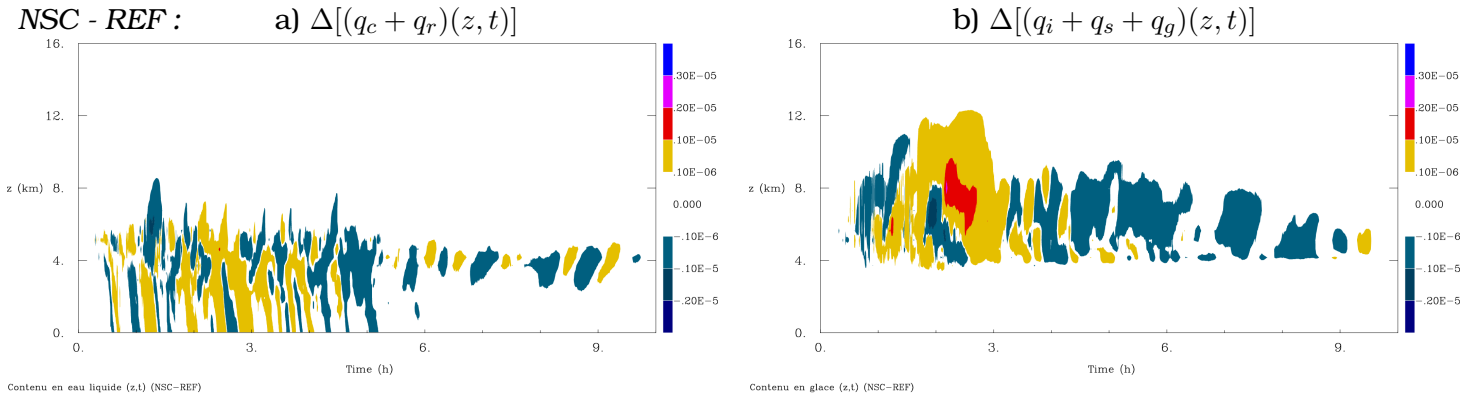


FIG. 9.9 – a) Anomalie (NSC - REF) de l'évolution temporelle du contenu en eau liquide entre la simulation *sans lessivage* et celle de *référence* (montrée en Fig.9.4 a). **b)** Variation (NSC - REF) du profil vertical moyen du contenu en glace dans le cas *sans lessivage* par rapport au cas REF.

Sur ces figures, dans la première partie de la simulation (avant la 4ème heure), des zones où les contenus en eau liquide et en glace sont plus importants que pour le cas REF apparaissent (aires en orange et rouge). D'autre part, au cours de la seconde partie de la simulation (après la 4ème heure), ces contenus sont moins importants dans le cas *sans lessivage* que dans le cas REF. On peut donc supposer que dans le cas NSC, les surplus de contenus en eau liquide et en glace fabriqués au cours des 4 premières heures ont précipité, puisqu'il n'en reste aucune trace par la suite. Cette analyse est appuyée par les cumuls de précipitations obtenus en surface, pour lesquels les valeurs sont plus importantes dans le cas NSC que dans le cas REF.

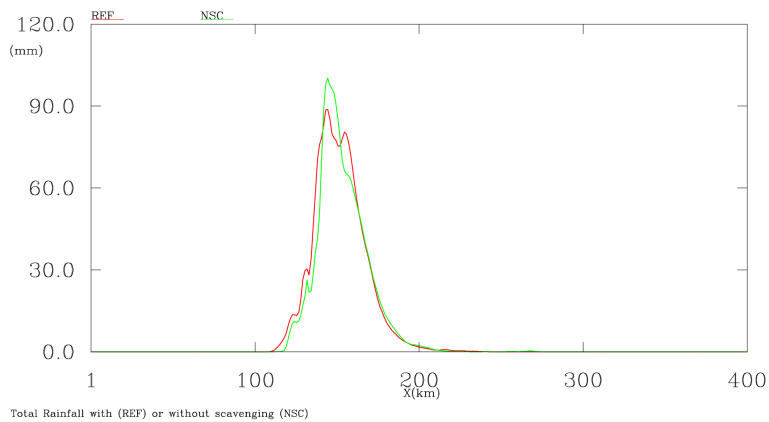


FIG. 9.10 – Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol à la fin des 8 heures de simulation. En rouge, le cumul pour la simulation de *référence* (REF), en vert pour la simulation *sans lessivage* (NSC).

Ces cumuls de précipitations sont reportées sur la figure 9.10, ils sont obtenus après 8 heures de simulations. La simulation où le lessivage n'est pas actionné (NSC) est représentée par la courbe verte, l'autre (en rouge) correspond au cas de référence (REF) donc avec lessivage. Sur cette figure il est clair que le lessivage par impaction des aérosols interstitiels par les gouttes réduit la quantité de précipitations reçue en surface. On a vu que le lessivage avait un faible effet sur le champ de CCN interstitiel. L'augmentation du cumul de précipitations est donc due à la modification de la phase froide suite au non-lessivage des IN interstitiels dans la simulation NSC. Le plus grand nombre d'IN interstitiels permet la formation d'un plus grand nombre de cristaux, et la Fig.9.10 montre que dans ce cas, la croissance de ces cristaux n'est pas limitée par leur nombre plus élevé. Ce résultat, montre l'importance d'intégrer un module de lessivage par la pluie dans les schémas microphysiques, afin de pouvoir quantifier en conséquence les variations des champs de noyaux de nucléation, et leur impact sur les propriétés précipitantes du nuage.

9.3.3 Effet du profil d'aérosol

On s'intéresse ensuite à l'impact du profil vertical initial de la distribution des CCN interstitiels de fond. Dans le cas de la simulation HOM analysée ici, ce profil est *homogène* sur la verticale, contrairement à celui pris pour le cas REF (profil exponentiellement décroissant avec l'altitude, montré sur la figure 9.2). Les concentrations initialisées sur la verticale correspondent à celles du cas REF pour la couche d'altitude située entre [0 – 1] km. Comme pour la simulation REF, le lessivage des CCN/IN est ici pris en compte.

CCN et IN interstitiels Les concentrations en CCN interstitiels après 7 heures de simulation (moyennées entre la 7ème et la 8ème heure), présentées sur la figure 9.11 a), sont de 2 à 5 fois plus importantes pour la simulation HOM par rapport à celle du cas REF (cf Fig.9.5 a)). Le champ d'IN interstitiels (Fig.9.11 b)), dont l'initialisation est identique à celle du cas REF, est très peu perturbé.

Les répercussions des concentrations en CCN interstitiels plus élevées (résultat du profil initial homogène) sont visibles au niveau du champ de CCN activés (Fig.9.12 a)) : dans ce cas HOM, ce champ est plus étendu verticalement que dans le cas REF (Fig.9.6 a)) et ses valeurs sont plus importantes : la plage rouge, pour laquelle le nombre de CCN activés monte jusqu'à 500 par cm^{-3} , est beaucoup plus

9.3 Résultats

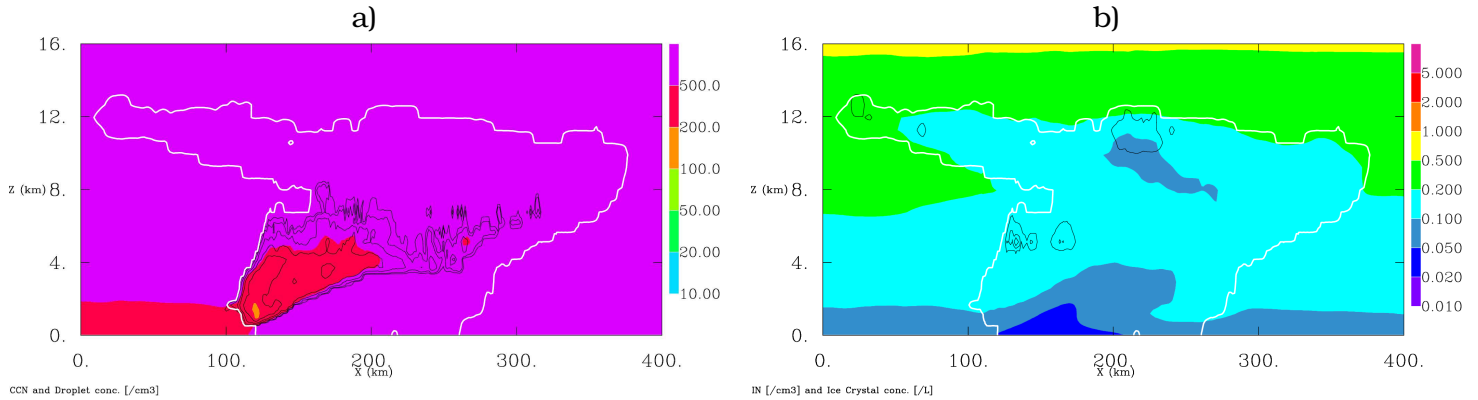


Fig. 9.11 – Légende identique à celle de la Fig. 9.5, mais pour le cas de la simulation où la distribution de CCN de fond est initialisée selon un profil vertical *homogène* (HOM).

large que dans les cas REF et NSC. Cette augmentation s'explique par la combinaison de plusieurs effets : dans les premières heures de la simulation, le nombre plus élevé de CCN interstitiels dans le nuage permet l'activation d'un plus grand nombre de CCN. En conséquence, le développement du nuage est plus rapide et entretient des ascendances convectives plus intenses, qui apportent plus d'humidité et favorisent l'activation d'un plus grand nombre de CCN, et donc la nucléation de plus de gouttelettes.

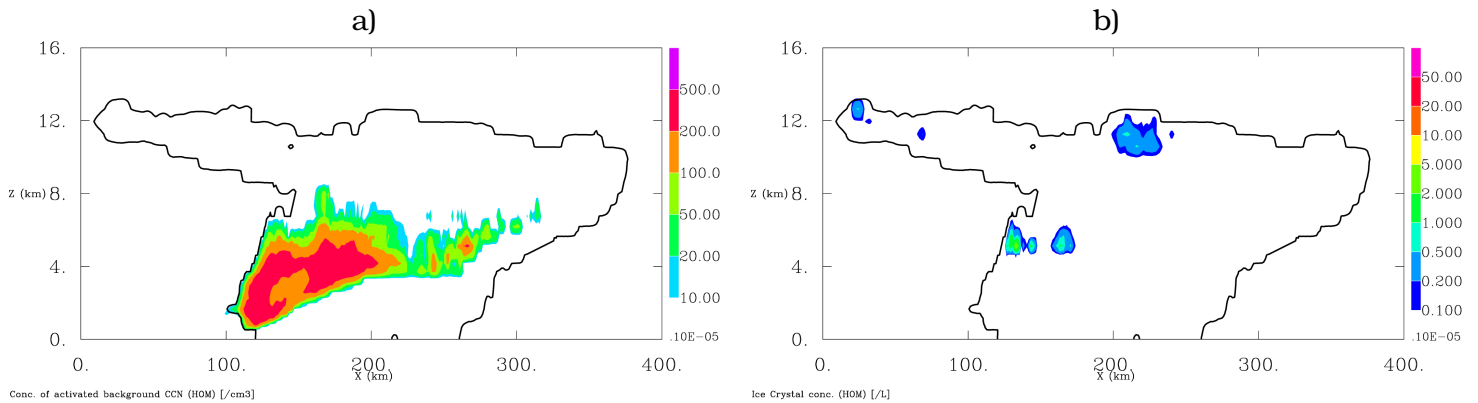


Fig. 9.12 – Légende identique à celle de la Fig. 9.6, mais pour le cas de la simulation où la distribution de CCN de fond est initialisée selon un profil vertical *homogène* (HOM).

Développement du nuage En comparant les contours nuageux des cas HOM et REF, on observe un développement beaucoup plus important de l'*enclume avant*, et donc un contour nuageux à 10^{-6} kg/kg qui englobe une aire plus large que dans le cas REF. Cela témoigne d'une activité convective plus vigoureuse, et donc d'une

organisation nuageuse différente par rapport à celle du cas REF. Comme nous l'avons évoqué précédemment, cela est corrélé avec une concentration plus élevée en gouttelettes d'eau nuageuse (Fig.9.12 a)). D'autre part, si les maxima restent du même ordre de grandeur, la répartition spatiale du champ de concentration en cristaux diffère de celle du cas REF (Fig.9.12 b)). En effet, si l'organisation de la structure de la ligne de grain (en terme de circulation interne) est modifiée par l'initialisation du profil de CCN *homogène*, les conditions d'activation des CCN et des IN sont aussi perturbées car la localisation et l'intensité des ascendances verticales seront modifiées.

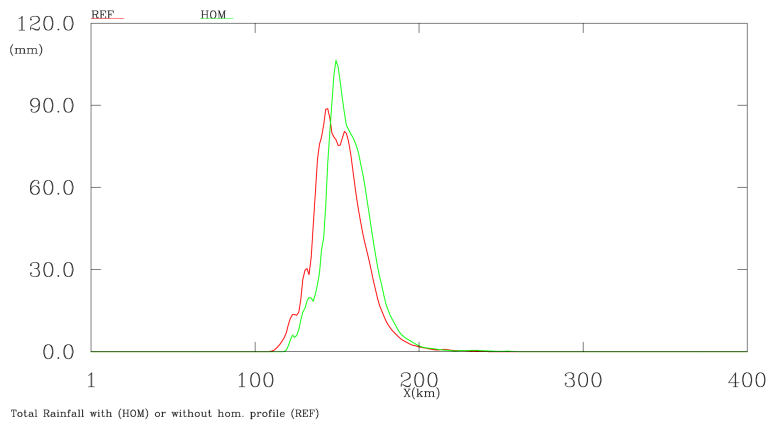


FIG. 9.13 – Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol à la fin des 8 heures de simulation. En rouge, le cumul pour la simulation de *référence* (REF), en vert pour la simulation où le profil vertical des CCN de fond est *homogène* (HOM).

Propriétés précipitantes du nuage Comme dans le cas précédent NSC où le fait de ne pas considérer le lessivage par impaction, correspondait à un ajout d'aérosols interstitiels par rapport à REF, on observe des cumuls de précipitations plus élevés dans le cas HOM (courbe verte sur la Fig.9.13). Plus de CCN interstitiels sont initialisés et plus sont *activés*, ce qui augure d'une diminution des précipitations selon les scénarii de l'*effet indirect* des aérosols (cf introduction générale). Ici, c'est le contraire qui est observé. Il est probable que ces *effets indirects* n'apparaissent qu'au-delà d'un certain seuil en concentration de particules et que la concentration en CCN initialisée ici soit inférieure à ce seuil. Dans ce cas, les caractéristiques de l'ascendance convective autoriseraient alors la croissance par collision-coalescence d'un nombre plus élevé de gouttelettes. Toutefois, cela permet aussi d'avancer que le nombre plus élevé de CCN interstitiels n'a pas qu'un effet sur les précipitations : on constate pour ce scénario HOM que le contour du nuage à 10^{-6} kg/kg est plus

étendu que dans la simulation REF (en rouge). Là encore, la modification spatiale du champ de concentration en CCN interstitiels a un impact sur l'organisation spatiale de la ligne de grain : les zones d'activation des IN s'en trouvent affectées. Ainsi, l'observation des effets indirects est difficile à mettre en évidence pour ce système précipitant du fait de l'interaction entre aérosols et dynamique nuageuse.

Si l'on compare les cumuls de précipitations obtenus pour les cas NSC et HOM cette fois, il est visible que dans le cas HOM, le cumul de précipitations présente un décalage vers la droite, alors que celui du cas NSC est quasiment superposé à celui du cas de *référence*. Dans le cas HOM, cette translation du cumul de précipitation reflète une translation équivalente de la région convective du système, région sous laquelle est localisée la majeure partie des précipitations en surface : dans le cas HOM le système a ralenti. Comme il a été mentionné à la section 9.1, la fenêtre de simulation se déplace à -13.5 m/s parallèlement au système, afin qu'il demeure dans la fenêtre de simulation. En conséquence si le système semble reculer vers la droite de la fenêtre, cela signifie qu'il a ralenti par rapport au mouvement (vers la gauche) de la fenêtre. Ce ralentissement va dans le sens d'une modification de la circulation interne de la ligne de grain : en résumant, le déplacement d'une ligne de grain est géré par l'intensité du courant de densité qui déclenche la formation de nouvelles cellules convectives à l'avant du système. Si l'intensité de ce courant décroît, les nouvelles cellules convectives mettent plus de temps à se former et la ligne de grain ralentit. Les propriétés du courant de densité sont modulées par celles de la "cold pool". Et les propriétés de la "cold pool" sont déterminées par le taux de refroidissement enregistré suite à l'évaporation des hydrométéores précipitants sous la partie stratiforme.

Les interactions entre aérosols, microphysique et dynamique nuageuse sont très difficiles à interpréter sans l'aide d'un modèle capable de les reproduire avec précision. A travers leur impact sur la microphysique, les aérosols modifient la dynamique du nuage. Et cette dernière peut quant à elle rétroagir sur les processus de nucléation des hydrométéores primaires. Ainsi l'ajout d'une concentration plus élevée en noyaux de nucléation ne va-t-elle pas avoir que des conséquences directes sur les taux de précipitations (à travers les concentrations en hydrométéores primaires formés et leur capacité de croissance), mais ces noyaux additionnels vont indirectement modifier l'organisation du système nuageux par rapport à un scénario de *référence*, défini sans ajout d'aérosols. Une fois l'organisation nuageuse modifiée, il est impossible de comparer les scénarii sous le seul angle de l'aptitude à précipiter.

La modélisation de champs *3D pronostiques* pour les champs de noyaux de nucléation *interstitiels*, CCN ou IN, a un effet significatif sur le développement et les propriétés précipitantes d'un système nuageux, à travers un contrôle plus fin de l'initiation des hydrométéores.

9.4 Conclusions

La confrontation des cas NSC et HOM à la simulation de *référence* (REF) a permis de montrer la sensibilité d'une ligne de grain africaine (en termes de quantités et de localisation des champs de concentration d'hydrométéores primaires, d'extension de la structure nuageuse et de propriétés précipitantes), à la fois au lessivage par impaction des gouttes de pluie avec les aérosols (cas NSC), et à l'initialisation des profils de noyaux de nucléation (cas HOM). Cette sensibilité qu'il est difficile d'interpréter dépend de l'organisation interne du système précipitant ; la simulation d'orages isolés 3D présentant une dynamique différente et plus complexe pourrait le confirmer. L'interaction entre les particules d'aérosol et la dynamique du système nuageux complique l'*effet indirect* des aérosols classiquement attendu sur les propriétés précipitantes et la durée de vie d'un nuage.

