



HAL
open science

Aérosols

Vincent Guidard

► **To cite this version:**

| Vincent Guidard. Aérosols. Comité Scientifique Consultatif de Météo-France. 2020. meteo-04588757

HAL Id: meteo-04588757

<https://meteofrance.hal.science/meteo-04588757v1>

Submitted on 27 May 2024

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.



Aérosols

Verso de la page de garde

Table des matières

Introduction.....	1
I. Observation des aérosols.....	3
A. Observation in situ.....	3
B. Télédétection des aérosols.....	5
II. Modélisation des aérosols pour la qualité de l'air.....	7
A. Émission des aérosols primaires.....	7
1. Aérosols primaires d'origine naturelle.....	7
2. Aérosols primaires d'origine anthropique.....	8
B. Formation des aérosols secondaires.....	9
C. Transformations physiques.....	10
D. Dépôts et transport.....	10
E. Assimilation d'observations.....	10
III. Aérosols et climat.....	13
A. Les débuts des interactions aérosols-climat au CNRM.....	13
B. La mise en place d'un schéma interactif d'aérosols.....	13
C. Thématiques scientifiques de recherche.....	14
D. Perspectives scientifiques.....	15
IV. Interaction aérosols – rayonnement.....	17
A. Propriétés de diffusion simple des aérosols.....	17
B. Effet radiatif des aérosols.....	17
1. Schéma de rayonnement des modèles météorologiques.....	17
2. Interaction avec le manteau neigeux.....	18
3. Simulateur d'observations.....	19
V. Interaction des aérosols avec la microphysique.....	20
VI. Vers une approche coordonnée pour les aérosols dans les modèles du CNRM.....	22
VII. Bibliographie.....	23

Ce document a été rédigé à partir de larges contributions de collègues du CNRM :

Xavier Ceamanos, Cyrielle Denjean, Marie Dumont, Laaziz El Amraoui, Jonathan Guth, Quentin Libois, Marc Mallet, Virginie Marécal, Martine Michou, Pierre Nabat, Sonia Pere, Jérôme Vidot, Benoît Vié

Introduction

Les interactions entre aérosols, nuages et rayonnement jouent un rôle essentiel dans l'évolution de l'atmosphère et sa dynamique à toutes les échelles, de la prévision du temps à fine échelle aux projections climatiques. Météo-France a ainsi pour objectif d'intégrer cette composante « aérosol » dans ses systèmes en ayant identifié 3 priorités :

- la prise en compte des poussières désertiques dans les modèles de prévision numérique du temps (PNT), notamment dans les modèles régionaux. L'enjeu *in fine* est de fournir une prévision des conditions de visibilité, là où les poussières désertiques peuvent se retrouver en suspension ;

- la prise en compte d'un jeu d'aérosols réduit mais pertinent, dans les modèles de PNT, pour traiter leur activation et ainsi déterminer le spectre dimensionnel des gouttelettes nuageuses avec un schéma micro-physique à 2 moments, en distinguant les noyaux de condensation et les noyaux glaçogènes. Un des enjeux ici est de pouvoir notamment mieux représenter le cycle de vie des brouillards.

- la troisième priorité est d'intégrer dans notre système régional un ensemble « chimie-aérosol », permettant les études régionales de qualité de l'air comme les études climatiques régionales. Cet ensemble pourra proposer ainsi différentes déclinaisons comme la simple prise en compte des sels marins pour l'étude de leur rôle dans la dynamique des cyclones ou intégrer les poussières désertiques dans le climat régional méditerranéen.

Devant l'ampleur de la tâche, dans le cadre de la prospective HCERES 2021-2025 du CNRM, il a été décidé de mettre en place une structure projet transverse rattachée à la direction du CNRM, avec le soutien de la direction de la DESR. Le présent document fait donc l'état des différents travaux en cours sur cette thématique (essentiellement au CNRM) et constitue le point de départ de la construction de cette action.

La richesse et la diversité des activités liées aux aérosols à Météo-France impliquent différents outils de modélisation et systèmes d'observations. Le Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM) dispose de systèmes d'observations (in-situ et satellitaires) permettant de progresser sur ces thématiques à différentes échelles spatio-temporelles. La modélisation peut être faite dans le modèle de Chimie Transport (CTM) MOCAGE, dans les modèles de climat global ARPEGE et régional ALADIN ou le système Terre CNRM-ESM¹ et le système couplé régional CNRM-RCSM², dans les modèles de Prévision Numérique du Temps comme AROME, ou encore dans le modèle de surface SURFEX. Les activités de recherches sont menées, pour partie, dans le cadre de projets nationaux ou internationaux, comme les exercices CMIP, différentes actions du service Copernicus pour l'atmosphère CAMS ou des projets européens. Les six groupes du CNRM ont tous une activité de recherche liée aux aérosols, ainsi que pour certains, des transferts dans des chaînes opérationnelles de traitement ou de prévisions. La thématique des aérosols est aussi au cœur de certaines équipes d'autres services de Météo-France, comme le département d'observation d'altitude de la direction des systèmes d'observations (DSO/DOA) ou le centre de surveillance des cendres volcaniques (VAAC) de l'Organisation de l'Aviation Civile Internationale (OACI) hébergé par la Direction des Services Météorologiques (DSM) et dont la responsabilité s'étend sur une large partie de l'Europe, Asie et Afrique.

Le CNRM mène une recherche ambitieuse et pluridisciplinaire sur les aérosols, avec pour objectif de raffiner notre compréhension globale de ces composants essentiels de l'atmosphère et de leur rôle dans le système climatique et son évolution. Cette ambition s'appuie sur des compétences variées et complémentaires.

1 ESM : Earth System Model

2 RCSM : Regional Climate System Model

Elle repose d'abord sur une caractérisation toujours plus fine du cycle de vie des aérosols, et de leurs propriétés physico-chimiques et optiques à partir de mesures in situ. Ces mesures visent aussi à mieux comprendre leur contribution à la formation des nuages en tant que noyaux de condensation ou glaciogènes. Les processus physiques impliquant les aérosols sont ensuite modélisés avec la volonté d'aller vers une représentation la plus explicite possible des aérosols, afin de s'affranchir de l'utilisation de données exogènes (climatologies, bases de données externes). Dans cette dynamique, il y a une intention forte d'une approche coordonnée pour décrire la diversité des aérosols, notamment en ligne dans les modèles. Ces travaux de recherche visent à avoir une représentation des aérosols exhaustive, à l'état de l'art et cohérente entre compartiments physiques des modèles utilisés à Météo-France.

Ce document présente l'état des lieux et les perspectives pour les thèmes suivants : l'observation des aérosols, la modélisation pour la qualité de l'air, les interactions aérosols – climat, les interactions aérosols – rayonnement et les interactions aérosols – microphysique.

I. Observation des aérosols

A. Observation in situ

La connaissance des propriétés physico-chimiques des aérosols en fonction de leurs sources d'émission et de leur transport dans l'atmosphère est indispensable pour un grand nombre d'applications allant de la qualité de l'air, la prévision du temps ou encore l'étude du climat. Du fait du grand nombre de processus atmosphériques mis en jeu dans la variabilité de ces propriétés et de la difficulté expérimentale à les quantifier, la compréhension des interactions entre aérosols, rayonnement et nuage est incomplète. Les données d'observation in-situ obtenues lors des campagnes de mesures fournissent aujourd'hui la base expérimentale nécessaire pour comprendre ces processus et améliorer leur représentation dans les modèles numériques. L'activité de recherche sur l'observation in-situ des aérosols au CNRM est centrée sur la caractérisation des propriétés microphysiques, chimiques, optiques et hygroscopiques des aérosols au cours de leur cycle de vie. L'objectif de ces mesures est de mieux appréhender les processus mis en jeu dans la variabilité des propriétés des aérosols et de développer des paramétrisations décrivant les interactions entre aérosols, rayonnement et nuages pouvant être incorporés dans les modèles numériques. Ces travaux s'appuient sur une expertise dans la mesure in-situ des aérosols sur plateformes au sol et aéroportées (avion de recherche, ballon, drone) et sur une forte synergie entre la mesure des aérosols et leur modélisation.

L'expérience acquise tant sur le plan instrumental que scientifique a été mise à profit pour participer à des campagnes de mesure aéroportées à bord de l'avion de recherche ATR-42 dans le cadre de projets internationaux d'envergure dont les projets ANR/ADRI-MED-CHARMEX et EU/DACCIWA. Les données recueillies ont permis d'identifier les processus de formation (Rose et al., 2015 ; Berland et al., 2017 ; Tulet et al., 2017 ; Freney et al., 2018 ; Brito et al., 2018), le degré de vieillissement des aérosols (Claeys et al., 2017 ; Denjean et al., 2020b), le rôle de la dynamique atmosphérique dans le transport des aérosols (Flamant et al., 2018a; Flamant et al., 2018b; Deroubaix et al., 2018), ainsi que de restituer les propriétés physico-chimiques des aérosols (Renard et al., 2018 ; Haslett et al., 2019 ; Taylor et al., 2019). Elles ont également permis d'améliorer la représentation des aérosols dans les modèles numériques à travers le développement d'un nouveau schéma d'émission des sels marins qui a été implémenté dans le modèle Meso-NH dans le cadre de la thèse de Marine Claeys (Claeys et al. 2016) et la restitution de paramètres décrivant les interactions aérosols-rayonnement (Denjean et al., 2016 ; Denjean et al., 2020a) qui ont permis d'estimer les effets radiatifs directs des aérosols (Mallet et al., 2018 ; Meloni et al. 2018). Sur la base d'observations aéroportées couplées à des simulations avec le code de transfert radiatif EcRad, Denjean et al. (2020b) ont montré la nécessité de représenter les états de mélanges internes et externes du carbone-suie pour simuler les impacts des feux de biomasse sur le bilan radiatif et la dissipation des nuages (Illustration 1). Les données d'observation aéroportées ont également permis de mener plusieurs études d'évaluation de nouveaux algorithmes d'inversion d'observation de télédétection au sol ou par satellite (Benavent-Oltra, 2017 ; Granados-Muñoz et al. 2018 ; Román et al., 2018).

Le CNRM a cherché à renforcer ses capacités d'observation in-situ de la structure verticale des aérosols au cours des cinq dernières années. Les développements techniques portent aussi bien sur la construction de nouveaux capteurs embarqués petits, légers, et de faible consommation électrique pour la microphysique aérosol (projet ANR/NEPHELAE) que sur des instruments innovant permettant d'étudier le rôle de la composition chimique des aérosols dans leurs interactions avec le rayonnement et les nuages (HTDMA-SP2, projet sur le carbone-suie INSU-LEFE/h-BC). Les instruments sont développés dans le but de pouvoir les déployer au sol ou embarqués sur plateformes aéroportées (avion de recherche, ballon, drone). Le groupe a également renforcé ses capacités d'observation sous ballon captif. De nouveaux ballons capables d'emporter des charges utiles plus lourdes ont été acquis. C'est ainsi que le ballon captif a pu être utilisé pour documenter la variabilité verticale des propriétés d'activation des aérosols en gouttelettes dans le cadre du projet de recherche sur le brouillard ANR/SOFOG3D et pourra très prochainement caractériser les propriétés microphysiques et optiques des aérosols dans le cadre du projet sur le climat urbain ANR/H2C.

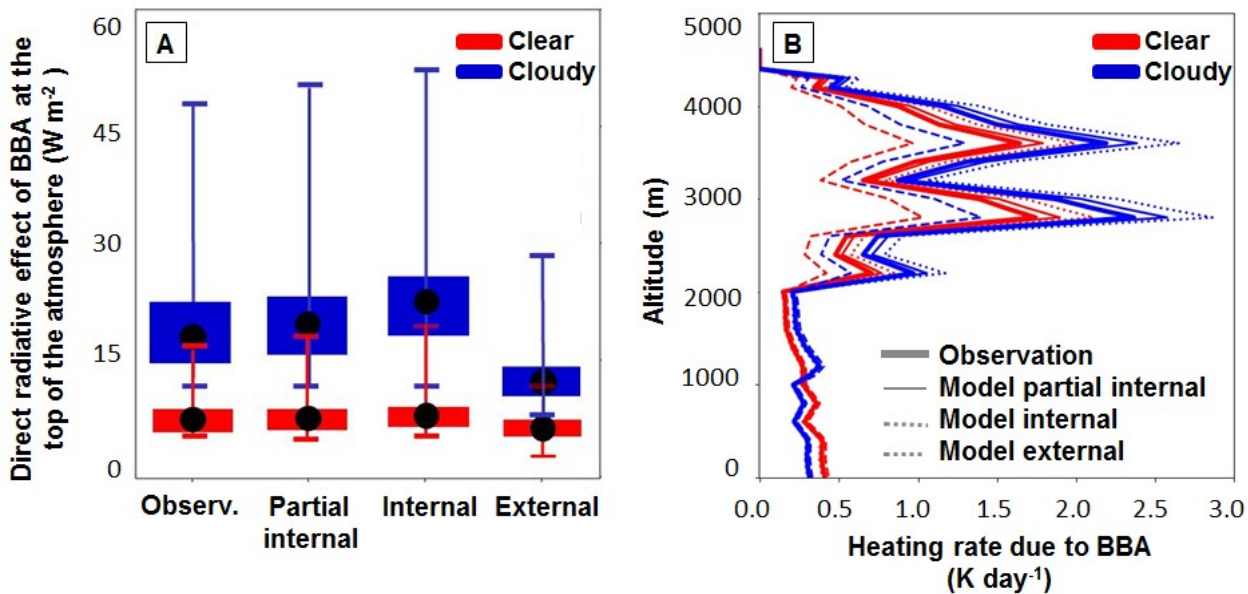


Illustration 1: (a) effet radiatif direct au sommet de l'atmosphère et (b) profil vertical du taux d'échauffement induit par les feux de biomasse transportés en Afrique de l'Ouest, calculés avec le code de transfert radiatif EcRad à partir des observations du BC issues de la campagne de mesure aéroportée DACCWA et de différentes hypothèses sur l'état de mélange du BC. Les figures montrent la nécessité de représenter les états de mélanges internes et externes du BC pour simuler l'impact sur le bilan radiatif et la dissipation des nuages des feux de biomasse [Denjean et al., 2020b].