L'implantation d'un module de lessivage des aérosols par les gouttes de pluie et la possibilité d'initialiser des profils variables d'aérosols *interstitiels* puis de les transporter comme des champs scalaires 3D, sont donc des éléments nécessaires et sensibles à la modélisation de l'interaction aérosols-nuage.

Chapitre 10

Cas d'étude 3 : système nuageux précipitant en interaction avec un panache d'aérosol

Sommaire

10.1 Effet des propriétés de nucléation des aérosols contenus par le panache	154
10.1.1 Panache de <i>CCN</i>	155
10.1.2 Panache d' <i>IN insolubles</i>	158
10.1.3 Panache d' <i>IN enrobés</i>	161
10.1.4 Effets comparés sur les précipitations	163
10.2 Variabilité du panache	165
10.2.1 Sensibilité à la concentration	166
10.2.2 Sensibilité à l'altitude	167
10.3 Conclusions	171

Dans ce chapitre on perturbe le développement de la ligne de grain précédente au moyen d'une *source secondaire* en aérosols. Le fait de considérer un bilan des champs 3D de concentration en aérosols (interstitiels et activés) permet la *superposition* d'un panache *externe* enrichi en aérosols à la distribution d'aérosols de *fond*. Ce type d'expérience simule grossièrement l'effet d'une source externe d'aérosols, comme on peut en observer lors d'épisodes d'émission de poussières désertiques, d'éruptions volcaniques ou de feux de biomasse. L'idée est ici d'explorer la sensibilité du développement du système nuageux aux différentes propriétés de nucléation attribuées aux aérosols contenus dans le panache.

Le panache d'aérosols est ajouté à l'aérosol de *fond*; ce dernier est initialisé comme dans la simulation de *référence* (cf section 9.3.1). 3 séries de simulations sont réalisées en faisant radicalement varier les propriétés de nucléation des particules d'aérosol contenues dans le panache : on les considère successivement comme des *CCN*, comme des *IN insolubles*, ou comme des *IN enrobés*. A l'image de la simulation de *référence*, pour toutes ces simulations, la distribution de *CCN de fond* est initialisée selon le profil vertical schématisé sur la Fig.9.2 et le lessivage des aérosols par impaction avec la pluie est activé.

L'analyse de ces simulations est faite en deux temps : d'abord, on montre que la réponse du système précipitant perturbé est différente selon la *nature* des noyaux de nucléation (*CCN*, *IN insolubles* ou *IN enrobés*) qui composent le panache. Puis, on étudie la sensibilité des propriétés nuageuses à l'*altitude d'injection* du panache, et à sa *concentration* en particules.

10.1 Effet des propriétés de nucléation des aérosols contenus par le panache

La figure 10.1 a) présente de façon schématique les caractéristiques d'initialisation du panache étudié ici. Il est initialisé comme un barreau de 2 km d'extension verticale, entre 3 et 5 km. Ce panache est centré autour de l'isotherme à 0° C qui se situe aux environs de 4 km, afin de ne pas privilégier l'effet des noyaux sur l'une ou l'autre des phases du nuage, car cet effet varie avec la *nature* des noyaux de nucléation. En effet, pour que les noyaux du panache interagissent avec la structure nuageuse, il faut qu'ils puissent agir sur la phase du nuage qui les concerne : intuitivement, le nuage sera moins sensible à des *CCN* injectés dans les plus hautes couches de la structure nuageuse, dans la phase froide, sachant qu'ils n'ont pas

d'aptitudes de noyaux glaçogènes et que leur impact direct sur la phase chaude est dans ce cas très limité, qu'à des CCN injectés dans les plus basses couches, qui pourront directement être activés en gouttelettes d'eau nuageuse. Toutefois les implications sur le développement du nuage de la hauteur du panache seront abordées dans un second temps, elles ne seront pas discutées ici, mais dans la partie 10.2 suivante. Ici, c'est l'effet de la *nature* des noyaux qui composent le panache qui est discuté.

Quelle que soit la nature des noyaux de nucléation qui le compose (CCN, IN insolubles ou IN enrobés), le panache contient 1000 particules par cm^{-3} distribuées autour d'un diamètre médian à $0.8\ \mu\text{m}$ avec un écart type de 1.9. Dans les cas où l'on assimile ces aérosols à des IN, cette distribution correspond à un mode de poussières minérales [Phillips et al., 2008], et qui a des caractéristiques proches de celles observées par Chou et al. [2008] en Afrique de l'Ouest pour le cas où ces aérosols correspondent à des CCN. Comme pour la distribution d'aérosols de *fond* (cf section 9.2), le panache est constamment réalimenté en aérosols par des conditions aux limites latérales *entrantes*. A l'image des aérosols de *fond*, les noyaux de nucléation initialement contenus par le panache sont transportés suivant les courants. C'est tout l'intérêt de considérer des champs d'aérosols *pronostiques* : cela permet l'étude de l'impact d'une source secondaire spatialement inhomogène sur un nuage.

10.1.1 Panache de CCN

Dans une première série de simulations, on considère que le panache est uniquement constitué de CCN interstitiels solubles. Le champ de concentration du mode des CCN interstitiels contenus par le panache est tracé sur la figure 10.1 b), il est moyenné entre la 7ème et la 8ème heure de simulation. Les CCN *interstitiels* du panache se superposent à ceux de la distribution de *fond* (initialisés de manière identique à la simulation REF montrés sur la Fig.9.5 a)) et participent au processus d'activation, qui aboutit à la formation des gouttelettes d'eau nuageuse. Afin d'être activé le mode de CCN contenu par le panache doit partager la vapeur disponible avec la distribution de CCN de fond. Dès lors s'installe une compétition pour l'activation qui dépend des aptitudes à la nucléation de chaque type de CCN (CCN du panache/CCN de fond). La figure 10.2 a) montre que dans le cas de la simulation avec le panache de CCN, la concentration en CCN *activés* de la distribution de fond est proche (en terme de maxima) de celle des CCN activés du cas de *référence* tracée

sur la Fig.9.6 a). La modification du champ de concentration des gouttelettes observée entre les Figs.9.5 a) et 10.1 b) provient donc de la contribution au processus d'activation du mode de CCN contenu par le panache, superposé en isocontours noirs sur la Fig.10.2 a).

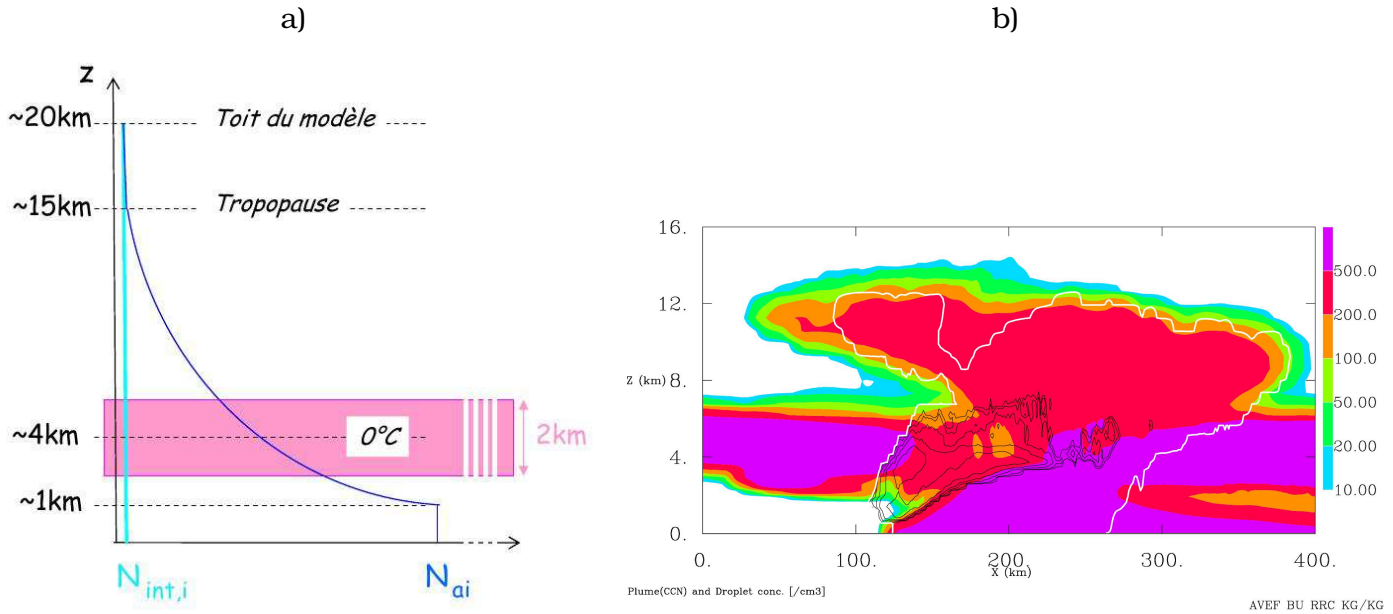


FIG. 10.1 – a) Représentation schématique de l'initialisation du panache de pollution (rose). L'aérosol de fond est identique à celui présenté sur la Fig.9.2, **b)** Concentrations en CCN interstitiels de pollution (couleurs) et en gouttelettes (isocontours), toutes deux en $[cm^{-3}/\rho_{air}]$.

En moyenne entre la 7ème et la 8ème heure, on voit que l'ajout de ce panache de CCN (par rapport au cas REF) affecte en priorité la phase chaude du nuage, et que l'effet sur la phase froide montré en Fig.10.2 d) est faible. L'anomalie entre les champs de concentration en gouttelettes formées est tracée sur la figure 10.2 c). Elle montre qu'en majeure partie (entre $X = 125$ et $X = 225$ km), la différence entre le scénario avec un panache de CCN et la simulation REF, est positive : l'ajout d'un panache de CCN déclenche donc la formation de gouttelettes supplémentaires, et la concentration en gouttelettes est augmentée par un facteur jusqu'à 5 fois. Sur cette figure, une zone s'affiche néanmoins avec une concentration négative (tons bleus, entre $X = 100$ et $X = 125$ km). Les contours nuageux tracés en pointillés pour les 2 scénarii (en noir pour le cas avec le panache de CCN et en rouge pour le cas REF) permettent d'expliquer cette différence inattendue : la région spatiale pour laquelle le cas REF produit plus de gouttelettes que le cas avec panache, est une région non incluse dans le contour nuageux à 10^{-6} kg/kg dans le cas avec panache, donc dont l'intensité convective a été diminuée par rapport au cas REF, en raison d'une

10.1 Effet des propriétés de nucléation des aérosols contenus par le panache

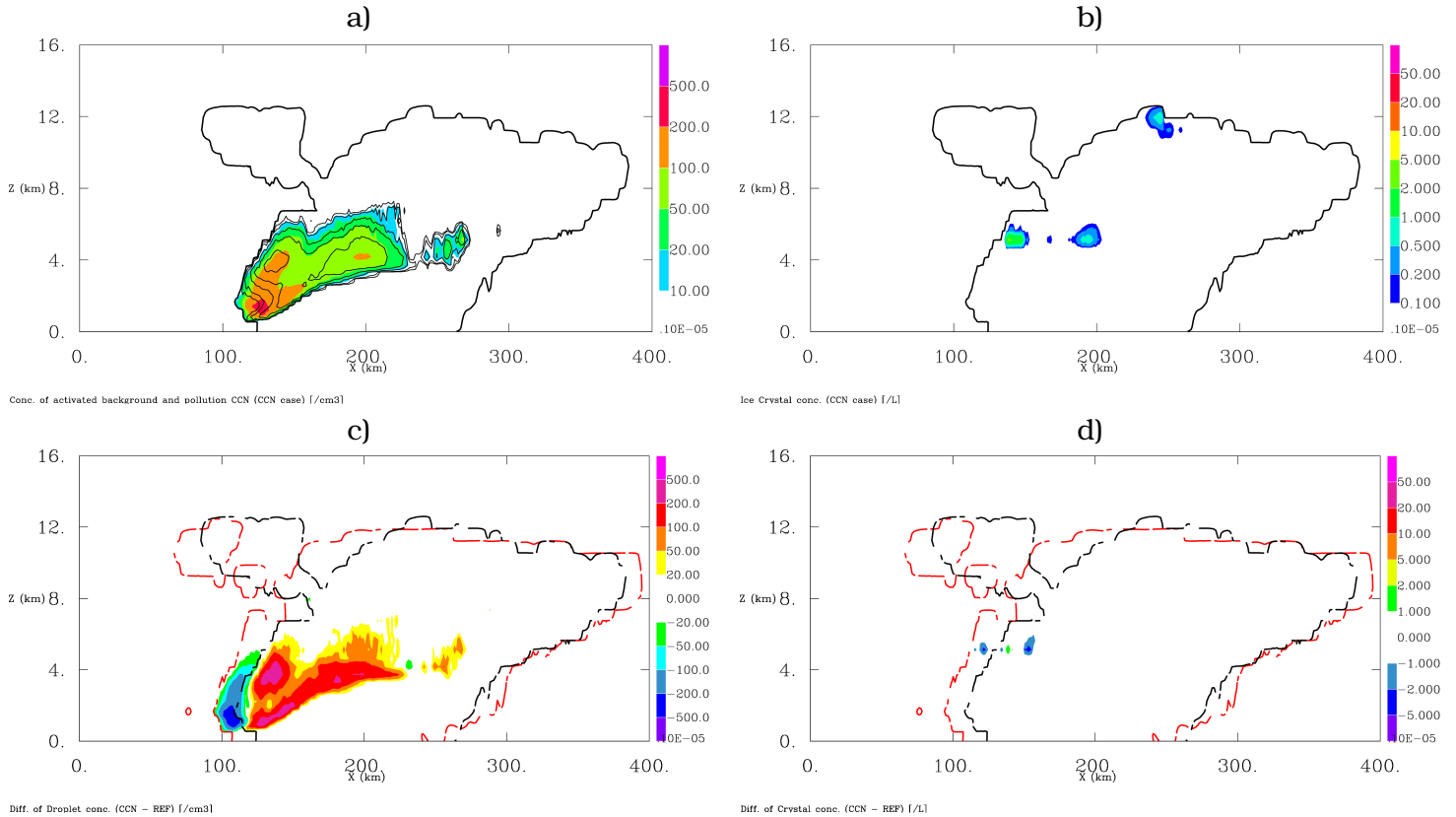


FIG. 10.2 – **a)** Concentration en nombre de CCN de fond activés (couleurs) à laquelle est superposée la concentration en CCN contenus par le panache qui ont été activés (isocontours), toutes deux en $[cm^{-3}/\rho_{air}]$, et **b)** Concentration en cristaux formés $[L^{-1}/\rho_{air}]$, pour la simulation avec un panache de CCN. **c)** Anomalie de la concentration en gouttelettes (couleurs) par rapport au cas REF $[cm^{-3}/\rho_{air}]$, et **d)** Anomalie de la concentration en cristaux (couleurs) par rapport au cas REF $[L^{-1}/\rho_{air}]$. Les pointillés noirs tracent le contour nuageux à 10^{-6} kg/kg pour le cas avec le panache de CCN, et les rouges, celui du cas REF.

organisation différente de la ligne de grain. Le contour nuageux un peu différent conduit à une autre répartition spatiale des îlots de nucléation.

Quant à la différence de concentrations en cristaux de glace formés, la figure 10.2 d) montre que la perturbation de l'état de référence par un panache de CCN a peu d'effets sur la phase froide du nuage, seule la répartition spatiale des îlots de nucléation est un peu différente, mais les maxima des concentrations en nombre sont sensiblement identiques.

L'évolution, au long des 10 heures de simulation, des anomalies de contenus en eau liquide et en glace par rapport au cas REF est montrée sur les figures 10.3 a) et b). On voit que l'introduction d'un panache de CCN induit de grosses

perturbations de l'état de *référence* jusqu'à la 7ème heure. Le contenu en glace de la Fig.10.3 b) est sensiblement augmenté (large plage en orange et rouge) après un peu plus de 2 heures de simulations. Cela est corrélé avec l'augmentation du contenu en eau surfondue observée sur la Fig.10.3 a), au-dessus de l'isotherme à 0°C à 4 km, qui permet la formation de plus de glace par congélation *homogène* des gouttelettes. Cette structure positive en contenu en glace disparaît au bout de 7 heures, ce qui laisse supposer que les hydrométéores glacés ont précipité, car bien que le champ tracé soit une différence, la confrontation avec la Fig.9.4 b) indique qu'aucun maxima n'est créé après cette heure dans le cas REF. De plus, le champ orange situé entre 4, 5 et 7 heures sur la Fig.10.3 a) signe le givrage depuis la fonte des hydrométéores glacés au cours de leur descente.

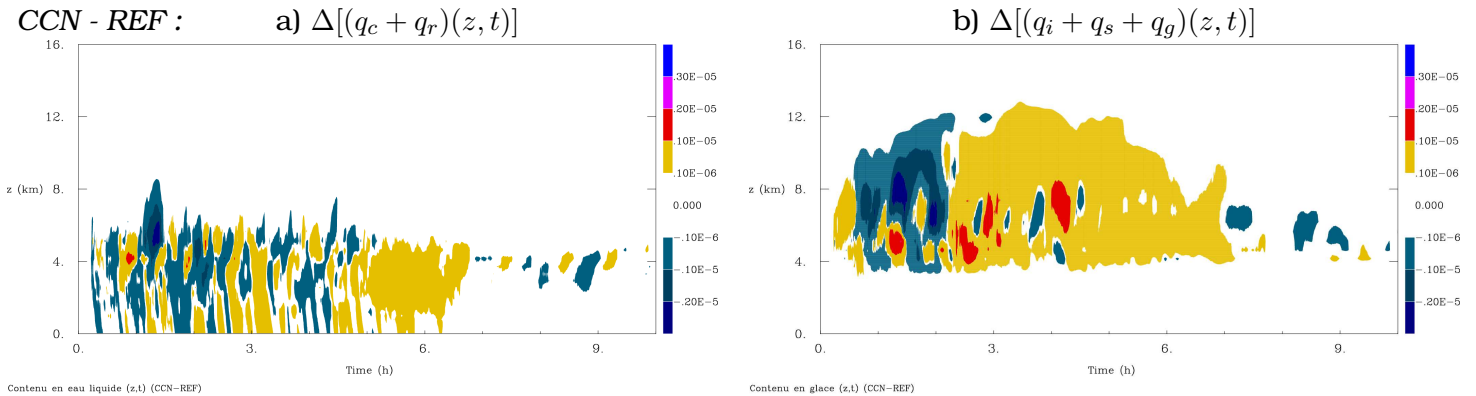


Fig. 10.3 – a) Anomalie de l'évolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en eau liquide du nuage entre la simulation avec un panache de *CCN* et celle de *référence* (CCN - REF) en [kg/kg]. **b)** Variation de l'évolution temporelle du profil vertical moyen du contenu en glace du nuage dans le cas *CCN* par rapport au cas REF (CCN -REF) en [kg/kg].