En termes de perspectives, la recherche expérimentale sur les aérosols se focalisera sur le rôle des aérosols dans le cycle de vie des nuages et leurs interactions avec le rayonnement. On cherchera, en particulier, à documenter les processus physico-chimiques mis en jeu, tels que les processus d'activation des aérosols en gouttelettes nuageuses ainsi que les processus de vieillissement des aérosols au cours de leur cycle de vie et les effets radiatifs associés. L'exploitation des données issues de campagnes de mesure récentes et à venir nourrira, à travers des collaborations internes et internationales, un objectif important du CNRM qui est l'amélioration de la représentation des aérosols dans les modèles de Météo-France utilisés pour des thématiques aussi variées que la modélisation du climat, la qualité de l'air et la prévision numérique du temps. Le développement de nouveaux capteurs aérosol miniaturisés et aéroportables ouvre d'importantes perspectives pour comprendre plus précisément les processus physico-chimiques associés aux interactions entre aérosols, nuages et rayonnement et pour proposer des paramétrisations plus exhaustives pour les modèles.

A travers leurs interactions avec le rayonnement, les particules de carbone-suie sont des agents climatiques de premier plan qui pourraient constituer la deuxième plus forte contribution au réchauffement climatique actuel après celle du dioxyde de carbone (IPCC 2013). Aujourd'hui, l'incertitude sur l'estimation de son forçage radiatif est de l'ordre d'environ 90 %, ce qui ne permet pas de quantifier avec la précision requise ses impacts présents et futurs sur le climat. Dans le cadre du projet INSU-LEFE/h-BC, le CNRM engagera deux campagnes de mesure intensives avec apport instrumental (dont le HTDMA-SP2) en hiver 2020 et été 2021 à la station de recherche du Pic du Midi afin de compléter les mesures d'aérosols que le CNRM réalise déjà depuis janvier 2019. Les observations seront utilisées pour évaluer la représentation du carbone-suie dans le modèle de climat régional ALADIN-CLIMAT et ajuster les paramétrisations du modèle.

Dans le cadre de la prévision numérique du brouillard, les données recueillies pendant la campagne de mesure du projet ANR/SOFOG3D permettront d'étudier les processus d'activation des aérosols en gouttelettes nuageuses en fonction de leur distribution verticale, ainsi que d'évaluer l'impact de l'échauffement induit par les aérosols sur l'évaporation et le déplacement vertical du brouillard en couplant les observations au modèle Meso-NH.

Concernant l'étude de la qualité de l'air et du climat urbain, le CNRM participera aux projets ANR/H2C et ANR/ACROSS-AO. Le cœur de ces projets sera une campagne de mesure à réaliser au cours de l'été 2022 à Paris, région retenue afin de préparer les JO 2024. La variabilité verticale des propriétés microphysiques,

optiques et hygroscopiques des aérosols sera mesurée sous ballon captif dans le cadre du projet ANR/H2C. Ce projet a pour objectif d'améliorer la prévention des vagues de chaleur pour mieux orienter les services climatiques urbains. Les observations couplées au modèle Meso-NH devront permettre d'étudier l'impact radiatif des aérosols urbains à l'échelle de la région parisienne et leurs retro-actions sur le climat urbain. Dans le cadre du projet ANR/ACROSS-AO le CNRM réalisera des mesures à bord de l'avion de recherche ATR-42 en été 2022 afin de quantifier les sources et les transformations physico-chimiques des aérosols dans le panache urbain de Paris. L'objectif sera en particulier d'étudier le rôle des interactions entre émissions anthropiques et biogéniques dans la formation des aérosols organiques secondaires et du vieillissement du carbone-suié. Les mesures des deux projets seront synchronisées afin d'acquérir une information sur l'évolution temporelle et sur la verticale des propriétés des aérosols dans le panache urbain.

B. Télédétection des aérosols

Des incertitudes liées à la distribution spatiale et l'évolution temporelle des grandes classes d'aérosols existent encore aujourd'hui. La télédétection spatiale est en mesure de réduire ces incertitudes grâce à son grand potentiel pour détecter et caractériser ces particules en suspension depuis l'espace. L'observation par satellite est possible grâce à l'utilisation d'algorithmes de restitution qui estiment les propriétés des aérosols par inversion mathématique d'un modèle de transfert radiatif.

Les dernières décennies ont connu le lancement de missions spatiales avec le but de caractériser les aérosols. Il s'agit par exemple des satellites Terra et Aqua de la NASA équipés de l'imageur multi-spectral MODIS, de la mission CALIPSO (NASA/CNES) avec le lidar CALIOP ou du satellite PARASOL du CNES équipée du radiomètre multi-polarisant POLDER. Des algorithmes ont été développés pour restituer les propriétés des aérosols à partir des données fournies par ces missions (Levy *et al.*, 2013 ; Winker *et al.*, 2010 ; Dubovik *et al.*, 2011), avec l'épaisseur optique des aérosols (ou AOD) comme variable la plus communément estimée. Ces informations sont aujourd'hui mises à disposition des communautés scientifiques travaillant sur la prévision du temps ou le climat ou encore l'énergie photovoltaïque. Durant les dernières années, le CNRM

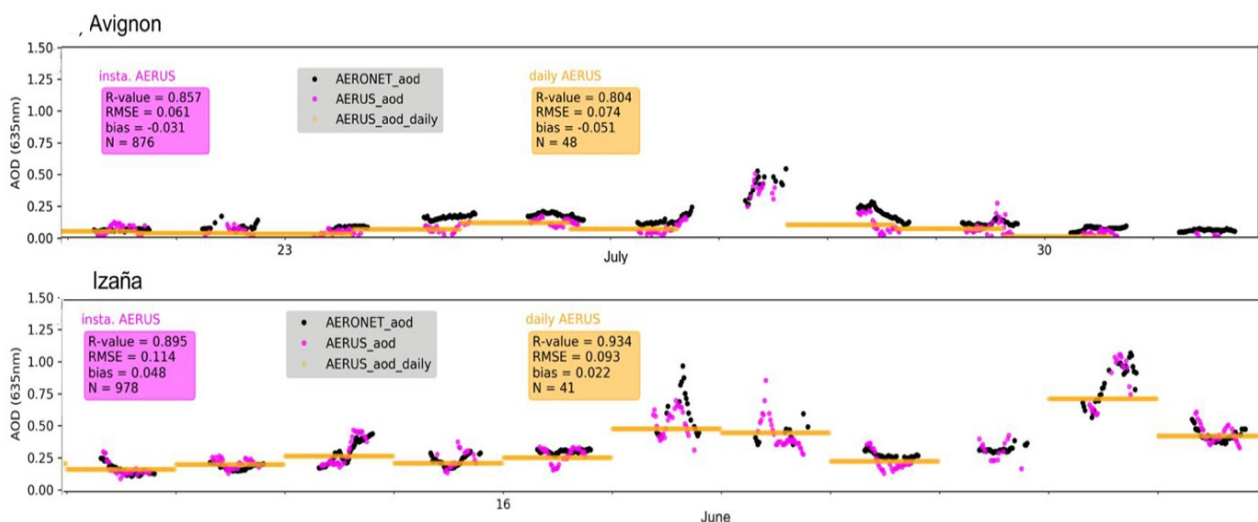


Illustration 2: Séries temporelles d'AOD provenant de mesures au sol AERONET (noir), AERUS-GEO au pas de temps journalier (orange) et i-AERUS-GEO toutes les 15 minutes (rose) sur les stations de Avignon et Izaña.

a développé une expertise sur l'observation des aérosols à partir de l'imageur multi-spectral SEVIRI à bord du satellite à orbite géostationnaire Meteosat Seconde Génération (MSG) opéré par EUMETSAT. L'algorithme de restitution AERUS-GEO développé dans le cadre de ce travail fournit des cartes d'AOD au pas de temps journalier (Carrer *et al.*, 2014). Aujourd'hui, le CNRM s'intéresse à la restitution de la variation diurne de l'AOD, qui est un besoin des communautés scientifiques comme celle travaillant sur l'amélioration de modèles atmosphériques par assimilation de données satellitaires. Pour ce faire, le nouvel algorithme i-AERUS-GEO (Ceamanos *et al.*, 2019) exploite la haute résolution temporelle des plateformes géostationnaires par

rapport aux satellites défilants, avec une image toutes les 15 minutes pour MSG contre une image par jour pour MODIS (Illustration 2).

Dans le futur, le CNRM s'intéressera à l'observation des aérosols au-delà de l'estimation de l'AOD. L'accent sera mis sur l'estimation des propriétés des aérosols liées à leur spéciation comme l'albédo de simple diffusion qui est une variable climatique clé de par sa détermination de l'absorption du rayonnement solaire. Malgré l'importance de ces informations, cette caractérisation avancée s'avère actuellement difficile avec le satellite MSG. Ce verrou pourra être levé dans les années à venir grâce à la future mission géostationnaire MTG-I qui sera équipée de l'imageur FCI fournissant des performances améliorées par rapport à l'imageur actuel SEVIRI.

Le CNRM participe depuis plusieurs années au développement d'un algorithme de détection, de classification et de caractérisation des nuages à partir des observations des imageurs en orbite géostationnaire (MSG, Himawari et GOES) dans le cadre du projet SAF NWC (Satellite Applications Facilities for Nowcasting) financé par Eumetsat. Les produits satellitaires obtenus sont fournis aux prévisionnistes en temps quasi réel d'où la nécessité d'avoir des algorithmes très performants, typiquement le traitement d'une observation quart horaire de type SEVIRI ne prend que quelques minutes. Dans la dernière version de l'algorithme une branche de détection des poussières désertiques a été introduite ce qui permet une observation de ces aérosols sur l'ensemble du globe terrestre (Illustration 3). De jour, les aérosols désertiques sont détectés grâce aux canaux IR et visibles. Les méthodes de détection reposent sur l'homogénéité spatiale de la réflectance visible et sur le fait qu'en présence d'aérosols, l'absorption dans certains canaux est plus importante que pour d'autres (canaux IR à 10.8 μm et 12 μm). De nuit sur mer, la méthode consiste à effectuer un test thermique et utilise le Saharan Dust Index (Merchant et al., 2006) basé sur les différences entre les luminances mesurées à 10.8 μm et 12 μm et les différences entre les luminances mesurées à 3.8 μm et 8.7 μm . De manière générale, les seuils qui permettent la distinction des aérosols, des nuages et des surfaces sont estimés empiriquement par satellites avec des situations d'aérosols désertiques clairement identifiées.

Cette détection est validée avec les observations du lidar (CALIOP) embarqué à bord du satellite CALIPSO. Étant donné que la distinction des aérosols désertiques est basée essentiellement sur des réflectances et des contrastes thermiques, la méthode échoue pour des épaisseurs optiques faibles ou inférieures à 0.3 qui ne sont pas retenues pour la validation. Au-dessus des surfaces maritimes, avec les données des satellites géostationnaires 47 % des aérosols désertiques sont détectés le jour contre 31 % la nuit. Cependant, seulement 5 % des événements observés par le lidar CALIOP sont détectés avec les satellites géostationnaires de jour au-dessus des surfaces continentales.

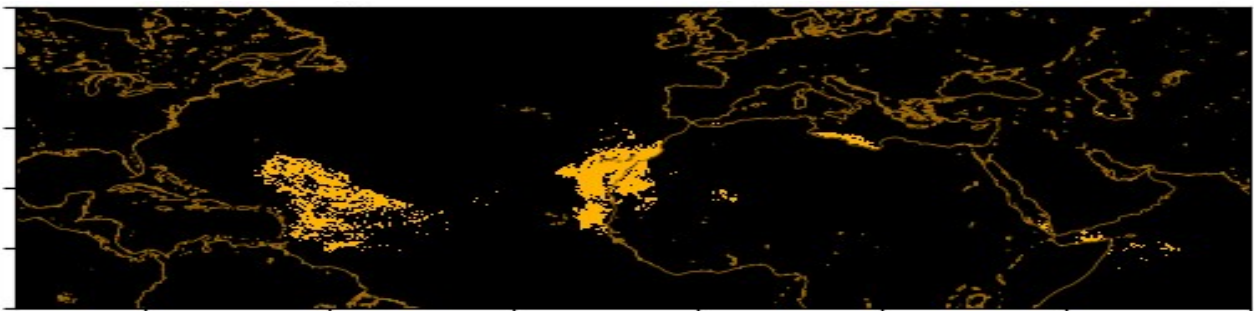


Illustration 3: Détection des aérosols désertiques (en jaune) pour des observations combinées de MSG-4 et GOES-16 le 10 juillet 2018 à 00h00.