10.1.2 Panache d'*IN insolubles*

Dans cette simulation, on considère un panache entièrement composé d'*IN insolubles*, dont l'unique propriété de nucléation est de former des cristaux de glace primaire. Ils affectent donc en priorité la phase glace. La concentration en gouttelettes d'eau nuageuse formées diffère peu de celle du cas REF (Fig.10.4 c)), puisqu'ici comme dans le cas REF, ces gouttelettes ne sont formées qu'à partir de la distribution de CCN de *fond*. En revanche, la Fig.10.4 b) exhibe une concentration en nombre de cristaux de glace nucléés très importante. L'anomalie par rapport au cas REF montrée sur la Fig.10.4 d), affiche une concentration en cristaux 2 à 4 fois supérieure à celle de la Fig.9.6 b) pour les îlots de nucléation préexistants

10.1 Effet des propriétés de nucléation des aérosols contenus par le panache

dans REF, et jusqu'à 2 ordres de grandeurs dans les hautes couches après l'ajout du panache d'*IN insolubles* à mi-hauteur : dans le cas REF les maxima atteignaient 5 cristaux par litre uniquement dans de toutes petites zones, quand ils dépassent 50 L^{-1} sur une large surface avec le panache.

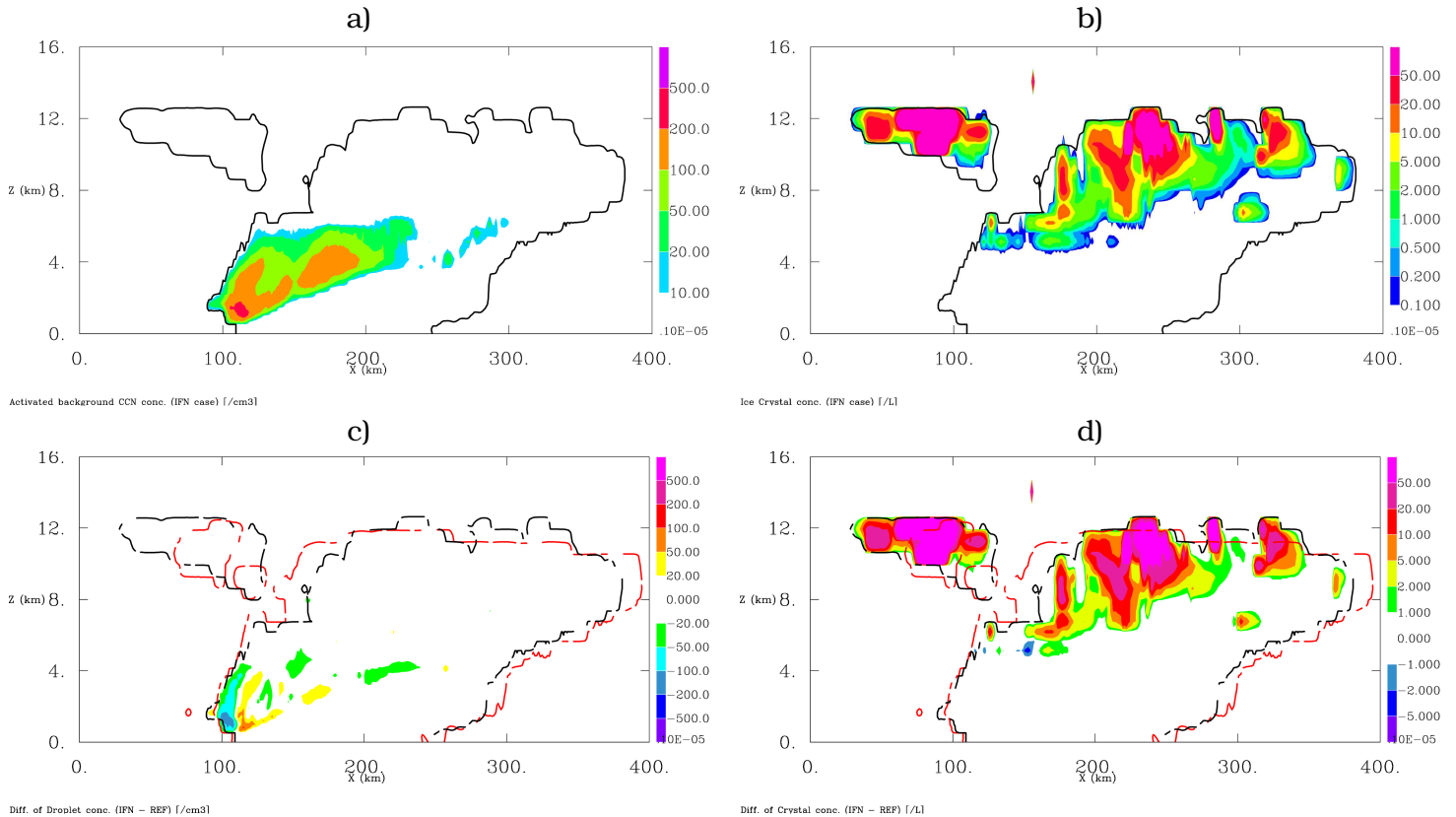


FIG. 10.4 – **a)** Concentration en *gouttelettes* [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$] dans le cas d'un panache contenant des *IN insolubles*. **b)** Concentration en *cristaux de glace* formés pour ce même cas [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$]. **c)** Anomalie de la concentration en *gouttelettes* [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$] et **d)** anomalie de la concentration en *cristaux* [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$], par rapport au cas REF. Sur ces deux dernières figures, les pointillés noirs indiquent le contour du nuage à 10^{-6} kg/kg pour le scénario avec le panache d'*IN insolubles*, et les rouges, celui du cas REF.

Ce scénario étant uniquement perturbé (par rapport à REF) par l'ajout du mode d'*IN insolubles*, la modification de la concentration en cristaux montre nettement l'effet du mode d'IN du panache. Cet effet est d'autant plus visible que la concentration en IN initialisée dans le panache est supérieure de 4 ordres de grandeur à celle du mode de *fond*, ce qui explique l'augmentation fulgurante de la concentration en cristaux de glace formés.

Bien que l'anomalie instantanée (moyennée entre 7 et 8 heures) du nombre de gouttelettes (Fig.10.4 c)) ne soit pas spectaculaire, on note une répartition assez

différente du contenu en eau liquide (Fig.10.5 a)), tout au long de la simulation. Là encore, l'argument avancé pour expliquer ces perturbations enregistrées dans la phase chaude est celui d'un développement nuageux différent en réponse à la perturbation orchestrée par l'introduction du panache, qui dans ce cas, favorise très rapidement l'initiation d'un grand nombre de petit cristaux dans la phase froide du nuage. Les courants internes modulés par la microphysique s'en trouvent alors modifiés, et contribuent à installer une phase chaude dont l'organisation spatiale, en termes de vitesse verticale et d'îlots de nucléation, est différente de celle du scénario de *référence*.

La Fig.10.5 b) montre que cette augmentation du nombre de cristaux est corrélée avec une augmentation du contenu en glace entre 2 heures et quart et 4 heures au-dessus de 4 km. Cette augmentation est moins étendue dans le temps, mais comporte des maxima plus élevés que dans le cas du panache de *CCN*. Les *IN interstitiels* ajoutés avec le panache permettent la formation d'un grand nombre de cristaux par nucléation *hétérogène*. Les conditions atmosphériques, en température et vapeur, requises pour la nucléation hétérogène sont plus facilement atteintes que celles nécessaires au déclenchement de la nucléation homogène observée dans le cas du panache de *CCN*. Ainsi, l'initiation de cristaux initialement limitée par une très faible concentration en *IN* de *fond* dans le cas REF, se trouve ici facilitée par l'introduction d'un grand nombre d'*IN* transportés dans les hautes couches, qui, s'ils sont trop petits pour sédimenter, vont tout de même fixer vapeur et eau sur-fondue lors de leur croissance, et donc augmenter le contenu en glace. Elle persiste ensuite uniquement pour des altitudes plus élevées, entre 9 et 12 km environ.

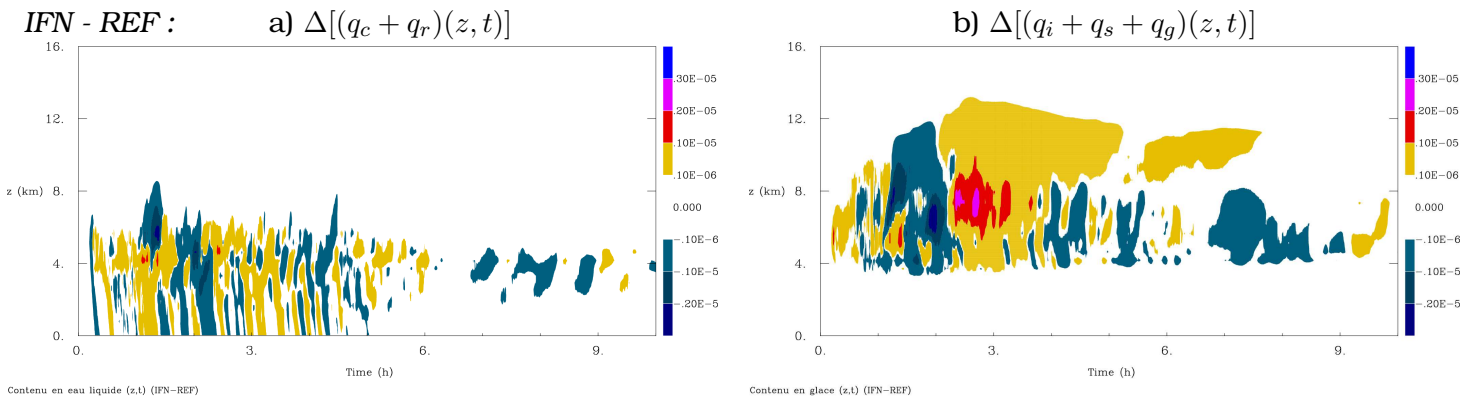


FIG. 10.5 – Légende identique à celle des Figs.10.3 a) et b), mais pour le scénario avec un panache contenant uniquement des *IN insolubles*.

10.1.3 Panache d'*IN enrobés*

Une des spécificités du schéma MIMA développé au cours de cette thèse, est la modélisation de noyaux glaçogènes vieilliss, dont les propriétés de nucléation ont été altérées au cours de leur transport. Ils se différencient des *IN insolubles* précédents par une couche adsorbée plus soluble en surface, qui leur confère des propriétés de CCN. La prise en compte de ce type de noyaux a été motivée par le nombre croissant d'observations d'*IN enrobés* dans l'atmosphère et dans les nuages (cf section 2.2.2 c -). Ainsi, dans ce dernier cas, on considère que le panache contient des *IN enrobés*, qui déclenchent la congélation de gouttelettes d'eau surfondues dans lesquelles ils sont préalablement immergés, après avoir été activés comme des CCN. Ici, seuls les CCN activés à partir des noyaux interstitiels contenus par le panache peuvent ensuite agir comme des *IN enrobés*, i.e. les noyaux de nucléation du panache sont les seuls à avoir une double capacité nucléante, de CCN et d'*IN enrobés*. La distribution de *fond* en CCN est toujours initialisée comme dans le cas REF, et celle du mode d'*IN insoluble* de *fond* également. Ceux-ci activent chacun des gouttelettes ou des cristaux, respectivement. En conséquence, comme ces aérosols ont une double capacité nucléante de CCN puis d'*IN*, on s'attend à ce que leur introduction en grand nombre au niveau de l'isotherme à 0°C, perturbe à la fois la formation des gouttelettes et celles des cristaux de glace.

Les différences enregistrées pour ce scénario, par rapport au cas REF, pour la concentration en gouttelettes d'eau nuageuse (Fig.10.6 a)) sont assez similaires à ceux tracés pour le cas du panache de CCN (cf Fig.10.2 a)) : malgré un contour nuageux à 10^{-6} kg/kg différent, la structure est spatialement et quantitativement proche. En effet, le mode d'*IN enrobés* du panache qui est ajouté ici, a des caractéristiques de CCN en tout point identiques à celles du cas de la Fig.10.2 a). La seule différence de ce scénario de panache réside dans l'aptitude de ces pseudo-CCN additionnels à nucléer des cristaux. Ce changement ne devrait en principe pas influencer sur le développement initial de la phase chaude du nuage. En revanche, la modification du contour nuageux à 10^{-6} kg/kg témoigne de la modification *indirecte* que peut imprimer le développement de la phase froide à la phase chaude : si le développement initial de la phase chaude est ici amorcé de manière identique au cas du panache de CCN, il est certain que l'aptitude des pseudo-CCN du panache, de pouvoir être actifs en tant qu'*IN enrobés*, développe la phase froide différemment. La dynamique du nuage est donc différente et va rétroactivement perturber la phase chaude par rapport au cas du panache de CCN. La concentration en cristaux tracée sur la Fig.10.6 b), plus élevée que sur la Fig.10.2 b) pour le cas du panache de

Cas d'étude 3 : système nuageux précipitant en interaction avec un panache d'aérosol

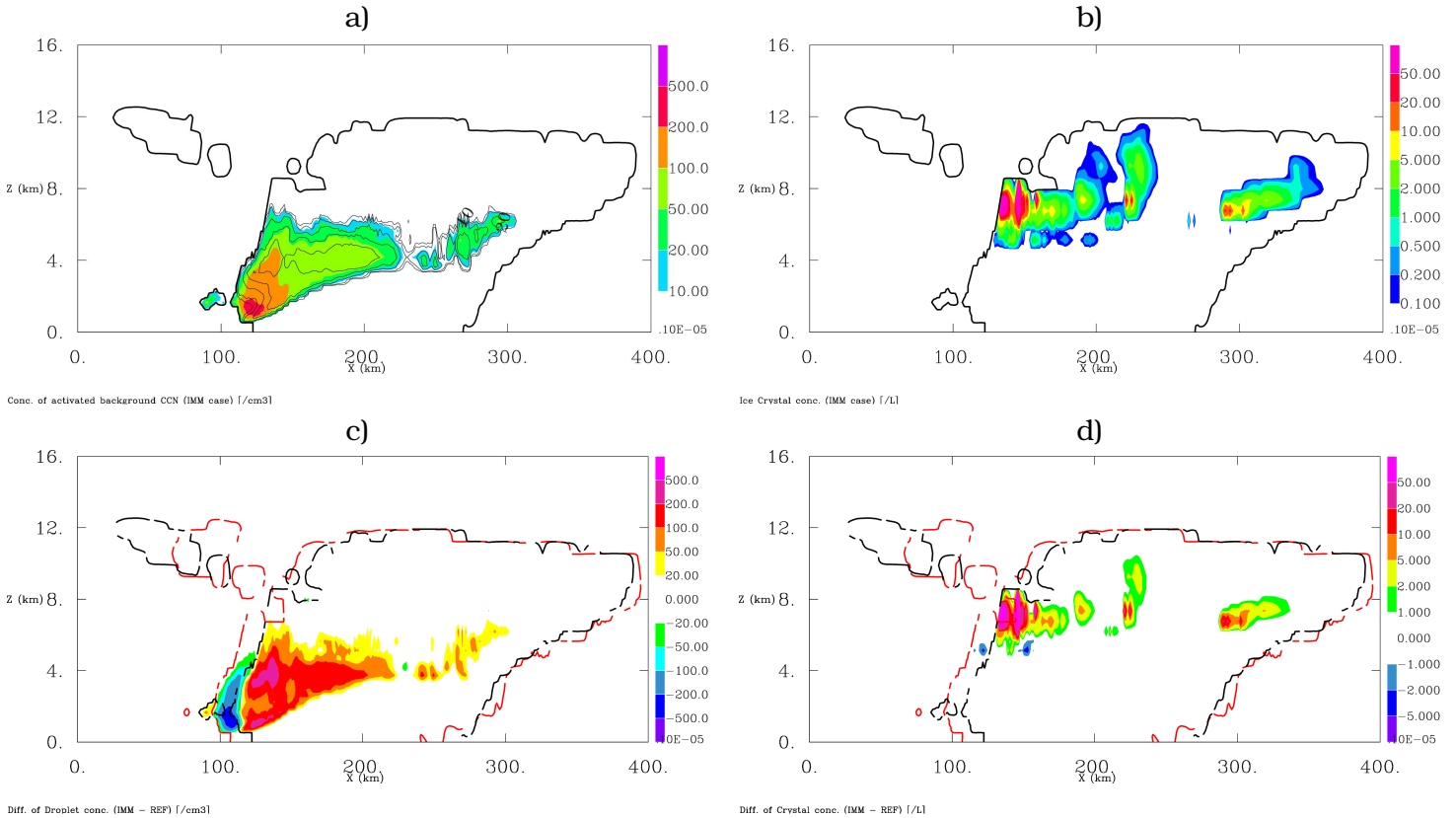


FIG. 10.6 – a) Concentrations en CCN *activés* [$\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}$] dans le cas où le panache contient des *IN enrobés* : les concentrations des CCN de fond *activés* sont en couleurs, et la concentration en CCN de pollution qui ont été *activés* en isocontours. **b)** Concentrations en cristaux formés pour le même scénario [$\text{L}^{-1}/\rho_{\text{air}}$]. **c)** Anomalie de la concentration en gouttelettes et **d)** anomalie de la concentration en cristaux pour le cas avec un panache d'*IN enrobés*, par rapport au cas REF. Sur ces deux dernières figures, les pointillés noirs indiquent le contour du nuage à 10^{-6} kg/kg pour le scénario avec le panache d'*IN enrobés*, et les rouges, celui du cas REF.

CCN, témoigne de la double aptitude de nucléation de ces pseudo-CCN/*IN enrobés* additionnels.

On enregistre une perturbation du contenu en glace (Fig.10.7 b)) moins importante que pour le cas précédent des *IN insolubles*. En effet, ces *IN enrobés* ne peuvent agir sur la phase glace en tant qu'*IN*, que s'ils ont été préalablement *activés* comme des CCN. Cela ajoute une condition à leur action en tant qu'*IN*, et réduit donc leur efficacité pour le déclenchement de la nucléation hétérogène, par rapport aux *IN* totalement insolubles.