II. Modélisation des aérosols pour la qualité de l'air

Météo-France développe depuis une vingtaine d'année le modèle de Chimie-Transport MOCAGE. Il décrit la composition troposphérique et stratosphérique des gaz et des aérosols à l'échelle globale et régionale sur la base de domaines imbriqués. Il est dit « off-line » car il utilise en entrée les champs météorologiques issus de modèles de prévisions numériques du temps (ARPEGE, IFS, AROME) ou de climat (ARPEGE). Il inclut aussi un système d'assimilation de type variationnel, développé conjointement par le CNRM et le CERFACS, permettant la production d'analyses ou ré-analyses de composition de l'air. Ce modèle sert de base à des études de recherches très variées sur la composition de la troposphère et la stratosphère mais est aussi à vocation opérationnelle. Il est aussi utilisé pour diverses applications opérationnelles pour la prévision de l'ozone stratosphérique et des UV à l'échelle globale, des cendres volcaniques (VAAC) et de la qualité de l'air sur l'Europe (Copernicus) et la France (Prév'Air). De manière générale, l'objectif des travaux réalisés avec MOCAGE sur les aérosols est principalement lié aux applications opérationnelles, et donc vers l'amélioration des performances des analyses et des prévisions de particules fines (PM10 et PM2.5, particules de taille inférieure à 10 μm et 2.5 μm) à la surface et plus largement de tous les types d'aérosols dans la troposphère aux échelles globales et régionales. L'évaluation est faite par rapport à divers types d'observations, principalement les réseaux de mesures de qualité de l'air, les mesures satellitaires et les mesures lidars depuis le sol.

Le développement des aérosols et de l'assimilation de données associée s'est faite progressivement dans MOCAGE, principalement dans le cadre de plusieurs thèses: M. Martet (2005-2008), B. Sic (2011-2014), J. Guth (2012-2015), M. Descheemaeker (2015-2018). Les recherches sur les aérosols concernent principalement les particules fines pour la qualité de l'air. Les plus récentes ont été réalisées sur la zone Méditerranéenne dans le cadre du programme CHARMEx (Sic et al. 2015, 2016, Guth et al 2018, El Amraoui et al. 2020) et sur l'Europe (Descheemaeker et al. 2019). Actuellement, les recherches se concentrent sur la modélisation des aérosols secondaires organiques pour la prévision des particules fines (PM2.5), incluant les émissions de précurseurs biogéniques, et l'assimilation des nombreuses données satellitaires déjà disponibles et celles prévues dans les missions futures. De manière générale, ces études sont menées avec des conditions météorologiques actuelles ou sur la base de scénarios climatiques, permettant d'étudier l'impact du climat sur la qualité de l'air. Ces travaux de recherche ont également des retombées opérationnelles, en particulier pour la prévision de la qualité de l'air qui est enjeu fort des activités de Météo-France. En effet, dans le cadre de la série de projets de recherche européens depuis 2009 (GEMS, MACC, MACC-II et MACC-III) préparant les services CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service), le CNRM a eu la charge de bâtir un système opérationnel de prévisions et d'analyses de qualité de l'air sur l'Europe, basé sur un ensemble de 7 modèles, dont MOCAGE. Depuis 2015, ce sont les services opérationnels de Météo-France qui ont repris cette responsabilité par la coordination du projet CAMS50 incluant maintenant un ensemble de 9 modèles (avec extension probable à 11 modèles). En parallèle, MOCAGE fournit, conjointement avec l'INERIS, des prévisions de qualité de l'air sur la France de la plateforme nationale Prév'Air.

Ce chapitre abordera les activités de recherches menées avec le modèle MOCAGE sur les différentes étapes de la vie des aérosols.

A. Émission des aérosols primaires

1. Aérosols primaires d'origine naturelle

Lorsque les aérosols sont émis directement dans l'atmosphère, on parle d'aérosols primaires. L'émission d'aérosols naturels dépend ainsi des conditions atmosphériques (notamment le vent) et des caractéristiques du sol. Pour les poussières désertiques, c'est l'action du vent qui va déclencher le phénomène de saltation des grains de poussières qui vont faire de petits sauts et en retombant vont générer des grains de tailles plus petites lors de l'impact, en se brisant eux-mêmes ou en brisant d'autres grains présents au sol. Ces derniers vont eux pouvoir être réellement être émis dans l'atmosphère. La prévision des poussières désertiques par MOCAGE est particulièrement critique pour les Armées lors d'événements sur des théâtres d'opération,

en raison des contraintes physiques sur les matériaux des engins déployées et de la réduction de la visibilité, entre autres. L'enjeu spécifique est de pouvoir les prévoir les événements de soulèvement dans toutes les régions du globe avec MOCAGE. Actuellement, la paramétrisation de Marticorena et al., (1997) est utilisée avec des fichiers de données de sols sur une zone restreinte. Cette paramétrisation est efficace pour décrire les émissions de poussières désertiques, mais nécessite des données de sol très précises. C'est pourquoi une nouvelle paramétrisation a été développée récemment, basée sur Kok et al., (2014) et associée à des informations de sol issues de la base de données ECOCLIMAP (Champeaux et al., 2005), permettant une description globale de l'émission des poussières désertiques. Ces améliorations feront partie de la prochaine version opérationnelle de MOCAGE.

Les émissions d'aérosols marins sont également très largement dépendantes du vent. En effet, ce dernier va, dans un premier temps générer des vagues à la surface de l'eau. Un premier phénomène de formation correspond à l'arrachement de petites gouttelettes d'eau au sommet des vagues. Un autre correspond à la libération de gouttelettes d'eau lorsque des bulles remontent à la surface suite au déferlement d'une vague. Dans le modèle MOCAGE, nous utilisons les paramétrisations de Gong et al., (2003) et Jaeglé et al., (2011) qui décrivent la quantité d'aérosols marins émis en fonction de la vitesse du vent et la modulation liée à la température de la surface de la mer (Sič et al., 2015).

De manière générale, l'émission de poussières désertiques et des sels marins dépendant fortement des conditions météorologiques, une réévaluation doit être réalisée à chaque changement de version des champs météorologiques.

Les particules de pollens, ou plus généralement les aérosols biogéniques primaires comprenant également des spores, des virus ou encore des bactéries, sont émis par la végétation. Dans le cas des pollens, il est possible de construire des paramétrisations physiques des émissions basées sur des sommes de températures pour inclure la croissance de la végétation et le vent pour déterminer le moment de la libération des pollens. Dans le cadre du volet régional du service CAMS (CAMS-50), la représentation des pollens de bouleau, aulne, olivier et ambrosie a été intégrée au modèle MOCAGE. D'autres pollens seront intégrés au fur et à mesure que les partenaires de CAMS proposent des modèles pour ces nouveaux végétaux.

Les cendres volcaniques sont émises de manière beaucoup plus directe dans l'atmosphère lors d'une éruption volcanique. L'estimation des quantités d'émissions est cruciale pour les activités de VAAC dont Météo-France a la charge pour une très large zone du globe. Plusieurs profils typiques d'éruption volcanique existent. Mais la nécessité de connaître plus justement la quantité émise en temps réel a conduit la DSM et le CNRM à initier en 2020 des travaux avec le CERFACS, visant notamment l'utilisation d'observations satellitaires. Des collaborations avec le BRGM et le LaMP sont également envisagées.

Les feux de forêt et de biomasse libèrent des aérosols. Des inventaires sont disponibles en temps quasi-réel via le produit GFAS et sont utilisés dans le modèle MOCAGE. Très récemment, des améliorations ont été réalisées dans MOCAGE par l'utilisation des hauteurs d'injection (Cussac et al. 2020), hauteurs maintenant disponibles dans GFAS.

Les différentes émissions sont actuellement réalisées dans un module spécifique de MOCAGE. Dans le cadre d'une approche coordonnée des émissions dans les modèles du CNRM, les fonctionnalités actuelles seront intégrées dans le modèle de surface SURFEX, permettant de mieux prendre en compte les caractéristiques de sol ou l'évolution du couvert végétal, par exemple.

2. Aérosols primaires d'origine anthropique

Concernant les aérosols d'origines anthropiques, le traitement des émissions est très différent. En effet, les émissions d'origine anthropiques ne sont pas toutes soumises à la variabilité liée aux conditions météorologiques. Pour émettre ce type d'aérosols, on part d'un inventaire d'émission, qui va fournir une carte des émissions par secteur d'activité. Dans le modèle MOCAGE pour le suivi de la qualité de l'air au quotidien, on applique une variation temporelle à ces émissions. Aujourd'hui ces profils d'émissions sont fixes, ils ne dépendent que du mois, du jour de la semaine et de l'heure de la journée. Pour le futur, nous prévoyons d'ajouter une variabilité de ces profils temporels liée aux conditions météorologiques. Par exemple, il semble légitime de moduler les émissions liées au chauffage domestique en fonction de l'écart à la température

moyenne. De tels travaux sont rendus possibles grâce à la coopération avec d'autres instituts dans le cadre de projets comme CAMS-50.

Même si la qualité des inventaires progresse avec le temps, ils restent une source d'incertitude connue dans la modélisation des aérosols, en particulier pour la prévision des particules fines.

B. Formation des aérosols secondaires

Les aérosols secondaires se forment, au sein même de l'atmosphère à partir de précurseurs gazeux. On peut décomposer les aérosols secondaires en deux catégories, les aérosols secondaires inorganiques (SIA) et les aérosols secondaires organiques (SOA). La représentation de ces aérosols est très importante pour la prévision des PM_{2.5}.

Les SIA sont composés de sulfates, nitrates et ammonium dont les précurseurs sont respectivement l'acide sulfurique (issu de l'oxydation du dioxyde de soufre), l'acide nitrique (issu de l'oxydation des oxydes d'azote) et l'ammoniac (polluant primaire). La formation des différents précurseurs est assuré par le schéma chimique de MOCAGE. Ensuite, la partition entre la phase gazeuse et la phase aérosol est réalisée à l'aide du modèle ISORROPIA (Guth et al., 2016).

Similairement, les SOA sont issus d'un équilibre entre la phase gazeuse et la phase aérosol. Dans ce cas ce sont des composés organiques dont la volatilité est plus ou moins élevée qui vont se transformer en aérosols. Les composés organiques volatiles (COVs) sont le point de départ. Ce sont des molécules organiques qui sont émises dans l'atmosphère soit de manière naturelle, soit par les activités humaines. Les émissions biogéniques sont modélisées par le modèle MEGAN³ interfacé avec MOCAGE et dépendent des conditions météorologiques (Guenther et al., 2012). Dans l'atmosphère ces molécules vont subir diverses transformations chimiques, leur structure moléculaire va évoluer, ainsi que la volatilité associée. On obtient alors des composés organiques dont la volatilité est trop faible qui vont se condenser, d'autres dont la volatilité est assez élevée qui vont rester en phase gazeuse et tout un panel de composés avec des volatilités intermédiaires qui vont plus ou moins se condenser dans la phase aérosol en fonction de leur volatilité et des conditions météorologiques, notamment température et humidité. Lorsque l'on souhaite modéliser la formation des SOA, on se heurte à un problème de représentativité des composés organiques. En effet, il existe une multitude de COVs et un nombre encore plus important de dérivés après réactions chimiques.

Un très gros effort de la communauté scientifique est actuellement en cours pour mieux comprendre les processus associés aux SOA et les représenter dans les modèles. Vu la complexité des processus et la diversité des composés mis en jeu, les modèles doivent faire des compromis entre représentation détaillée et temps calcul, particulièrement en contexte de production opérationnelle. Dans le modèle MOCAGE, nous avons choisi d'implémenter trois schémas de SOA de complexité croissante. Historiquement, le premier schéma a été choisi parce que très peu coûteux en temps de calcul répondant aux contraintes opérationnelles. Il consiste simplement à émettre des aérosols secondaires en multipliant les émissions de carbones organiques primaires par un facteur. L'idée est de se caler sur des observations de partitions d'aérosols pour déterminer ce facteur. Ceci consiste à dire que l'on considère que des précurseurs de SOA sont émis en même temps que les aérosols de carbones organiques primaires, ce qui est en partie vrai, et que l'on ne représente pas explicitement les différents processus de formation. Même si cette méthode est extrêmement simple, elle donne des résultats qui sont très raisonnables. L'inconvénient majeur est que l'on ne pourra pas représenter les SOA d'origine biogénique. La deuxième méthode se base sur les travaux de Spracklen et al., (2011). Ici, pour les SOA anthropiques, on émet un précurseur des SOA, proportionnellement aux émissions de CO. Ce précurseur va s'oxyder sous l'effet de OH, pour former un composé condensable. A cela s'ajoute, pour les SOA biogéniques, la prise en compte de l'alpha-pinène et l'isoprène qui sont des espèces biogéniques et qui vont être oxydées par OH, O₃ et NO₃. Cette méthode est plus représentative de ce qu'il se passe dans l'atmosphère et est encore très simple par rapport à la complexité des phénomènes atmosphériques, mais permet de représenter une gamme plus large de processus que la première méthode. Enfin, la troisième méthode, est en cours d'implémentation dans le modèle MOCAGE et se base sur l'utilisation du modèle SSH-aérosols (Sartelet et al., 2020) développé conjointement par l'Institut National de l'Environne-

ment industriel et des RISques (INERIS) et le Centre d'Enseignement et de Recherche en Environnement Atmosphérique (CEREA). Ce modèle permet de prendre en compte une grande quantité de composés et de processus physiques de formation et d'évolution de la population d'aérosols. Ce module SSH-aérosols est beaucoup plus coûteux en temps de calcul que les autres schémas et ne pourra pas trouver sa place dans une utilisation opérationnelle. Néanmoins, SSH-aérosols va permettre la validation des autres schémas simplifiés, ainsi que la calibration de leurs paramètres via l'utilisation des méthodes d'intelligence artificielle.

C. Transformations physiques

Le transfert entre la phase gazeuse et la phase aérosol peut se faire de deux manières différentes. Premièrement, des aérosols peuvent se former spontanément sans support. Ce phénomène de nucléation nécessite des conditions de sursaturation. S'il existe déjà des aérosols dans l'atmosphère, on peut avoir un autre phénomène qui se produit que l'on appelle condensation. Dans ce cas, les molécules de gaz se collent/déposent directement sur une particule existante. La rapidité de condensation varie en fonction des affinités qu'il existe entre les différents composants. On aura alors une croissance des aérosols en taille et en masse.