Cette perturbation du contenu en glace est aussi moins étendue temporellement que pour le panache de CCN, mais intervient majoritairement plus tôt. Il est pro-

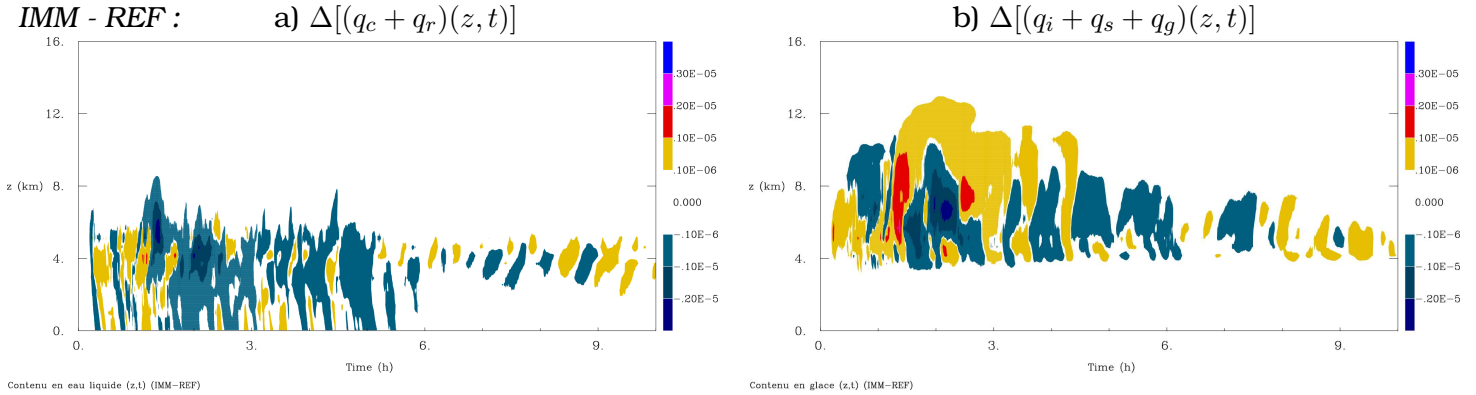


FIG. 10.7 – Légende identique à celle des Figs.10.3 **a)** et **b)**, mais pour le scénario avec un panache contenant uniquement des *IN enrobés*.

bable que l’aptitude de ces *IN enrobés* de pouvoir nucléer des cristaux par nucléation hétérogène permet d’enclencher plus tôt la formation des cristaux (par rapport au processus de nucléation homogène observé dans le cas du panache de *CCN*), pour des conditions de températures moins froides. D’autres anomalies positives (2 verticalement étendus puis 8 moins hauts) sont ensuite visibles sur la Fig.10.7 b). Tous sont corrélés avec un contenu en eau liquide visible sur la Fig.10.7 a). Les premiers (avant la 5ème heure) épisodes sont marqués par des précipitations puisque la surface colorée en orange atteint la surface (bien entendu, cela reste une moyenne sur le nuage à un temps donné), quand les suivants ne précipitent pas.

10.1.4 Effets comparés sur les précipitations

La figure 10.8 qui présente la quantité de précipitations cumulées perçue au sol au long de la simulation, pour chaque scénario, atteste que l’introduction d’un panache d’aérosols ayant des propriétés de *CCN* (courbe verte pour le panache de *CCN*, et bleu claire pour le panache d’*IN enrobés*) peut augmenter de manière significative les quantités de précipitations reçues par la surface terrestre. Comme cela a été évoqué au moment de l’analyse individuelle des scénarii précédents, ce résultat n’est pas intuitif à la lueur des connaissances actuelles relatives à l’impact des aérosols sur une structure nuageuse. Les *effets indirects* des aérosols prévoient qu’une augmentation de la concentration en noyaux de nucléation déclenche la nucléation d’un plus grand nombre d’hydrométéores primaires plus petits, qui demeurent plus longtemps dans le nuage suite à des processus de croissance plus longs. Mais si la durée de vie du nuage s’en trouve rallongée, ses propriétés précipi-

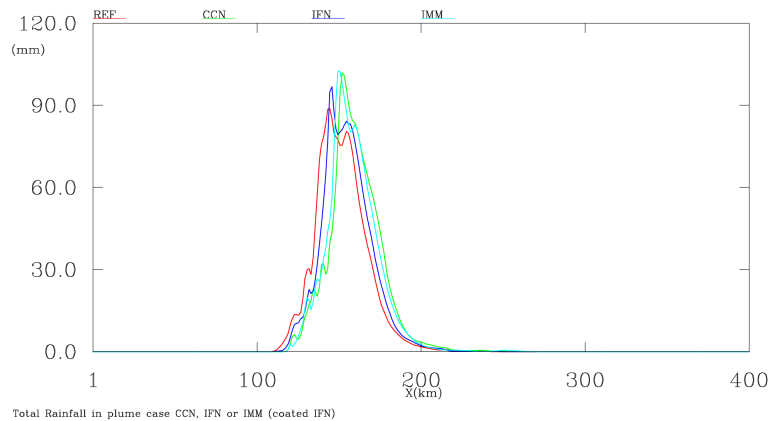


FIG. 10.8 – Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol après 8 heures de simulation. En rouge, le cumul associé à la simulation de *référence*, en vert, celui relatif au panache de *CCN*, en bleu foncé celui du cas avec un panache d'*IN insolubles* et en bleu clair celui avec le panache d'*IN enrobés*.

tantes en surface sont réduites. On obtient ici le contraire : toutes les simulations où la ligne de grain est perturbée par un panache de noyaux additionnels montrent un maximum de précipitations en surface qui dépasse celui de la simulation de *référence*. Si les cas où les aérosols contenus par le panache ont des aptitudes de *CCN* sont les plus productifs en précipitations (le maximum culmine à 101.91 mm pour le panache de *CCN* et à 102.61 mm pour celui des *IN enrobés*), il est notable que le panache contenant des *IN insolubles* les augmente aussi (maximum à 96.77 mm), par rapport au cas de *référence* (88.76 mm).

Ce phénomène peut être interprété en termes de modifications de l'organisation de la structure nuageuse. L'ajout d'un panache de noyaux concentré à raison de 1000 particules par cm^3 bouleverse instantanément les processus de nucléation en fournissant au nuage un nombre conséquent de noyaux de nucléation. Il en résulte un bouleversement (par rapport au cas REF) du développement de la structure nuageuse, et donc des circulations internes et des ascendances convectives. Ces dernières, si elles sont modifiées, ne manquent pas de modifier à leur tour l'intensité des processus d'activation des *CCN* et des *IN*. C'est une rétroaction de la dynamique sur la microphysique qui l'avait a priori modifiée.

Néanmoins on peut également se demander si les *effets indirects* non détectés ici n'interviennent pas au-delà d'un certain seuil en concentration de particules, plus élevé. Jusqu'à ce seuil l'organisation du nuage est modifiée, les ascendances convectives renforcées et le processus d'activation toujours augmenté. Après le seuil en particules, le comportement de la ligne de grain suit le sens de variation

énoncé par les *effets indirects*. C'est cet aspect que la seconde partie de ce chapitre cherche à caractériser en étudiant la sensibilité du nuage à la concentration en particules du panache.

Un autre aspect intéressant visible sur la figure 10.8 concerne la répartition spatiale des maxima pour les différents scénarii. On voit notamment que les maxima dans les cas où les noyaux contenus par le panache ont des caractéristiques de *CCN* sont légèrement décalés vers la droite. Cela s'explique si suite à l'ajout d'un tel panache, la ligne de grain a ralenti. En effet si les cellules convectives sont plus vigoureuses, leur durée de vie est plus longue et la ligne de grain stationne plus longtemps. Si l'on compare spécialement les cas de panache avec *CCN* ou avec des *IN enrobés*, la ligne de grain ralentit moins dans le second cas où la partie froide est plus développée, et donc où plus d'hydrométéores doivent s'évaporer sous la partie stratiforme, renforcer la "cold pool", le courant de retour et le courant de densité qui crée les nouvelles cellules à l'avant du système. On peut alors supposer que le renforcement de la 'cold pool' et du courant de densité, suite au nombre important de cristaux formés et transportés dans la partie stratiforme, compense la déccélération enregistrée suite au renforcement de l'activité convective. Dans l'autre cas, celui du panache de *CCN*, les cellules convectives sont renforcées mais la 'cold pool' est moins refroidie, et le courant de densité plus faible.

Dans le cas du panache exclusivement composé d'*IN insoluble*, il apparaît que les quantités de précipitations sont modulées par le développement de la phase froide et les quantités de cristaux nucléées. Là, si on enregistre un ralentissement de la ligne de grain par rapport au cas REF, le maxima n'est que très légèrement décalé. Toutefois, on peut souligner que dans les cas où les quantités d'*IN enrobés* effectifs sont déterminées par les processus d'activation de la phase chaude, les quantités de précipitations semblent principalement régies par cette dernière, comme en témoigne le cas du panache contenant des *IN enrobés* par rapport au cas du panache de *CCN* (courbe bleu claire vs courbe verte, respectivement).

10.2 Variabilité du panache

On fait une rapide étude qualitative de la sensibilité de la ligne de grain à l'altitude et à la concentration en nombre de particules du panache de pollution.

10.2.1 Sensibilité à la concentration

Plutôt que de considérer un panache de *CCN* concentré à raison de 1000 cm^{-3} , on initialise cette fois quatre panaches différents de *CCN* contenant : 10, 2000, 5000 et 10000 particules par cm^3 . Les champs de concentration en *CCN* du panache pour les cas 10 et 10000 sont montrés sur les Figs.10.9 a) et b) (les cas où la concentration en *CCN* contenus par le panache vaut 5000 et 2000 particules par cm^3 ne sont pas montrés ici) avec des échelles de couleurs différentes. On voit ici que les régions d'activation des *CCN*, repérables par les isocontours noirs qui tracent la concentration en gouttelettes nucléées (les valeurs des isocontours sont différentes, car ils sont définis sur les échelles de couleurs de leur figure respective), sont des régions moins concentrées en *CCN* interstitiels suite au lessivage par nucléation.

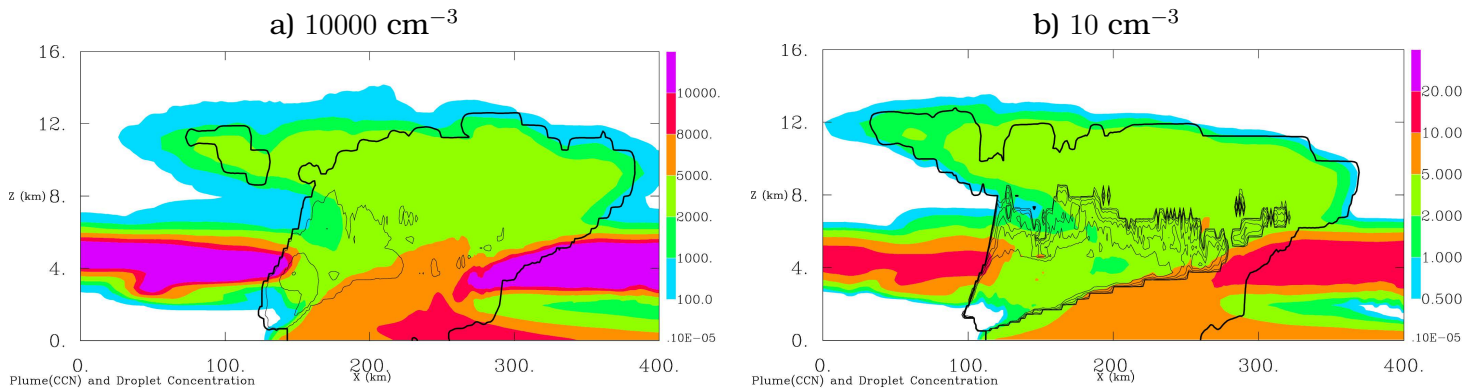


FIG. 10.9 – Superposition d'un panache de *CCN* concentré à raison de **a)** 10000 cm^{-3} et **b)** 10 cm^{-3} . La concentration en nombre de *CCN* interstitiels contenus par le panache est représentée en couleurs et la concentration en gouttelettes résultante en isocontours (toutes deux sont en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{air}]$).

Dans le cas d'un panache de *CCN* concentré à 10 cm^{-3} , la quantité de précipitations reçue au sol est quasiment identique à celle du cas REF sans panache (cf 10.10 a)). Cela n'est pas surprenant, car une concentration additionnelle en *CCN* de 10 cm^{-3} est négligeable par rapport à la concentration de la distribution en *CCN* de *fond* (égale à 490 cm^{-3}), et n'affecte donc pas le nuage.

En revanche, on voit qu'il en est autrement dans le cas d'un panache d'*IN enrobés* (cf 10.10 b)) où le panache concentré à 10 cm^{-3} augmente les précipitations reçues. En effet, dans ce cas la concentration de 10 cm^{-3} est supérieure de 2 ordres de grandeur à la concentration du mode d'*IN* de *fond* (0.1 cm^{-3}) ce qui impacte l'état de la phase froide. Ainsi, l'impact d'une variation de la *concentration* du panache

10.2 Variabilité du panache

diffère évidemment avec la *nature* des noyaux qui composent le panache (effet discuté au cours de la section précédente 10.1).

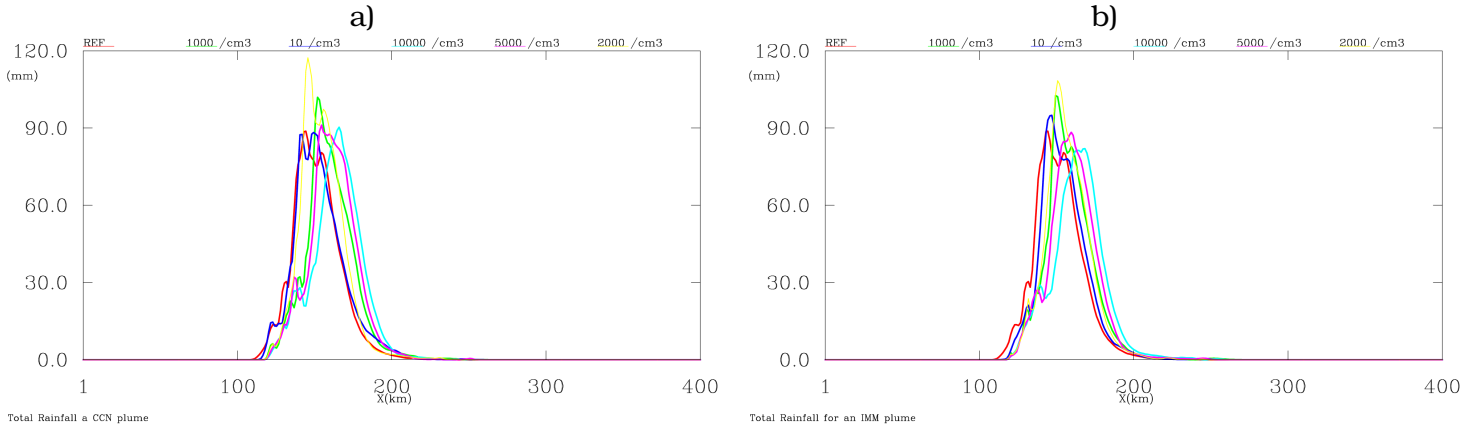


FIG. 10.10 – a) Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol après 8 heures de simulation dans le cas d'un panache de *CCN*. En rouge est tracé le cumul pour la simulation REF, en vert celui pour le cas où la concentration du panache vaut 1000 cm^{-3} , en bleu foncé pour le panache à 10 cm^{-3} , en bleu ciel pour le cas où le panache contient 10000 particules par cm^3 , en rose pour le panache à 5000 cm^{-3} et en jaune à 2000 cm^{-3} . **b)** Idem, mais pour un panache d'*IN enrobés*.

La discussion entreprise à la section précédente, à savoir si les *effets indirects* n'interviennent pas au-delà d'un certain seuil en concentration de particules, trouve ici une réponse. Sur les figures 10.10 a) et b), il est notable que les quantités de précipitation reçues au sol augmentent avec la concentration du panache (et ce, quelle que soit la nature des noyaux) pour 10, 1000 et 2000 particules par cm^3 . A partir de là, le contraire est observé : si la concentration du panache augmente encore (5000 , puis 10000 cm^{-3}), on observe une diminution des précipitations du nuage que l'on peut interpréter comme un effet inhibiteur de la concentration en particules, et donc associer aux effets indirects. La très importante concentration en particules requise avant le déclenchement de ces effets indirects s'explique vraisemblablement par le type de système nuageux considéré ici. Les effets indirects ont été formulés pour des stratocumulus, et non pour des lignes de grain avec plusieurs cellules convectives successives.

10.2.2 Sensibilité à l'altitude

On s'intéresse à la sensibilité des propriétés microphysiques de la ligne de grain à l'altitude d'un panache de *CCN* et d'un panache d'*IN enrobés* contenant 1000 particules par cm^3 . Les Figs.10.11 a) et b) illustrent la répartition du champ de

CCN interstitiels pour les cas d'un panache de CCN initialisé entre la surface et 2 km, et pour un panache de CCN initialisé entre 9 km et 16 km, respectivement. La concentration en gouttelettes formées est montrée en isocontours noirs, dont les valeurs suivent l'échelle des aérosols interstitiels. Dans le cas où le panache se situe dans les plus hautes couches de l'atmosphère, on voit que les aérosols sont transportés par les circulations internes au système (leur concentration en CCN interstitiels atteint 10 cm^{-3}), c'est pourquoi des gouttelettes sont nucléées. On rappelle que la figure 10.1 b) correspond au cas de panache intermédiaire, entre 3 km et 5 km.

Le panache intermédiaire étudié jusque là présentait l'avantage d'être centré autour de l'isotherme à 0° C , ce qui intuitivement autorisait un effet équivalent des CCN ou des IN le composant, sur le nuage. Désormais, on souhaite justement étudier la sensibilité d'un type de panache à la hauteur d'injection. Le second est donc initialisé dans les basses couches : dans ce cas les particules pourront être transportées dans tout le nuage par les ascendances convectives. Et le troisième est situé dans les plus hautes couches du nuage, de sorte que pour un panache de CCN, les noyaux n'auront accès aux zones d'activation que s'ils sont retransportés par une subsidence comme le courant de retour.