Les aérosols peuvent également interagir entre eux pour donner lieu à une croissance de la taille moyenne des aérosols et une diminution du nombre par coagulation. Différentes particules vont se rapprocher et fusionner pour donner une particule plus grosse. Ici aussi, l'efficacité de la coagulation dépend de la population d'aérosols et des affinités qu'il existe entre eux.

Dans MOCAGE nous ne représentons actuellement aucun de ces processus explicitement, parce que nous ne nous intéressons pas à ces processus de manière détaillée mais aux paramètres plus macroscopiques que sont les concentrations en particules fines (PM2.5 et PM10). Nous supposons et appliquons une distribution fixe aux aérosols qui ne varie avec le temps que via les processus d'émissions et de dépôts. L'intérêt de l'utilisation de SSH-Aérosols qui est en cours d'introduction dans MOCAGE réside également dans le fait que ce module permet de représenter ces différents processus.

D. Dépôts et transport

Il existe trois processus de dépôt des aérosols : le dépôt sec, le dépôt humide et la sédimentation. Le dépôt sec correspond au dépôt des aérosols à la surface (sol, végétation, eau, etc). C'est un phénomène continu qui dépend entre autres des conditions météorologiques. Le dépôt humide se décompose en deux phénomènes. Le premier correspond à la dissolution des aérosols dans les gouttes d'eau nuageuse au moment de leur formation. Les aérosols tombent ensuite lorsque les gouttes ont atteint une taille critique. Le deuxième processus qui existe correspond à la collecte d'aérosols par les gouttes de pluie lors de leur chute. Enfin, la sédimentation correspond à la chute des aérosols sous l'effet de leur propre poids. Ces différents processus de dépôts, qui sont inclus dans le modèle MOCAGE, ont été revus par Sič et al., (2015). Dans cet article, il a été montré l'importance de bien représenter ces processus pour la représentation de la composition atmosphérique en aérosols et en particulier pour la qualité de l'air.

Il n'est pas prévu de travailler sur ces processus dans le modèle MOCAGE dans les années à venir, même s'ils sont une source d'erreur du fait des incertitudes sur la météorologie, les conditions de surface et les paramétrisations. Ces processus devront être ré-adressés dans le cadre d'une modélisation en ligne.

E. Assimilation d'observations

La combinaison des observations avec des prévisions de modèles décrivant l'évolution des aérosols permet de tirer parti de la richesse des deux types d'informations. Les visées sont variées, allant de l'amélioration pragmatique des prévisions de la qualité de l'air, à l'étude de processus, tout en permettant de disposer de ré-analyses pouvant servir de base à des climatologies.

Le modèle MOCAGE met en œuvre une assimilation permettant de modifier les champs d'aérosols. Ce module est développé en collaboration avec le CERFACS. Il permet d'assimiler, outre les observations liées

aux composés chimiques gazeux, des mesures in situ de qualité de l'air, des observations d'AOD ainsi que les différentes quantités issues des mesures lidar (depuis le sol ou depuis l'espace), de façon individuelle ou conjointement.

Dans le cadre du projet CAMS-50, une assimilation conjointe des particules fines PM10 et PM2.5 à partir d'observations in situ de qualité de l'air de l'European Environment Agency a été mise en place, conduisant à un meilleur réalisme des analyses. Une piste d'amélioration est l'assimilation conjointe avec des observations télé-détectées depuis la surface ou l'espace.

Les produits satellitaires d'AOD sont largement répandus. L'idéal étant de disposer d'observations les plus instantanées possibles. Ainsi les observations d'AOD issues de l'instrument MODIS à bord de Terra et Aqua ont fait partie des premières observations d'AOD assimilées dans MOCAGE (Sič *et al.*, 2016). Ces observations vont faire partie de la première mise en œuvre opérationnelle de l'assimilation pour les aérosols dans MOCAGE en 2021, les analyses obtenues servant d'initialisation pour les prévisions. Des observations similaires venant d'autres plate-formes seront incorporées, allant de l'imageur américain VIIRS au produit européen PMAP en passant par les mesures des Sentinel du programme Copernicus. Des travaux préparatoires concernant l'utilisation de l'instrument FCI à bord de la mission MTG. Les résultats de la thèse de M. Descheemaeker basés sur une méthode d'OSSE (*Observing System Simulation Experiment*) ont montré la capacité de ces prochaines mesures à améliorer la prévision par MOCAGE des particules fines pour la qualité de l'air (Descheemaeker *et al.* 2019). La méthode OSSE a consisté à générer des observations synthétiques simulant les futures observations FCI et à les intégrer dans le système d'assimilation de MOCAGE pour y évaluer leur impact.

Les lidars spatiaux sont des instruments permettant de bien observer les aérosols à l'échelle globale et d'apporter une information sur leur répartition verticale. C'est le cas de l'instrument CALIOP à bord de CALIPSO. Leur assimilation dans MOCAGE a été documentée dans (El Amraoui, 2020). Dans le cadre du projet CNES EECLAT, des réanalyses assimilant CALIOP ont couvert plus de 10 ans, fournissant un jeu de données devant être encore valorisé. Les activités d'assimilation d'aérosols interviennent également dans le projet ACCP (*Aerosol-Clouds Convection and Precipitation*), projet collaboratif entre le CNES et la NASA et qui consiste à la définition d'un lidar embarqué (lancement prévu à partir de 2026). Le projet est en phase A pour laquelle des études de faisabilité ont déjà commencé. Dans le cadre de ce projet, une thèse au CNRM a démarré en janvier 2020 avec pour objectif l'évaluation de la valeur ajoutée de ce lidar à mieux caractériser les différents types d'aérosols en utilisant une approche d'OSSE. A partir du « nature Run » représentant l'atmosphère réelle, une inversion sera faite afin de produire les observations synthétiques telles qu'elles seront échantillonnées par le lidar tenant compte des incertitudes instrumentales et celle liées aux différents paramètres météorologiques, de surface et d'inversion. Ces observations synthétiques seront par la suite assimilées dans le modèle MOCAGE afin de quantifier l'apport de ces mesures lidar à contraindre le modèle et à améliorer la distribution des différents types d'aérosols dans le modèle (thèse de F. Cornut).