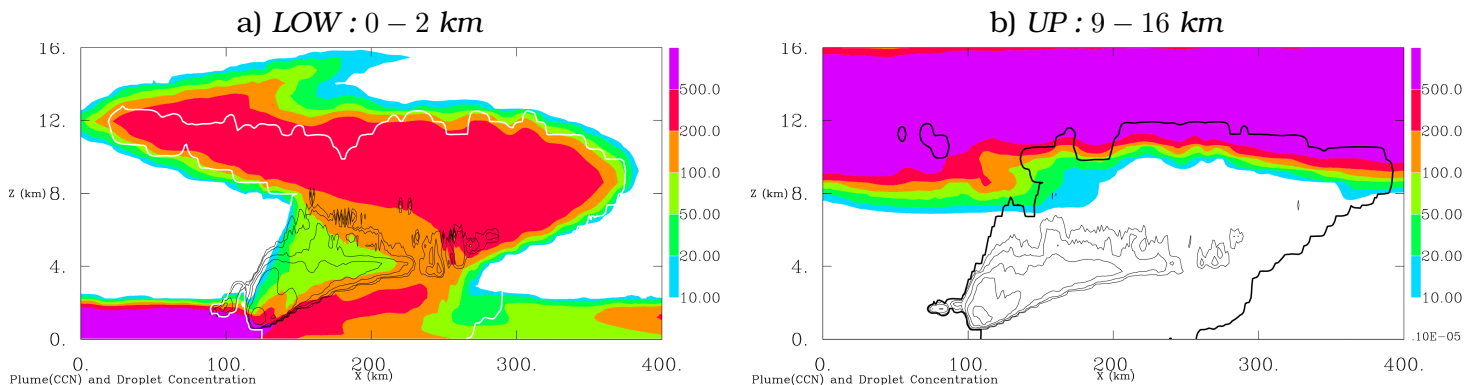


FIG. 10.11 – Concentration en nombre de CCN interstitiels du *mode de pollution* (couleurs) en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ et concentration en gouttelettes (isocontours) en $[\text{cm}^{-3}/\rho_{\text{air}}]$ pour les cas de simulations où l'on change l'altitude du panache de pollution de CCN : **a)** pour un panache initialisé entre la surface et 2 km, **b)** pour un panache initialisé entre 9 km et 16 km.

Sur les figures 10.12 a) à f), sont tracées les concentrations en cristaux de glace moyennés entre la 7ème et la 8ème heure de simulations, pour les 3 altitudes d'initialisation d'un panache de CCN (colonne gauche) et d'un panache d'IN *enrobés* (colonne droite).

10.2 Variabilité du panache

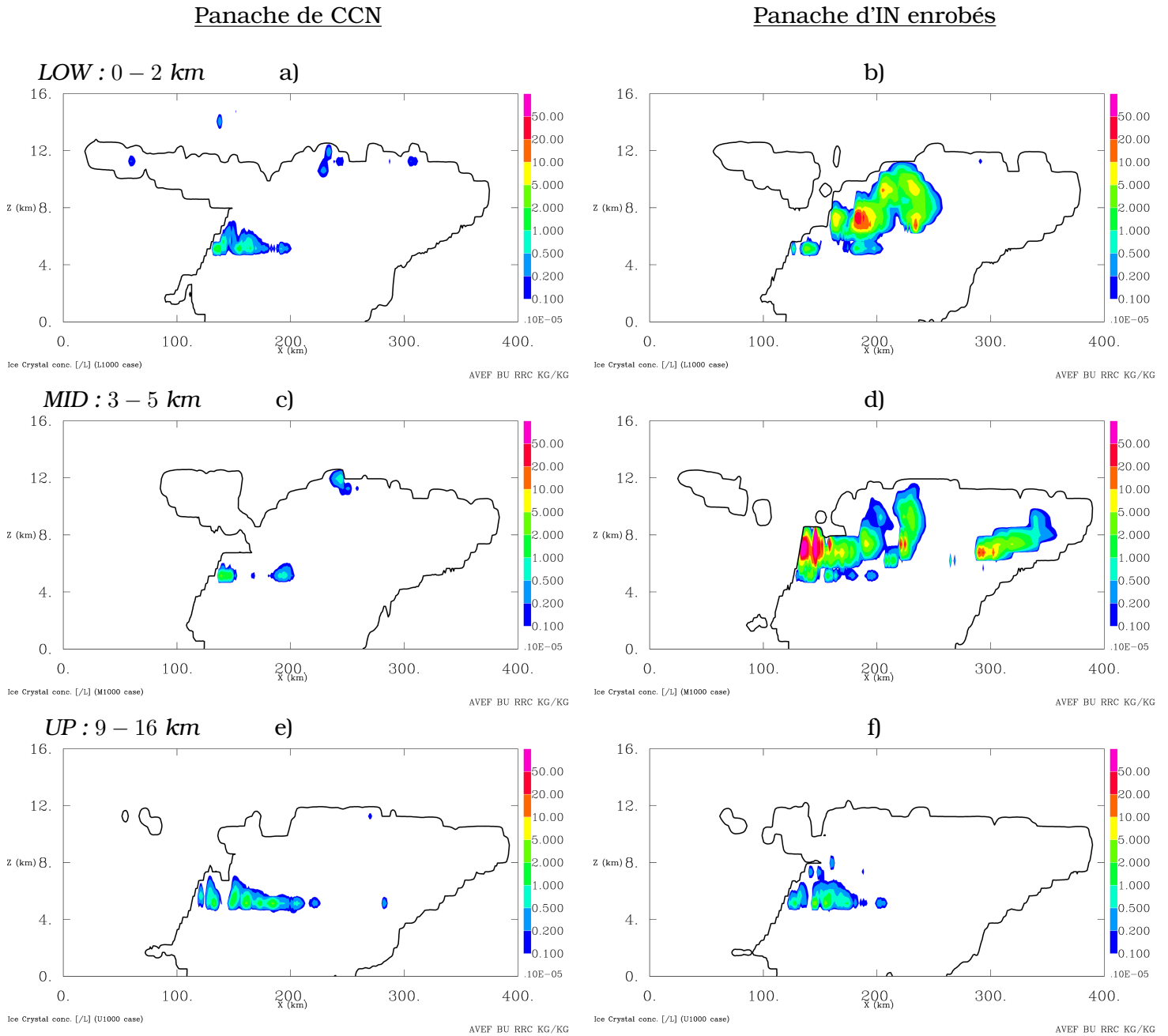


FIG. 10.12 – Concentrations en nombre de cristaux de glace formés $[L^{-1}/\rho_{air}]$ dans les cas d'un panache de pollution contenant des CCN interstitiels pour la colonne de gauche [a), c) et e)], ou des *IN enrobés* pour la colonne de droite [b), d) et f)], en fonction de l'altitude à laquelle est initialisée le panache : **a-b)** 0 – 2 km, **c-d)** 3 – 5 km ou **e-f)** 9 – 16 km.

Tout d'abord, on peut remarquer que chacun des cas montrés sur cette figure a un contour nuageux à 10^{-6} kg/kg singulier ; ce qui atteste que, pour une même nature des noyaux constituant le panache, l'altitude d'initialisation modifie le dé-

veloppement de la structure nuageuse. Deuxièmement, pour une même nature des noyaux constituant le panache (i.e. si l'on analyse les figures par colonne), on observe une variation (répartition spatiale et quantité) du champ de concentration en cristaux.

Les cumuls de précipitation des Figs.10.13 a) et b), obtenus pour les 3 altitudes d'initialisation du panache, dans les cas d'un panache de *CCN* et d'*IN enrobés*, respectivement, supportent l'effet de variation des propriétés microphysiques de la ligne de grain avec l'altitude d'initialisation.

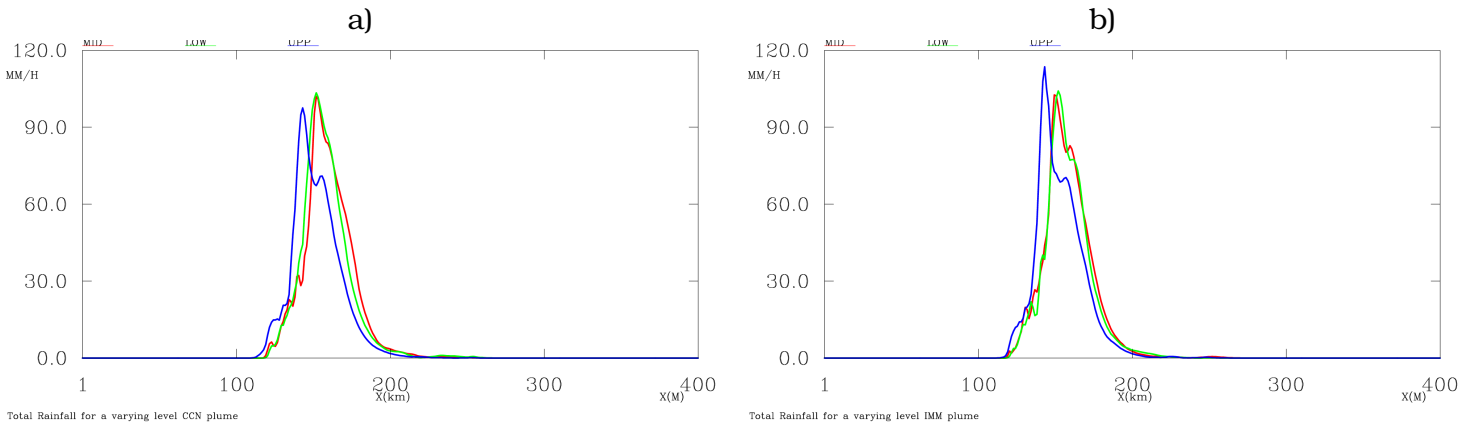


FIG. 10.13 – Cumul des précipitations totales (i.e. comprenant toutes les espèces précipitantes) au sol après 8 heures de simulation : **a)** dans le cas d'un panache de *CCN*, **b)** pour un panache d'*IN enrobés*. En rouge, le cumul pour la simulation où le panache de 2 km est centré sur l'isotherme 0°C (à ~ 4 km), en vert pour la simulation où le panache est situé dans les plus basses couches entre la surface et 2 km, et en bleu dans le cas où le panache est initialisé entre 9 km et 16 km.

Enfin, là encore il est notable que la sensibilité de l'initialisation de l'altitude du panache diffère avec le type de noyau de nucléation considéré (*CCN*, *IN* insolubles ou *IN enrobés*) : l'effet de modification des champs de cristaux formés avec l'altitude d'initialisation du panache de pollution est d'autant plus visible pour des *IN enrobés* (colonne de droite de la Fig.10.13) que pour un panache de *CCN* (colonne de gauche de cette même figure). Cette sensibilité à la nature des noyaux se retrouve lorsque l'on compare les cumuls de précipitations au sol dans les deux cas de panache, Figs.10.13 a) et b). Sur chacune des figures, les précipitations reçues en surface sont très proches pour le cas d'un panache injecté dans les basses couches et pour celui injecté à mi-hauteur. Seul un très léger décalage du maximum est visible pour le cas d'un panache d'*IN enrobés*, ce qui s'explique par la double capacité nucléante de ces noyaux : les gouttelettes surfondues congèlent plus rapidement par nucléation hétérogène (que par nucléation homogène pour le cas du panache

de CCN) et forment des plus petits cristaux avec un taux d'évaporation sous la partie stratiforme différent qui doit modifier les caractéristiques de la "cold pool" et du courant de densité.

Toutefois, pour un panache initialisé bien au-dessus de l'isotherme à 0° C, une différence notable est visible entre les deux natures de noyaux de nucléation. Le maximum qui culmine à 97.55 mm pour le panache de CCN atteint 113.54 mm si les noyaux affectent aussi la phase glace. Les noyaux (quels qu'ils soient) initialisés en hauteur doivent être retransportés dans les basses couches où la température est propice à l'activation des CCN. On pense que les faibles quantités de CCN activés forment des gouttelettes dont une partie est transportée dans la phase glace et, dans le cas d'un panache d'*IN enrobés*, qui est plus rapidement convertie en glace. La différence entre ces deux simulations est le processus prédominant de nucléation de la glace à partir des noyaux du panache : la nucléation homogène dans le cas du panache de CCN, et la nucléation hétérogène dans le cas des *IN enrobés*. La plus forte valeur de précipitations observée dans le cas des *IN enrobés* montre que le déclenchement de la nucléation hétérogène des cristaux à des températures plus chaudes donne plus de temps aux cristaux pour croître dans le nuage, et qu'ainsi la quantité de cristaux qui atteignent une taille suffisante à la sédimentation est plus grande. Cet effet semble souscrire à l'hypothèse de l'effet indirect particulier aux IN : dernièrement, Lohmann [2002] a proposé un effet indirect lié à l'abondance relative de ces noyaux glaçogènes dans l'atmosphère appelé "the glaciation indirect effect" [Hoose et al., 2008b; Lohmann, 2002; Lohmann and Hoose, 2009], ou, plus généralement appelé "the ice indirect effect" par DeMott et al. [2010]. Le scénario prédit une glaciation plus rapide du système nuageux, à la suite d'une augmentation de la concentration en noyaux glaçogènes. L'augmentation du nombre de noyaux glaçogènes disponibles pour la nucléation de la glace facilite les processus de congélation. Cela a pour effet d'augmenter le taux de précipitation (plus de précipitations solides), la couverture nuageuse a tendance à diminuer plus rapidement, le temps de vie du nuage est plus court et l'albedo nuageux est réduit.

10.3 Conclusions

En résumé, les différents scénarii de panache d'aérosols étudiés ici comme une perturbation de la simulation de *référence*, montrent la sensibilité de cette ligne de grain à la fois à la **hauteur d'injection** et au **contenu en particules** du panache additionnel.

Toutefois l'analyse a montré que ces effets varient de manière importante avec la **nature** des noyaux de nucléation, qu'ils soient actifs en tant que *CCN*, *IN enrobés* ou *IN insolubles*. Leurs impacts respectifs sur les propriétés précipitantes et le développement du système nuageux est différent, selon que ces noyaux affectent plus la microphysique de la phase chaude ou celle de la phase froide.

Par ailleurs, l'intérêt d'un modèle complet a été démontré par l'étude de ces cas, pour lesquels microphysique et dynamique du nuage ne cessent d'interagir, et où les perturbations imprimées à la phase froide du nuage (via un panache d'*IN*, par exemple) peuvent à leur tour modifier le développement du nuage dans son ensemble, et indirectement modifier la phase chaude par rapport au scénario de *référence*.

Conclusions et perspectives

Cette thèse décrit un schéma de physique des nuages à deux moments (MIMA pour "MIxte Multimodal Aerosol") pour lequel l'accent est mis sur un traitement multimodal de l'activation des CCN et sur un schéma original de nucléation hétérogène des IN inspiré de celui de Phillips et al. [2008]. L'originalité de notre étude réside dans l'approche couplée : physique des nuages et bilan des particules d'aérosol. En effet, au schéma de physique des nuages proprement dit, est adjointe une équation de bilan de chaque mode d'aérosol où, outre le transport et les processus d'activation, sont pris en compte le lessivage des aérosols par les gouttes de pluie. Ce dernier point a fait l'objet d'une étude particulière pour la méthode d'intégration numérique employée [Berthet et al., 2010]. Le schéma final implanté dans le modèle MésoNH, peut être initialisé pour un nombre quelconque de modes de CCN et d'IN dont chaque concentration est régie par une équation de bilan spécifique. Ainsi, on a construit un schéma de physique des nuages qui répond au mieux aux caractéristiques initiales (choix des propriétés CCN ou IN, distribution en taille selon une loi lognormale, répartition spatiale ou profil vertical) de chaque type d'aérosol introduit dans le domaine de simulation.

Concrètement, le traitement des particules d'aérosol, CCN et IN, mobilise un couple de variables pronostiques qui suit l'évolution spatiale et temporelle de la concentration en nombre, à la fois pour les particules activées et celles qui sont non-activées (ou interstiellées), et ceci pour chaque mode. Ce procédé permet d'estimer sans ambiguïté le nombre de particules fraîchement activées en chaque point et à chaque pas de temps, qui correspondent à des incréments, de concentration en gouttelette ou de concentration en cristaux de glace primaire, selon le cas. MIMA inclut le traitement des IN enrobés (ou âgés), c'est à dire des IN sur lesquels se sont condensés des produits solubles, qui apparaissent donc d'abord comme des CCN partiellement solubles puis des IN agissant comme agent nucléant par immersion dans les gouttelettes. La prise en compte de la double capacité nucléante de ces

IN enrobés trouve naturellement sa place dans cette manière de traiter l'activation des aérosols : en termes de bilan, les cristaux formés à partir de ces IN enrobés constituent un gain pour la glace et un puits pour les gouttelettes contenant ce type d'IN. Ceci constitue une des originalités de notre schéma.

L'équation de bilan des aérosols non-activés inclut un terme de lessivage par la pluie dont l'intégration prend explicitement en compte la distribution dimensionnelle du mode d'aérosol, CCN ou IN. Ainsi muni d'un bilan réaliste où figurent des termes essentiels comme le transport et les pertes par activation et par lessivage, chaque mode d'aérosol est entièrement reconstitué localement et à chaque instant par la connaissance de sa concentration. On a donc ici développé une méthode rigoureuse pour, en particulier, traiter l'activation d'un champ d'aérosol hétérogène et réaliste.

Ce type de schéma de physique des nuages est destiné à traiter tout type de nuage chaud, glacé et en phase mixte se développant dans une atmosphère stratifiée, où peuvent se superposer plusieurs modes d'aérosol. Le schéma est également adapté à la simulation de l'effet causé par une perturbation localisée et quelconque du champ d'aérosols, qui s'ajoute au mode de fond (à l'exemple des "ship tracks" pour les nuages stratiformes chauds ou de couches de poussières, de cendre ou tout autre type d'émissions de surface happées par des nuages convectifs).

Le schéma MIMA est implanté dans le modèle MésoNH d'atmosphère à haute résolution. Il est illustré sur un cas d'ensemble nuageux produit par un écoulement sur orographie complexe (cas de la "Jungfraujoch" proposé pour l'exercice d'inter-comparaison du WMO en 2008) et sur le cas d'une ligne de grain de l'expérience COPT81 qui simule l'évolution d'un système convectif organisé sur terrain plat. La série d'expériences "Jungfraujoch" est focalisée sur les caractéristiques du schéma de nucléation hétérogène de la glace comportant une comparaison avec une formulation standard adoptée par la plupart des schémas de nuage (formule de Meyers et al. [1992]) suivie d'une étude de sensibilité à la concentration initiale en IN de 1, 10 et 100 particules par litre, et au type d'IN (poussière minérale, carbone-suie et bio-organique). Ce cas de nuage orographique a mis en évidence une baisse importante des quantités de cristaux prédites suite à la prise en compte des IN réellement disponibles dans l'atmosphère et de leurs caractéristiques, dans la formulation de la nucléation hétérogène de la glace. De plus, les concentrations en cristaux modélisées à partir de la paramétrisation implantée dans MIMA sont d'un ordre de grandeur cohérent avec les mesures, lorsque l'on considère l'effet de "shattering" récemment formulé pour les mesures de petits cristaux.

Le second cadre expérimental de COPT81 est destiné à mettre en relief l'effet du lessivage des aérosols par la pluie et l'effet d'un profil vertical initial homogène ou stratifié des trois modes de CCN.

Ce type de simulation est ensuite étendu au cas d'une perturbation formée par un panache de poussières composé exclusivement de CCN, d'IN insolubles ou d'IN enrobés (IN âgés) qui interagit continûment avec la ligne de grain. Le but de cette série d'expérience est d'évaluer l'impact tant en localisation qu'en intensité, d'une forte perturbation en aérosol causée par une couche externe d'aérosol sur un système précipitant organisé. Ces différents cas ont mis en avant la complexité de l'interprétation des effets des aérosols sur une structure nuageuse, en raison de l'effet de couplage entre les processus microphysiques déclenchés par ces particules et la dynamique du système. Lors de la modélisation de nuages en phase mixte, l'intensité de l'interaction entre aérosols et dynamique est liée à la prise en compte de la phase glace. Considérer cette phase glace accroît le nombre de processus microphysiques qui peuvent interagir avec la dynamique en modulant (principalement via la "cold pool" pour la ligne de grain) la circulation interne, les ascendances convectives et donc l'intensité de la convection. De ces résultats préliminaires on peut conclure, à l'image de l'étude menée par Stevens and Feingold [2009], que la sensibilité des nuages et des précipitations à une perturbation du champ d'aérosol ne se laisse pas lire à travers le simple scénario des effets indirects, mais qu'elle dépend de processus d'interactions plus complexes entre aérosols-microphysique et dynamique qui varient avec le type de nuage et le type de noyaux. Par exemple, les scénarii de ligne de grain ont montré la sensibilité de la phase glace au type d'IN considéré. Si l'efficacité des IN insolubles pour nucléer des cristaux est la plus importante, les IN enrobés déclenchent plus de précipitations au sol en perturbant à la fois la phase chaude et la phase froide du nuage. Toutefois, l'intensité de ces effets est modulée par l'altitude d'injection de la source externe en aérosols : par exemple, l'effet des IN enrobés est de beaucoup diminué si le panache qui les contient n'est pas directement en contact avec la phase chaude du nuage, car dans ce cas, les particules nécessitent d'abord d'être transportées par les courants avant de pouvoir être activées en tant que CCN, puis en tant qu'IN. Les modèles de méso-échelle à haute résolution sont des outils nécessaires pour étudier cette multitude d'interactions, variables avec chaque système nuageux, puisqu'ils sont les seuls à avoir la résolution adaptée à la fois aux processus de physique des nuages (via des paramétrisations des transferts microphysiques) et à ceux de la dynamique interne des nuages.

Ce travail de thèse ne constitue qu'un tout premier jalon pour l'étude numérique de l'interaction aérosols-nuages à haute résolution. En premier lieu, la mise en place d'un schéma de physique des nuages à deux moments comportant une description avancée des processus d'activation des CCN et des IN, soit la formation directe des particules nuageuses, et le suivi du bilan multimodal des aérosols, est maintenant acquise. Par la suite, ce schéma pourra être facilement couplé à des modules d'émissions, naturelles et anthropiques pour améliorer le réalisme de scénarios complexes conduisant à charger l'atmosphère en aérosols : simulation de ship-tracks, pyroconvection, nuages ou panaches de poussières volcaniques et désertiques, îlots urbains pollués, etc. Plus généralement ce schéma de physique des nuages invite aussi à avancer dans de nouvelles directions pour en améliorer les possibilités. On pense ici à la capacité de :

1. générer le spectre d'activation de chaque mode de CCN ayant une composition chimique complexe (plusieurs types d'ions, présence de composés organiques) et quelconque a priori. Le but ici est d'élargir le schéma d'activation des CCN à des sels non-purs c'est à dire résultant essentiellement d'un mélange de nitrates, chlorures, carbonates et sulfates. Le rôle et l'effet des espèces organiques dissoutes doit aussi être précisé dans les termes de Raoult (dissociation électrolytique) et de Kelvin (effet surfactant qui modifie la tension de surface du CCN) dans le cadre de la théorie de Köhler.
2. pouvoir initialiser objectivement les concentrations d'un champ complet d'aérosols de fond à partir de cartes produites par la radiométrie IR couplées à des profils verticaux de rétrodiffusion lidar. La difficulté ici est de faire émerger un signal attribuable à un mode d'accumulation et à un mode grossier dont on serait capable de donner les paramètres de distribution en taille. Toutefois la partition CCN-IN reste pour l'instant très problématique.
3. pouvoir adapter des sorties de modèles globaux de climat qui peuvent fournir une information assez précise sur chaque mode d'aérosol en équilibre avec les sources, le transport et la chimie hétérogène.

Ainsi, ce premier travail intègre, dans le modèle MésoNH, les connaissances actuelles des processus d'activation des noyaux de nucléation. En se projetant sur des perspectives plus lointaines, l'amélioration des mesures de concentrations en aérosols et en cristaux de glace, et leur systématisation, pourrait permettre l'établissement d'une théorie générale de la nucléation hétérogène de la glace, à l'image de la théorie de Köhler pour l'activation des CCN. Une telle théorie permettrait

d'améliorer la modélisation de la phase glacée des nuages et donc d'affiner l'estimation des interactions complexes entre aérosol-microphysique et dynamique.

Bibliographie

- Abdul-Razzak, H., Ghan, S. J., Riviera-Carpio, C., 1998. A parameterization of aerosol activation : 1. Single aerosol type. *J. Geophys. Res.* 103 (D6), 6123–6131.
- Albrecht, B. A., 1989. Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness. *Science* 245, 1227–1230.
- Andreae, M. O., 2007. Aerosols before pollution. *Science* 315, 50–51.
- Andreae, M. O., Rosenfeld, D., 2008. Aerosol–cloud–precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols. *Earth-Science Reviews* 89, 13–41.
- Andronache, C., 2003. Estimated variability of below-cloud aerosol removal by rainfall for observed aerosol size distributions. *Atmos. Chem. Phys.* 3, 131–143.
- Barahona, D., Nenes, A., 2009a. Parameterizing the competition between homogeneous and heterogeneous freezing in cirrus cloud formation – monodisperse ice nuclei. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 369–381.
- Barahona, D., Nenes, A., 2009b. Parameterizing the competition between homogeneous and heterogeneous freezing in ice formation - polydisperse ice nuclei. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 5933–5948.
- Berthet, S., Leriche, M., Pinty, J.-P., Cuesta, J., Pigeon, G., 2010. Scavenging of aerosol particles by rain in a cloud resolving model. *Atmospheric Research* 96, 325–336.
- Bigg, E. K., 1953. The formation of atmospheric ice crystals by the freezing of droplets. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 79.
- Caniaux, G., Redelsperger, J.-L., Lafore, J.-P., 1994. A numerical study of the stratiform region of a fast-moving squall line. Part I : General description and water and heat budgets. *J. Atmos. Sci.* 51, 2046–2074.

- Caro, D., octobre 2002. Conception et évaluation d'un schéma microphysique chaud et d'un schéma de capture et de lessivage des aérosols. Ph.D. thesis, Université Blaise Pascal - Clermont II, Clermont-Ferrand, France.
- Chen, Y., Kreidenweis, S. M., McInnes, L. M., Rogers, D. C., DeMott, P. J. ., 1998. Single particle analyses of ice nucleating aerosols in the upper troposphere and lower stratosphere. *Geophys. Res. Lett.* 25 (9), 1391–1394.
- Chou, C., Formenti, P., Maille, M., Ausset, P., Helas, G., Harrison, M., Osborne, S., 2008. Size distribution, shape, and composition of mineral dust aerosols collected during the African Monsoon Multidisciplinary Analysis Special Observation Period O : Dust and Biomass-Burning Experiment field campaign in Niger, january 2006. *J. Geophys. Res.* 113.
- Cohard, J.-M., Pinty, J.-P., 2000. A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. I : Description and selective tests. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 126, 1815–1842.
- Cohard, J.-M., Pinty, J.-P., Bedos, C., 1998. Extending Twomey's analytical estimate of nucleated cloud droplet concentration from CCN spectra. *J. Atmos. Sci.* 55, 3348 – 3357.
- Cohard, J.-M., Pinty, J.-P., Suhre, K., 2000. On the parameterization of activation spectra from CCN microphysical properties. *J. Geophys. Res.* 105, 11753–11766.
- Colella, P., Woodward, P., 1984. The piecewise parabolic method (PPM) for gas-dynamical simulations. *J. Comput. Phys.* 54, 174–201.
- Connolly, P. J., Moehler, O., Field, P. R., Saathoff, H., Burgess, R., Wagner, R., Choulaton, T., Gallagher, M., 2009. Studies of heterogeneous freezing by three different desert dust samples. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 2805–2824.
- Cooper, W. A., 1986. Ice initiation in natural clouds. *Precipitation enhancement-A scientific challenge*. Meteor. Monogr. 43 (AMS), 29–32.
- Cotton, R. J., Field, P. R., 2002. Ice nucleation characteristics of an isolated wave cloud. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 128, 2417–2437.
- Cotton, W. R., Tripoli, G. J., Rauber, R. M., Mulvihill, E. A., 1986. Numerical simulation of the effects of varying ice crystal nucleation rates and aggregation processes on orographic snowfall. *Journal of Climate and Applied Meteorology* 25, 1658–1680.

- Croft, B., Lohmann, U., Martin, R. V., Stier, P., Wurzler, S., Feichter, J., Posselt, R., Ferrachat, S., 2009. Aerosol size-dependent below-cloud scavenging by rain and snow in the echam5-ham. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 4653–4675.
- de Boer, G., Hashino, T., Tripoli, G. J., 2010. Ice nucleation through immersion freezing in mixed-phase stratiform clouds : theory and numerical simulations. *Atmospheric Research* 96, 315–324.
- DeMott, P. J., Cziczo, D. J., Prenni, A. J., Murphy, D. M., Kreidenweis, S. M., Thomson, D. S., Borys, R., Rogers, D. C., 2003a. Measurements of the concentration and composition of nuclei for cirrus formation. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 100, 14655–14660.
- DeMott, P. J., Prenni, A. J., Liu, X., Kreidenweis, S. M., Petters, M. D., Twohy, C. H., Richardson, M. S., Eidhammer, T., Rogers, D. C., 2010. Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* 107 (25), 11217–11222.
- DeMott, P. J., Sassen, K., Baumgardner, M. R., Rogers, D., Prenni, S. D. B. A. J., Kreidenweis, S. M., 2003b. African dust aerosols as atmospheric ice nuclei. *Geophys. Res. Lett.* 30(14), 1732.
- Diehl, K., Simmel, M., Wurzler, S., 2006. Numerical sensitivity studies on the impact of aerosol properties and drop freezing modes on the glaciation, microphysics, and dynamics of clouds. *J. Geophys. Res.* 111 (D07202).
- Diehl, K., Wurzler, S., 2004. Heterogeneous drop freezing in the immersion mode : model calculations considering soluble and insoluble particles in the drops. *J. Atmos. Sci.* 61, 2063–2072.
- Durant, A. J., Shaw, R. A., 2005. Evaporation freezing by contact nucleation inside-out. *Geophys. Res. Lett.* 32 (L20814).
- Eidhammer, T., DeMott, P. J., Kreidenweis, S., 2009. A comparison of heterogeneous ice nucleation parameterizations using a parcel model framework. *J. Geophys. Res.* 114 (D06202).
- Eyring, V., Isaksen, I. S., Berntsen, T., Collins, W. J., Corbett, J. J., Endresen, O., Grainger, R. G., Moldanova, J., Schlager, H., Stevenson, D. S., 2009. Transport impacts on atmosphere and climate : Shipping. *Atmospheric Environment In Press, Corrected Proof*, –.

- URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/B6VH3-4WB3NHD-1/2/3921f0f2a059e43b8347acf53c78b7d1>
- Feingold, G., Kreidenweis, S. M., 2000. Does cloud processing of aerosol enhance droplet concentrations? *J. Geophys. Res.* 105, 24351–24361.
- Feng, J., 2007. A 3-mode parametrization of below-cloud scavenging of aerosols for use in atmospheric dispersion models. *Atmos. Environ.* 41, 6808–6822.
- Field, P. R., Cotton, R. J., Noone, K., Glantz, P., Kaye, P. H., Hirst, E., Greenaway, R. S., Jost, C., Gabriel, R., Reiner, T., Andreae, M., Saunders, C. P. R., Archer, A., Choularton, T., Smith, M., Brooks, B., Hoell, C., Bandy, B., Johnson, D., Heymsfield, A., 2001. Ice nucleation in orographic wave clouds : Measurements made during INTACC. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 127, 1493–1512.
- Fletcher, N. H., 1958. Size effect in heterogeneous nucleation. *Journal of Chemical Physics* 29, 572–576.
- Fletcher, N. H., 1962. *The physics of rain clouds*. Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK.
- Flossmann, A. I., 1998. Interaction of aerosol particles and clouds. *J. Atmos. Sci.* 55, 879–887.
- Flossmann, A. I., Hall, W. D., Pruppacher, H. R., 1985. A theoretical study of the wet removal of atmospheric pollutants. Part I : The redistribution of aerosol particles captured through nucleations and impaction scavenging by growing cloud drops. *J. Atmos. Sci.* 42, 582–606.
- Foote, G. B., Du Toit, P. S., 1969. Terminal velocity of raindrops. *J. Appl. Meteor.* 8, 249–253.
- Fountoukis, C., Nenes, A., 2005. Continued development of a cloud droplet formation parameterization for climate models. *J. Geophys. Res.* 110 (D11212).
- Fridlind, A. M., Ackerman, A. S., McFarquhar, G., Zhang, G., Poellot, M. R., DeMott, P. J., Prenni, A. J., Heymsfield, A. J., 2007. Ice properties of single-layer stratocumulus during the Mixed-Phase Arctic Cloud Experiment : 2. Model results. *J. Geophys. Res.* 112 (D24202).
- Hallett, J., Mossop, S. C., 1974. Production of secondary ice particles during the riming process. *Nature* 249, 26–28.

- Harrington, J. Y., Meyers, M. P., Walko, R. L., Cotton, W. R., 1995. Parameterization of ice crystal conversion processes due to vapor deposition for mesoscale models using double-moment basis functions. Part I : Basic formulation and parcel model results. *J. Atmos. Sci.* 52, 4344–4366.
- Henzing, J. S., Olivié, D. J. L., van Velthoven, P. F. J., 2006. A parametrization of size resolved below cloud scavenging of aerosols by rain. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 3363–3375.
- Hoose, C., Lohmann, U., Bennartz, R., Lesins, G., 2008a. Global simulations of aerosol processing in clouds. *Atmos. Chem. Phys.* 8, 6939–6963.
- Hoose, C., Lohmann, U., Erdin, R., Tegen, I., 2008b. The global influence of dust mineralogical composition on heterogeneous ice nucleation in mixed-phase clouds. *Env. Res. Lett.* 3, 025003.
- Hoose, C., Lohmann, U., Stier, P., Verheggen, B., Weingartner, E., 2008c. Aerosol processing in mixed-phase clouds in ECHAM5-HAM : Model description and comparison to observations. *J. Geophys. Res.* 113 (D07210).
- Houze, R. A., 1993. *Cloud Dynamics*. International Geophysics Series, Academic Press Inc.
- IAPSAG, 2007. WMO/IUGG International Aerosol Precipitation Science Assessment Group (IAPSAG) Report : Aerosol Pollution Impact on Precipitation : A Scientific Review. Geneva.
- Iguchi, T., Nakajima, T., Khain, A. P., Saito, K., Takemura, T., Suzuki, K., 2008. Modeling the influence of aerosols on cloud microphysical properties in the east Asia region using a mesoscale model coupled with a bin-based cloud microphysics scheme. *J. Geophys. Res.* 113 (D14215).
- Jaenicke, R., 2005. Abundance of cellular material and proteins in the atmosphere. *Science* 308, 73.
- Jiang, H., Feingold, G., 2006. Effect of aerosol on warm clouds : Aerosol-cloud-surface flux feedbacks in a new coupled large eddy model 111 (D01202), 10.1029/2005JD006138.
- Kaercher, B., Lohmann, U., 2002. A parameterization of cirrus cloud formation : Homogeneous freezing of supercooled aerosols. *J. Geophys. Res.* 107.

- Kessler, E., 1969. On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulations. *Meteor. Monogr.* 32, 84 pp.
- Khain, A., Lynn, B., 2009. Simulation of a supercell storm in clean and dirty atmosphere using weather research and forecast model with spectral bin microphysics. *J. Geophys. Res.* 114 (D19209).
- Khain, A., Ovtchinnikov, M., Pinsky, M., Pokrovsky, A., Krugliak, H., 2000. Notes on the state-of-the-art numerical modeling of cloud microphysics. *Atmospheric Research* 55, 159–224.
- Khvorostyanov, V., Curry, J., 2004. The theory of ice nucleation by heterogeneous freezing of deliquescent mixed CCN. Part I : Critical radius, energy, and nucleation rate. *J. Atmos. Sci.* 61, 2676–2691.
- Khvorostyanov, V., Curry, J., 2009. Critical humidities of homogeneous and heterogeneous ice nucleation : Inferences from extended classical nucleation theory. *J. Geophys. Res.* 114 (D04207).
- Khvorostyanov, V., Morrison, H., Curry, J. A., Baumgardner, D., Lawson, P., 2006. High supersaturation and modes of ice nucleation in thin tropopause cirrus : Simulation of the 13 July 2002 Cirrus Regional Study of Tropical Anvils and Cirrus Layers case. *J. Geophys. Res.* 111 (D02201).
- Klein, H., Nickovic, S., Haunold, W., Bundke, U., Nillius, B., Ebert, M., Weinbruch, S., Schuetz, L., Levin, Z., Barrie, L. A., Bingemer, H., 2010. Saharan dust and ice nuclei over central Europe. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 10, 14993–15022.
- Koch, D., Genio, A. D. D., 2010. Black carbon semi-direct effects on cloud cover : review and synthesis. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 7685–7696.
- Koehler, H., 1936. The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. *Trans. Farad. Soc.* 32, 1152–1161.
- Koop, T., Luo, B., Tsias, A., Peter, T., 2000. Water activity as the determinant for homogeneous ice nucleation in aqueous solutions. *Nature* 406, 611–614.
- Korolev, A., Isaac, G. A., 2005. Shattering during sampling by OAPs and HVPS. Part I : snow particles. *J. Atmos. Oceanic Technol.* 22, 528–542.
- Lafore, J., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Hereil, P., Mascart, P., Pinty, V. M. J., Redelsperger, J., Richard, E., de Arellano, J. V.-G., 1998. The Meso-NH atmospheric simulation system. Part I : adiabatic formulation and control simulations. *Annales Geophysicae* 16, 90–109.

BIBLIOGRAPHIE

- Lafore, J.-P., Moncrieff, M., 1989. A numerical investigation of the organization and interaction of the convective and stratiform regions of tropical squall lines. *J. Atmos. Sci.* 46, 531–544.
- Lee, S. S., Donner, L. J., Phillips, V., Ming, Y., 2008. Examination of aerosol effects on precipitation in deep convective clouds during the 1997 arm summer experiment. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.* 134, 1201–1220.
- Leroy, D., Wobrock, W., Flossmann, A. I., 2009. The role of boundary layer aerosol particles for the development of deep convective clouds : A high-resolution 3D model with detailed (bin) microphysics applied to CRYSTAL-FACE. *Atmospheric Research* 91, 62–78.
- Lin, H., Leitch, R., 1997. Development of an in-cloud aerosol activation parameterization for climate modelling. Paper presented at Workshop on Measurements of Cloud Properties for Forecasts of Weather Air Quality and Climate (World Meteorol. Soc.), Mexico City.
- Liu, X., Penner, J. E., 2005. Ice nucleation parameterization for global models. *Meteor. Z.* 14, 499–514.
- Lohmann, U., 2002. A glaciation indirect aerosol effect caused by soot aerosols. *Geophys. Res. Lett.* 29 (1052).
- Lohmann, U., Diehl, K., 2006. Sensivity studies of the importance of dust nuclei for the indirect aerosol effect on stratiform mixed-phase clouds. *J. Atmos. Sci.* 63, 968–982.
- Lohmann, U., Hoose, C., 2009. Sensivity studies of different aerosol indirect effects in mixed-phase clouds. *Atmospheric Research* 9, 8917–8934.
- Long, A. B., 1974. Solutions to the droplet collection equation for polynomial kernels. *J. Atmos. Sci.* 31, 1040–1057.
- Loosmore, G. A., Cederwall, R. T., 2004. Precipitation scavenging of atmospheric aerosols for emergency response applications : testing an updated model with new real-time data. *Atmos. Environ.* 38, 993–1003.
- Marcolli, C., Gedamke, S., Peter, T., Zobrist, B., 2007. Efficiency of immersion mode ice nucleation on surrogates of mineral dust. *Atmos. Chem. Phys.* 7, 5081–5091.
- Meyers, M., DeMott, P., Cotton, W., 1992. New primary ice-nucleation parameterizations in an explicit cloud model. *J. Appl. Meteor.* 31, 708–721.

- Meyers, M. P., Walko, R. L., Harrington, J. Y., Cotton, W. R., 1997. New RAMS cloud microphysics parameterization. Part II : the two moment scheme. *Atmospheric Research* 45, 3–39.
- Milbrandt, J. A., Yau, M. K., 2005. A multimoment bulk microphysics parameterization. Part II : A proposed three-moment closure and scheme description. *J. Atmos. Sci.* 62, 3065–3081.
- Moehler, O., Field, P., Connolly, P., Benz, S., Saathoff, H., Schnaiter, M., Wagner, R., Cotton, R., Kraemer, M., Mangold, A., Heymsfield, A., 2006. Efficiency of the deposition mode ice nucleation on mineral dust particles. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 3007–3021.
- Moore, R. H., Nenes, A., 2009. Scanning flow CCN analysis - A method for fast measurements of CCN spectra. *Aerosol Sci. Technol.* 43, 1192–1207.
- Mossop, S. C., 1970. Concentrations of ice crystals in clouds. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 51, 474–479.
- Mossop, S. C., 1985. The origin and concentration of ice crystals in clouds. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* 66, 264–273.
- Mossop, S. C., Hallett, J., 1974. Ice crystal concentration in cumulus clouds : Influence of the drop spectrum. *Science* 186, 632–634.
- Mühlbauer, A., Lohmann, U., 2008. Orographic mixed-phase stratiform cloud case. WMO Cloud Modeling Workshop, Cozumel, Mexico.
- Nelson, A., Seinfeld, J. H., 2003. Parameterization of cloud droplet formation in global climate models. *J. Geophys. Res.* 108 (D14), doi :10.1029/2002JD002911.
- Niedermeier, D., Hartmann, S., Shaw, R. A., Covert, D., Mentel, T. F., Schneider, J., Poulain, L., Reitz, P., Spindler, C., Clauss, T., Kiselev, A., Hallbauer, E., Wex, H., Mildnerberger, K., Stratmann, F., 2010. Heterogeneous freezing of droplets with immersed mineral dust particles – measurements and parameterization. *Atmos. Chem. Phys.* 10, 3601–3614.
- Petters, M. D., Carrico, C. M., Kreidenweis, S. M., Prenni, A. J., DeMott, P. J., Collet Jr., J. L., Moosmueller, H., 2009. Cloud condensation nucleation activity of biomass burning aerosol. *J. Geophys. Res.* 114 (D22205).
- Phillips, V., DeMott, P., Andronache, C., 2008. An empirical parameterization of heterogeneous ice nucleation for multiple chemical species of aerosol. *jas* 65, 2757–2783.

BIBLIOGRAPHIE

- Press, W. H., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T., Flannery, B. P., 1992. Numerical Recipes in FORTRAN : The Art of Scientific Computing. Cambridge University Press.
- Pruppacher, H., Klett, J., 1997. Microphysics of Clouds and Precipitation. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands.
- Pruppacher, H. R., 1995. New look at homogeneous ice nucleation in supercooled water drops. *J. Atmos. Sci.* 52, 1924–1933.
- Quaas, J., 2003. L'effet indirect des aérosols : Paramétrisation dans des modèles de grande échelle et évaluation avec des données satellitales. Ph.D. thesis, Ecole Polytechnique.
- Quaas, J., Ming, Y., Menon, S., Takemura, T., Wang, M., Penner, J. E., Gettelman, A., Lohmann, U., Belloin, N., Boucher, O., Sayer, A. M., Thomas, G. E., McComiskey, A., Feingold, G., Hoose, C., Kristjánsson, J. E., Liu, X., Balkanski, Y., Donner, L., Ginoux, P. A., Stier, P., Grandey, B., Feichter, J., Sednev, I., Bauer, S. E., Koch, D., Grainger, R. G., Kirkevåg, A., Iversen, T., Seland, O., Easter, R., Ghan, S. J., Rasch, P. J., Morrison, H., Lamarque, J.-F., Iacono, M. J., Kinne, S., Schulz, M., 2009. Aerosol indirect effects - general circulation model intercomparison and evaluation with satellite data. *Atmos. Chem. Phys.* 9, 8697–8717.
- Ramanathan, V., Agrawal, M., Akimoto, H., Auffhammer, M., Devotta, S., Emberson, L., Hasnain, S. I., Iyengararasan, M., Jayaraman, A., Lawrence, M., Nakajima, T., Oki, T., Rodhe, H., Ruchirawat, M., Tan, S. K., Vincent, J., Wang, J. Y., Yang, D., Zhang, Y. H., Atrup, H., Barregard, L., Bonasoni, P., Brauer, M., Brunekreef, B., Carmichael, G., Chung, C. E., Dahe, J., Feng, Y., Fuzzi, S., Gordon, T., Gosain, A. K., Htun, N., Kim, J., Mourato, S., Naeher, L., Navasumrit, P., Ostro, B., Panwar, T., Rahman, M. R., Ramana, M. V., Rupakheti, M., Settachan, D., Singh, A. K., Helen, G. S., Tan, P. V., Viet, P. H., Yinlong, J., Yoon, S. C., Chang, W. C., Wang, X., Zelikoff, J., Zhu, A., 2008. Atmospheric Brown Clouds : Regional assessment report with focus on Asia. Published by the United Nations Environment Programme, Nairobi, Kenya.
- Richardson, M. S., DeMott, P. J., Kreidenweis, S. M., Cziczo, D. J., Dunlea, E. J., Jimenez, J. L., Thomson, D. S., Ashbaugh, L. L., Borys, R. D., Westphal, D. L., Casuccio, G. S., Lersch, T. L., 2007. Measurements of heterogeneous ice nuclei in the western united states in springtime and their relation to aerosol characteristics. *J. Geophys. Res.* 112 (D02209).

- Roberts, G. C., Nenes, A., 2005. A continuous-flow streamwise thermal-gradient CCN chamber for atmospheric measurements. *Aerosol Sci. Technol.* 39, 206–221.
- Rogers, D. C., DeMott, P. J., Kreidenweis, S. M., 2001. Airborne measurements of tropospheric ice-nucleating aerosol particles in the arctic spring. *J. Geophys. Res.* 106 (D14), 15,053–15,063.
- Rogers, D. C., DeMott, P. J., Kreidenweis, S. M., Chen, Y., 1998. Measurements of ice nucleating aerosols during SUCCESS. *Geophys. Res. Lett.* 25, 1383–1386.
- Saleeby, S. M., Cotton, W. R., 2004. A large-droplet mode and prognostic number concentration of cloud droplets in the colorado state university regional atmospheric modeling system (rams). part i :module descriptions and supercell test simulations. *J. Appl. Meteor.* 43, 182–195.
- Santachiara, G., Mattea, L. D., Prodi, F., Belosi, F., 2010. Atmospheric particles acting as Ice Forming Nuclei in different size ranges. *Atmospheric Research* 96, 266–272.
- Saxena, P., Hildemann, L. M., McMurry, P. H., Seinfeld, J. H., 1995. Organics alter hygroscopic behavior of atmospheric particles. *J. Geophys. Res.* 100, 18,755–18,770.
- Seinfeld, J. H., Pandis, S. N., 1998. *Atmospheric Chemistry and Physics*. Wiley, New York.
- Slinn, W., 1983. Precipitation scavenging, in *Atmospheric Sciences and Power Production 1979* (Chap.11). Division of Biomedical Environment Research, U.S. Department of Energy, Washington, D.C.
- Slinn, W., Hales, J. M., 1971. A reevaluation of the role of thermophoresis as a mechanism of in- and below-cloud scavenging. *J. Atmos. Sci.* 28 (8), 1465–1471.
- Sportisse, B., 2008. *Pollution atmosphérique - Des processus à la modélisation*.
- Stevens, B., Feingold, G., 2009. Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system. *Nature* 461, 607–613.
- Thompson, G., Rasmussen, R. M., Manning, K., 2004. Explicit forecasts of winter precipitation using an improved bulk microphysics scheme. Part I : description and sensitivity analysis. *Mon. Wea. Rev.* 132, 519–542.

BIBLIOGRAPHIE

- Tinsley, B. A., Zhou, L., Plemmons, A., 2005. Changes in scavenging of particles by droplets due to weak electrification in clouds. *Atmospheric Research* 79, 266–295.
- Tost, H., Joeckel, P., Kerkweg, A., Sander, R., Lelieveld, J., 2006. Technical note : A new comprehensive SCAVenging submodel for global atmospheric chemistry modelling. *Atmos. Chem. Phys.* 6, 565–574.
- Tripoli, G. J., Flatau, P. J., Cotton, W. R., 1988. Generalized microphysics scheme for use in mesoscale cloud model. Preprints 10th International Cloud Physics Conference, Bad-Homburg, pp. 109–111.
- Twohy, C. H., Kreidenweis, S. M., Eidhammer, T., Browell, E. V., Heymsfield, A. J., Bansemer, A. R., Anderson, B. E., Chen, G., Ismail, S., DeMott, P. J., van den Heever S. C., 2009. Saharan dust particles nucleate droplets in eastern atlantic clouds. *Geophys. Res. Lett.* 36 (L01807).
- Twomey, S., 1959. The nuclei of natural cloud formation. Part II : The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. *Geophys. Pure Appl.* 43, 243–249.
- Twomey, S., 1974. Pollution and the planetary albedo. *Atmos. Environ.* 8, 1251–1256.
- Twomey, S., Wojciechowski, T. A., 1969. Observations of the geographical variation of cloud nuclei. *J. Atmos. Sci.* 26, 648–651.
- Vali, G., 1994. Freezing rate due to heterogeneous nucleation. *J. Atmos. Sci.* (51), 1843–1856.
- Vali, G., 1999. Ice nucleation - Theory. Presentation at the NCAR/ASP 1999 Summer Colloquium.
- Vali, G., 2008. Repeatability and randomness in heterogeneous freezing nucleation. *Atmos. Chem. Phys.* (8), 5017–5031.
- von der Emde, K., Wacker, U., 1993. Comments on the relationship between aerosol spectra, equilibrium drop size spectra, and ccn spectra. *Beitr. Phys. Atmos.* 66, 157–162.
- Walko, R. L., Cotton, W. R., Meyers, M. P., Harrington, J. Y., 1995. New rams cloud microphysics parameterization. Part I : the single-moment scheme. *Atmospheric Research* 38, 29–62.

- Wang, P. K., Grover, S. N., Pruppacher, H. R., 1978. On the effect of electric charges on the scavenging of aerosol particles by clouds and small raindrops. *J. Atmos. Sci.* 35, 1735–1743.
- Whitby, K. T., Cantrell, B., 1976. Fine particles, in International Conference on Environmental Sensing and Assessment. Las Vegas, NV, Institute of Electrical and Electronic Engineers.
- Young, K., 1993. *Microphysical processes in clouds*. Oxford University Press.
- Young, K. C., 1974a. A numerical simulation of wintertime, orographic precipitation : Part I. Description of model microphysics and numerical techniques. *J. Atmos. Sci.* 31, 1735–1748.
- Young, K. C., 1974b. The role of contact nucleation in ice phase initiation in clouds. *J. Atmos. Sci.* 31, 768–776.
- Zuberi, B., Bertram, A. K., Cassa, C. A., Molina, L. T., Molina, M. J., 2002. Heterogeneous nucleation of ice in $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ particles with mineral dust immersions. *Geophys. Res. Lett.* 29.

Annexes

Annexe A

Principaux symboles

Variable	Description	Unités
$a = 842$	Paramètres de $U_g(D_g)$	$[\text{m}^{0.2} \text{s}^{-1}]$
A	Terme de Kelvin	
$b = 0.8$	Paramètres de $U_g(D_g)$	
B	Terme de Raoult	
c_p	Chaleur spécifique de l'air à pression constante	$[\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}]$
C_c	Facteur correctif de Cunningham	
C_e	Capacité calorifique à pression constante pour l'eau liquide	
C_i	Coefficient du spectre d'activation des CCN du mode i	
C_{pv}	Capacité calorifique à pression constante pour la vapeur	
d_a	Diamètre des aérosols	$[\mu\text{m}]$
\bar{d}_{ai}	Diamètre médian du mode i de la distribution des CCN	$[\mu\text{m}]$
\bar{d}_X	Diamètre médian de la distribution de l'espèce X composant l'IN	$[\mu\text{m}]$
d_{crit}	Diamètre critique d'activation des CCN interstitiels	$[\mu\text{m}]$
D_g	Diamètre des gouttes	$[\text{m}]$
D_c	Diamètre des gouttelettes	$[\text{m}]$
\mathcal{D}	Diffusivité de l'aérosol	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$
\mathcal{D}_v	Diffusivité de la vapeur dans l'air	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$
$E(D_g, d_a)$	Efficacité de collision aérosol-goutte	
$f(x_i)$	Fonction à intégrer	
$F(a_1, a_2, a_3; x)$	Fonction hypergéométrique [Cohard et al., 1998]	
g	Accélération de la pesanteur	$[\text{m s}^{-2}]$

$G(D_c, T, P)$	$= 1/\rho_{eau} \left[R_v T / (P_{v,sat}(T) \mathcal{D}_v) + L_v(T) / (k_a T) \cdot \left(L_v(T) / (R_v T) - 1 \right) \right]^{-1}$	
i	Indice repérant le mode d'aérosol	
k_i	Coefficient du spectre d'activation des CCN du mode i	
k_0	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	
k_B	Constante de Boltzmann = 1.3806210^{-23}	[J K ⁻¹]
L	Indice repérant le nombre total de modes d'aérosols	
l_{air}	Libre parcours moyen de l'air	
L_v	Chaleur latente de vaporisation	[J]
m_{free}	Masse d'aérosols disponibles	[kg]
m_{scav}	Masse totale d'aérosols lessivés	[kg]
m_{sec}	Masse de l'aérosol sec	[kg]
m_{sol}	Masse de soluté	[kg]
M_{eau}	Masse molaire de l'eau	[kg mole ⁻¹]
M_{sol}	Masse molaire du soluté ou du matériel soluble constituant l'aérosol (dans le cas d'un aérosol soluble en partie)	[kg mole ⁻¹]
n	Ordre de la quadrature de Gauss	
$n_{ai}(d_a)$	Distribution en taille des CCN <i>interstitiels</i> du mode i	
$n_{CCN,i}(d_a)$	Distribution en taille des CCN <i>activés</i> du mode i	
$n_{int,i}(d_a)$	Distribution en taille du mode i des IN <i>interstitiels</i>	
$n_{int,i,X}(d_a)$	Distribution en taille de l'espèce X des IN <i>interstitiels</i> du mode i	
$n_{IN,i}(d_a)$	Distribution en taille du mode i , des IN <i>activés</i>	
$n_{IN,i,X}(d_a)$	Distribution en taille de l'espèce X , des IN <i>activés</i> du mode i	
$n_g(D_g)$	Distribution en taille des gouttes	
N_a	Concentration en nombre total des CCN <i>interstitiels</i>	[m ⁻³]
N_{ai}	Concentration en nombre des particules de CCN <i>interstitiels</i> du mode i	[m ⁻³]
N_c	Concentration en nombre de gouttelettes	[m ⁻³]
N_{CCN}	Concentration en nombre total des CCN <i>activés</i>	[m ⁻³]
$N_{CCN,i}$	Concentration en nombre du mode i , des CCN <i>activés</i>	[m ⁻³]
N_i	Concentration en nombre de cristaux de glace primaire	[m ⁻³]
N_{int}	Concentration en nombre total des IN <i>interstitiels</i>	[m ⁻³]
$N_{int,i}$	Concentration en nombre des particules d'IN <i>interstitiels</i> du mode i	[m ⁻³]
$N_{int,i,X}$	Idem, mais uniquement pour l'espèce X considérée $= \alpha_X N_{int,i}$	[m ⁻³]
N_{IN}	Concentration en nombre total d'IN <i>activés</i>	[m ⁻³]

Principaux symboles

$N_{IN,i}$	Concentration en nombre des IN <i>activés</i> du mode i	[m ⁻³]
$N_{IN,i,X}$	Idem, mais uniquement pour l'espèce X considérée	[m ⁻³]
$N_{IN,i,X}^\diamond$	Concentration en nombre des IN <i>activables</i> de l'espèce X du mode i	[m ⁻³]
P	Pression	[Pa]
P_v	Pression de vapeur dans l'air	[Pa]
$P_{v,sat}(T)$	Pression de vapeur saturante dans l'air par rapport à l'eau	[Pa]
$P_{v,sat}^e(T)$	Pression de vapeur saturante à la saturation par rapport à l'eau	[Pa]
$P_{v,sat}^g(T)$	Pression de vapeur saturante à la saturation par rapport à la glace	[Pa]
où $P_{v,sat}^x(T)$	$= \exp(\theta_x - \beta_x/T - \gamma_x \ln(T))$	[Pa]
q_c	Rapport de mélange de l'eau nuageuse (" c loud water")	
q_i	Rapport de mélange de la glace primaire (" i ce")	
q_s	Rapport de mélange de la neige (" s now")	
q_r	Rapport de mélange de la pluie (" R ain")	
q_g	Rapport de mélange du grésil (" g raupel")	
q_v	Rapport de mélange de la vapeur	
r_0	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	[μm]
r_a	Rayon de la particule d'aérosol	[μm]
r_{ai}^m	Rayon median de la distribution d'aérosol du mode i	[μm]
r_{crit}	Rayon critique d'activation des CCN interstitiels	[μm]
r_{hum}	Rayon humide de l'aérosol, rayon de la gouttelette formée	[μm]
r_{sec}	Rayon de l'aérosol sec	[μm]
R	Taux de pluie	
Re	Nombre de Reynolds de la goutte	
R_s	Constante des gaz pour l'air sec $= \mathcal{R}/M_{air}$ pour l'air sec	[J K ⁻¹ kg ⁻¹]
R_v	Constante des gaz pour la vapeur $= \mathcal{R}/M_{eau}$ pour la vapeur	[J K ⁻¹ kg ⁻¹]
\mathcal{R}	Constante des gaz (=8.314)	[J K ⁻¹ mole ⁻¹]
Sc	Nombre de Schmidt de la particule d'aérosol	
St	Nombre de Stokes de la particule d'aérosol	
St^*	Nombre de Stokes critique	
$s_{v/g}$	Rapport à saturation de la vapeur par rapport à la glace	[%]
$s_{v/g}^e$	Valeur de $s_{v/g}$ à la saturation par rapport à l'eau	[%]
$S_{v/e}$	Sursaturation de la vapeur par rapport à l'eau liquide	[%]

S_{MAX}	Sursaturation maximale de la vapeur par rapport à l'eau liquide	[%]
$S_{v/g}$	Sursaturation de la vapeur par rapport à la glace	[%]
S_{crit} ou S	Sursaturation critique de la vapeur par rapport à l'eau	[%]
T_0	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	[K]
T	Température	[K]
$u_a(d_a)$	Vitesse de chute des CCN interstitiels	[m s ⁻¹]
$U_g(D_g)$	Vitesse de chute de la goutte	[m s ⁻¹]
$y(D_c, T)$	Contribution des effets de courbures et de solubilité	
w_i, w'_i	Coefficients de pondération pour les quadratures de Gauss	
x_i, x'_i	Abcisses pour les quadratures de Gauss	
α	Paramètres de $n_g(D_g)$	
α_i^j	Coefficients utiles au fit des paramètres du spectre d'activation	
β_i	Coefficient du spectre d'activation des CCN du mode i	
β_0	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	
β_x	$= L_v(273.16)/R_v \cdot \gamma_x \cdot 273.16$	
B	Fonction Bêta	
γ_x	$= [C_e - C_{pv}]/R_v$	
Γ	Fonction Gamma	
ϵ		
ϵ_{ai}	Fraction massique de matériel insoluble composant le CCN interstitiel	
ϵ_{m0}	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	
θ_x	$= \ln(P_{v,sat}(273.16)) + \beta_x/273.16 - \gamma_x \ln(273.16)$	
λ_g	Paramètre de courbure de la loi Marshall-Palmer	
$\Lambda(d_a)$	Coefficient de lessivage	[s ⁻¹]
μ_{air}	Viscosité dynamique de l'air sec	[Pa s]
μ_{eau}	Viscosité de l'eau	[Pa s]
μ_i	Coefficient du spectre d'activation des CCN du mode i	
μ_0	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	
ν	Paramètres de $n_g(D_g)$	
ρ_a	Masse volumique de l'aérosol sec	[kg m ⁻³]
ρ_{air0}	Masse volumique de l'air de référence au sol	[kg m ⁻³]
ρ_{air}	Masse volumique de référence de l'air sec	[kg m ⁻³]

Principaux symboles

$\sigma_{(eau/air)}$	Tension de surface à l'interface eau/air	[dyn cm ⁻¹]
σ_{ai}	Largeur à mi-hauteur du mode i de CCN interstitiel	
σ_0	Coefficient utile au fit des paramètres du spectre d'activation	
σ_X	Largeur à mi-hauteur de la distribution des IN d'espèce X	
τ_a	Temps de relaxation de l'aérosol collecté	
$\psi_1(T, P)$	$= g/(TR_s) \cdot \left[\epsilon L_v/(c_p T) - 1 \right]$	
$\psi_2(T, P)$	$= P/(\epsilon P_{v,sat}(T)) + \epsilon L_v^2/(R_s T^2 c_p)$	
$\psi_3(T, P)$	Facteur lié au refroidissement radiatif (pour les cirrus)	
$\Psi(d_a, t)$	Distribution en masse ou en nombre des aérosols	
ϕ	Rapport des diamètres	
ϕ_s	Coefficient osmotique	
ω	Rapport des viscosités	

Annexe B

Autres mécanismes de formation de la glace

B.0.1 Congélation homogène

Pour les températures inférieures à -38°C , les deux mécanismes de production de glace primaire, par congélation homogène et par congélation hétérogène, sont coexistants, et leur importance respective reste encore mal évaluée [Barahona and Nenes, 2009a,b; Khvorostyanov et al., 2006].

Vali [1999] explique que la nucléation homogène *par dépôt de vapeur* n'est pas un mécanisme possible dans l'atmosphère, car les très hautes sursaturations qu'elle requiert ne sont jamais observées. Cette impossibilité est corroborée par la règle d'Ostwald qui veut qu'à des températures inférieures au point de fusion, la transition de l'état gazeux à l'état solide n'est pas directe et se fait via le passage par une phase dite "métastable", de plus basse énergie libre à l'interface, la phase liquide. Dans MésoNH, deux types de congélation homogène sont pris en compte : la congélation homogène de l'eau pure surfondue, et celle de solutions aqueuses.

La nucléation homogène des gouttelettes d'eau pure surfondues est décrite par la théorie classique [Pruppacher and Klett, 1997], qui s'appuie sur les lois de la thermodynamique. La figure B.1 illustre la révision de l'ancienne théorie classique pour les $T < -30^{\circ}\text{C}$, que Pruppacher [1995] effectua après avoir observé un brusque changement de comportement des variables thermodynamiques : lorsque la température chute en-dessous de -30°C , la chaleur spécifique de l'eau, la chaleur latente due à l'évaporation, la viscosité, la tension de surface... ect, ont ten-

dance à augmenter brutalement et, en parallèle, la densité de l'eau, la chaleur latente de congélation et l'énergie à l'interface entre l'eau et la glace, ont, elles, tendance à chuter rapidement. Cela s'explique par un changement de comportement des liaisons hydrogènes contenues par la molécule d'eau pour ces températures très froides.

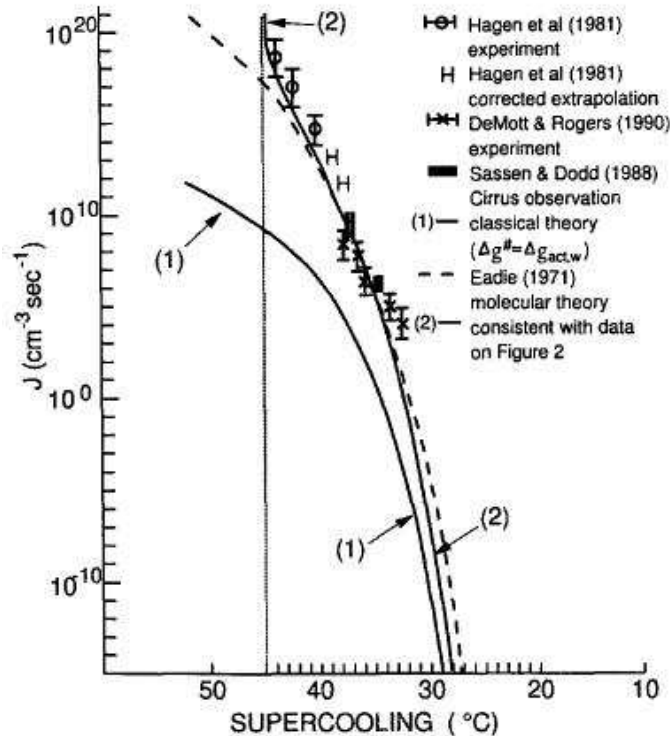


FIG. B.1 – Illustration de la révision de la nucléation homogène : la courbe (1) représente l'ancienne théorie classique, qui diverge des mesures pour les températures inférieures à -30°C . La courbe (2) a été calculée à partir de la révision opérée pour les faibles températures. Source : Pruppacher [1995].

La formalisation de la nucléation homogène de *solutions aqueuses* plus complexes, a été rendue possible grâce aux résultats expérimentaux de Koop et al. [2000] : l'auteur suggère que la congélation homogène des solutions aqueuses surfondues est indépendante de la nature du soluté, et dépend uniquement de la sur-saturation par rapport à la glace [Zuberi et al., 2002]. Son étude fournit l'expression des coefficients d'activité de l'eau, en fonction de la température, pour des solutions aqueuses. En anglais, on nomme ces solutions aqueuses des "haze particles" : Vali [1999] les définit comme des matériaux solubles déliquescents, contenant de l'eau susceptible de congeler. Dans MésosNH, la congélation homogène de ces "haze particles" est basée sur la paramétrisation que proposèrent Kaercher and Lohmann [2002], à partir des travaux de Koop et al. [2000].

B.0.2 Production secondaire de Hallett-Mossop

Les concentrations en nombre de cristaux de glaces mesurées ou estimées dans les nuages dépassent souvent de plusieurs ordres, celles mesurées pour les noyaux glaçogènes [Fridlind et al., 2007; Mossop, 1970, 1985; Pruppacher and Klett, 1997]. C'est en cherchant à expliquer ces écarts de concentrations entre IN et cristaux formés que Hallett and Mossop [1974]; Mossop and Hallett [1974] ont imaginé le processus de multiplication des cristaux accompagnant le givrage des hydrométéores glacés : des éclats de cristaux sont éjectés lors de l'accrétion de gouttes sur une particule glacée, ce qui a pour conséquence d'accroître la concentration en nombre de cristaux. Ce processus dépend plus de la température de surface de l'hydrométéore glacé soumis au givrage, que de la température de l'air environnant l'hydrométéore [Pruppacher and Klett, 1997].

Le processus dit de "Hallett-Mossop", du nom de ces découvreurs, a été établi expérimentalement pour un domaine de température étroit, entre -3°C et -8°C , et pour des gouttes de rayon supérieur à $12\mu\text{m}$. La formulation empirique est basée sur l'observation que, à -5°C , 350 éclats de glace sont produits lors du givrage de 10^{-3}g de particule glacée [Pruppacher and Klett, 1997]. Cette formulation est fonction du taux de givrage du grésil ou d'un cristal de glace et de la température de surface de la particule glacée. Toutefois, une formulation alternative existe, qui part de l'observation que, à -5°C , un éclat de glace est produit par l'accrétion d'environ 250 gouttes de rayon supérieur à $12\mu\text{m}$, sur une particule de grésil [Pruppacher and Klett, 1997]. Ce processus est implanté dans le schéma MIMA.

On soupçonne que deux autres processus sont effectifs pour produire des éclats de glace : le fractionnement mécanique des extrémités des cristaux les plus fragiles entre -12°C et -16°C et la fragmentation des plus grosses gouttelettes surfondues lors de la congélation [Pruppacher and Klett, 1997]. Cependant ces processus ont été moins étudiés que celui de Hallett-Mossop ; leurs formulations restant incertaines, ils ne sont, en général, pas implantés dans les modèles.

Annexe C

Article 1 :

Scavenging of aerosol particles by rain in a cloud resolving model, Berthet *et al.*, 2010.

Référence : *S. Berthet, M. Leriche, J.-P. Pinty, J. Cuesta and G. Pigeon*, Scavenging of aerosol particles by rain in a cloud resolving model, *Atmospheric Research*, 96, 325-336, 2010, <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2009.09.015>.

La version auteur de cet article est accessible sur l'archive ouverte HAL à l'adresse suivante : <http://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00519461/fr/>.

Annexe D

Acronymes

ABC	Atmospheric Brown Clouds
ACPC	Aerosols, Clouds, Precipitation and Climate
BC	Black Carbon
CCN	Cloud Condensation Nuclei
DM	Dust/Metallic compound
IAPSAG	International Aerosol Precipitation Science Assessment Group
IN	Ice Nuclei (aussi appelé Ice Forming Nuclei : IFN)
O	Organics

Publications et conférences internationales

Publications dans des revues à comité de lecture

Berthet, S., Leriche, M., Pinty, J.-P., Cuesta, J., Pigeon, G., 2010. Scavenging of aerosol particles by rain in a cloud resolving model. *Atmospheric Research* 96, 325–336, doi :10.1016/j.atmosres.2009.09.015.

Conférences internationales

S. Berthet, J-P. Pinty, M. Leriche, Treatment of multiple size-distributed populations of CCN and IFN in a 2-moment microphysical scheme of the cloud-resolving model MesoNH, Mai 2010, *European Geosciences Union*, Vienna, Austria.

S. Berthet, M. Leriche, J-P. Pinty, J. Cuesta and G. Pigeon, Scavenging of aerosol particles by rain in a cloud resolving model, Juillet 2008, *The International Conference on Cloud and Precipitation*, Cancun, Mexico.

J-P. Pinty, S. Berthet, Présentation du CAS 1 : “Simulations of mixed-phase orographic precipitation” proposé par Andreas Muhlbauer et Ulrike Lohmann, Juillet 2008, *WMO Cloud Modeling Workshop*, Cozumel, Mexico.

Development of a new scheme for cloud physics in the cloud-resolving model MesoNH to study aerosol-cloud interactions

Abstract

A set of 3D budget equations for aerosol particles acting as nuclei (CCN and IN) in the heterogeneous nucleation processes of cloud droplets and ice crystals have been developed in a 2-moment microphysical scheme of the mesoscale model MesoNH. CCN and IN are the nuclei that initiate and determine the concentrations of the small droplets and the pristine ice crystals. Consequently and in order to solve the radiative impacts of clouds at global scale with general circulation models, it is useful to evaluate the local impact of aerosol particles with cloud-resolving models that are able to integrate the activation processes of CCN and IN in a microphysical scheme.

The budget equations of the aerosol particles computed in MesoNH, are based on the follow-up of prognostic concentrations of each mode of interstitial and activated CCN and IN. The budget focuses on the aerosol-cloud interactions. It considers the activation processes of polydisperse populations of CCN and IN, the impaction scavenging by falling raindrops, the transport of the particles, and so it is intended to reproduce the temporal and spatial variability of these nuclei.

The sensibility of a cloud system to the parameterisation of ice heterogeneous nucleation is studied in the case of a mixed-phase orographic cloud. Then an idealised case of a squall line is simulated in order to illustrate the complex relationships existing between dynamics and cloud microphysics when polydisperse population of aerosol particles is considered.

Keywords : Aerosol particles, CCN/IN, clouds, microphysics, activation, heterogeneous nucleation, cloud droplets, primary ice crystals, impaction/nucleation scavenging, mesoscale modeling, cloud-resolving model.

Développement d'un nouveau schéma de physique des nuages dans le modèle de méso-échelle MésoNH pour l'étude des interactions aérosol-nuage

Auteur : Sarah Berthet

Directeurs de thèse : Maud Leriche et Jean-Pierre Pinty

Discipline : Physique de l'Atmosphère

Lieu et date de soutenance : Observatoire Midi-Pyrénées, octobre 2010

Laboratoire : Laboratoire d'Aérodynamique, UMR 5560 CNRS/UPS, OMP

14 avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse, France

Un bilan des aérosols en jeu (CCN et IN) dans les processus de nucléation des particules de nuage élémentaires (gouttelettes et cristaux de glace) est implanté dans un nouveau schéma microphysique à 2 moments dans le modèle MésoNH. Il répond à la nécessité d'intégrer un suivi des concentrations en noyaux de nucléation dans la microphysique du nuage. En effet CCN et IN déterminent la concentration en nombre des gouttelettes et des cristaux primaires ; ceux-ci sont à l'origine de processus microphysiques qui déterminent les propriétés radiatives et précipitantes du nuage. Ainsi, l'intérêt pour le bilan radiatif des nuages à l'échelle globale nécessite-t-il de pouvoir estimer localement l'impact des aérosols sur les nuages, grâce à des outils de modélisation numérique à l'échelle des structures nuageuses qui sont capables de résoudre les processus de nucléation hétérogène des gouttelettes et des cristaux à partir des CCN et des IN, respectivement.

En conséquence, le bilan des particules d'aérosols réalisé dans MésoNH s'appuie sur le traitement des concentrations en aérosols, à la fois interstitiels et activés pour chaque mode de CCN et d'IN, au moyen de couples de variables 3D pronostiques. Le bilan considère les principaux termes reflétant l'interaction aérosol-nuage, avec une attention particulière accordée à la représentation des processus de nucléation hétérogène des particules nuageuses. Ainsi établi, ce bilan permet de considérer simultanément l'activation de populations multimodales de CCN et d'IN, leur lessivage par impaction, leur transport, et donc la variabilité spatio-temporelle de ces noyaux de nucléation.

La sensibilité d'un système nuageux à la formulation de la nucléation hétérogène de la glace est mise en évidence sur un cas de nuage orographique. Un cas idéalisé de ligne de grain est ensuite utilisé pour illustrer les interactions complexes qui existent entre la dynamique et la microphysique nuageuse lorsqu'elle est pilotée par une population multimodale d'aérosols.

Mots clés : Aérosols, CCN/IN, nuage, microphysique, activation, nucléation hétérogène, hydrométéores primaires, lessivage, modélisation, méso-échelle.