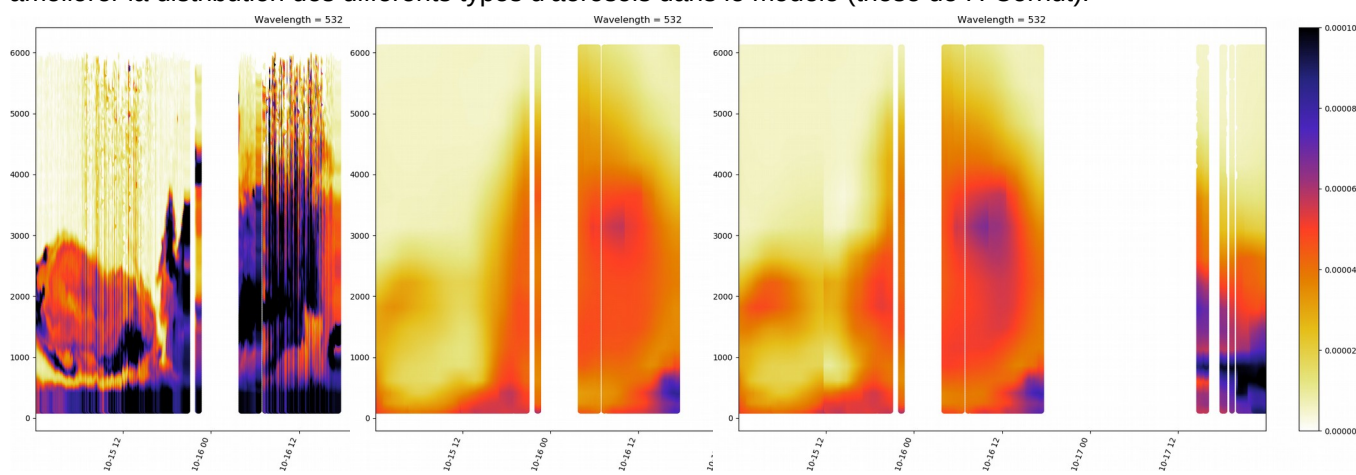


Illustration 4: Comparaison des profils de coefficient d'extinction observé par le lidar sol de Lille (gauche), modélisé par un run MOCAGE sans assimilation (centre), et par une analyse MOCAGE assimilant le lidar spatial CALIOP (droite). Situation du 15-18 octobre 2017, épisode de transport de poussières désertiques et d'aérosols émis par des feux de forêts au Portugal par la tempête Ophelia. L'assimilation du lidar spatial permet à la fois de corriger la quantité totale et la répartition verticale.

Les mesures lidar depuis le sol sont un complément permettant de décrire l'extension verticale des panaches d'aérosols . C'est le cas des lidars du réseau MPL (*Micro Pulse Lidar*) répartis sur la France, qui seront intégrés à l'assimilation opérationnelle dans MOCAGE. Ils permettent, en cas d'éruption volcanique, d'avoir une réponse rapide et la plus précise possible quant à la dispersion du panache volcanique sur le domaine couvert par les mesures. Nous prévoyons également d'étudier la faisabilité ainsi que la valeur ajoutée de l'assimilation des mesures du réseau des télémètres européen (CHM15K) issues de la plateforme E-PROFILE.

Un point limitant de la mise en œuvre actuelle de l'assimilation dans MOCAGE est que seule la quantité totale d'aérosols est modifiée, sans changer la proportion de répartition dans les types d'aérosols présente dans l'ébauche de l'assimilation. Une progression importante dans la correction des aérosols sera de prendre en compte une information sur la spéciation. Les produits IASI-dust du LISA ou ceux issus de SEVIRI (puis FCI) précédemment décrits permettront d'avancer dans ce sens, tout comme l'assimilation directe de luminances spectrales (thèse de M. El Aabaribaoune au CERFACS).

III. Aérosols et climat

Les aérosols font partie intégrante du système climatique, et jouent un rôle important dans son évolution passée, présente et future. Ils interagissent en effet avec l'atmosphère, le cycle de l'eau, la cryosphère et plus généralement les cycles biogéochimiques. Il est donc essentiel de bien comprendre leurs effets sur le climat, et pour cela de les représenter au mieux dans les modèles de climat.

A. Les débuts des interactions aérosols-climat au CNRM

Au CNRM, la représentation des aérosols et de leurs interactions avec le rayonnement et avec les nuages s'est progressivement complexifiée au fil des versions des modèles de climat (ARPEGE-Climat pour le global et ALADIN-Climat pour le régional). Dès la fin des années 1990, la variabilité spatiale des aérosols a été prise en compte en considérant en entrée du modèle une climatologie 2D latitude-longitude (Tegen et al., 1997) des épaisseurs optiques AOD à 550 nm des cinq principaux types d'aérosols troposphériques naturels et anthropiques (sels marins, poussières désertiques, matière organique, carbone-suie et sulfates). Les aérosols stratosphériques, largement issus des éruptions volcaniques majeures, ont également été pris en compte de la même manière. Ces distinctions permettent d'affecter des propriétés optiques différentes selon le type d'aérosols et ainsi de représenter différents effets, dont la diffusion et l'absorption du rayonnement et la formation de gouttelettes nuageuses. L'évolution temporelle de ces AODs a été prise en compte au début des années 2000, permettant ainsi de représenter les effets des aérosols sur le changement climatique. Ainsi pour la cinquième phase de l'exercice CMIP (Coupled Model Intercomparison Project 5) servant de base au cinquième rapport d'évaluation du GIEC (2013), la climatologie de Tegen a été remplacée par des données d'AOD venant de simulations climatiques du modèle LMDz-INCA (Szopa et al. 2012), permettant d'avoir l'évolution des aérosols pour différents scénarios futurs.

B. La mise en place d'un schéma interactif d'aérosols

Cependant, l'utilisation de climatologies externes d'aérosols a plusieurs inconvénients, à savoir la dépendance à la disponibilité de jeux de données externes, la non prise en compte de la variabilité haute fréquence des aérosols et donc l'absence de rétroactions possibles entre le climat et les aérosols. Un schéma d'aérosols interactifs, autrement dit « en-ligne », dénommé TACTIC (Tropospheric Aerosols for Climate In CNRM), a donc été introduit et validé dans ARPEGE-Climat et ALADIN-Climat au début des années 2010 (Michou et al. 2015 ; Nabat et al. 2015b). TACTIC est très largement issu du schéma d'aérosols introduit dans le modèle du CEPMMT (Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme) dans le cadre des projets européens GEMS, puis MACC et MACC-II (Morcrette et al. 2009). La mise en place de TACTIC résulte d'une étroite collaboration avec Jean-Jacques Morcrette et a largement bénéficié du fait que les codes ARPEGE, IFS et ARPEGE-Climat aient un large socle en commun. Cette étroite collaboration continue aujourd'hui grâce à la participation du CNRM au programme COPERNICUS CAMS-43. TACTIC est un schéma d'aérosols adapté aux simulations climatiques, dans la mesure où sa complexité est certes limitée mais suffisante pour représenter les effets des aérosols sur le climat (interactions avec le rayonnement et les nuages), ce qui permet d'avoir un schéma robuste pour un coût numérique limité permettant des simulations sur de longues périodes de temps.

Les aérosols sont en effet inclus par l'intermédiaire de variables pronostiques (entre douze et dix-huit selon les configurations), selon une distribution sectionnelle en fonction de leur taille et de leur caractère hydrophobe ou hydrophile selon les espèces. TACTIC fait partie intégrante de la physique du modèle de climat, et ces variables aérosols pronostiques interagissent à chaque pas de temps de la physique avec les champs

météorologiques (vent, précipitations, etc.) mais aussi avec le rayonnement à chacun de ses appels. Les espèces représentées sont au départ les mêmes que dans les climatologies utilisées auparavant, auxquelles ont été rajoutées récemment les nitrates, l'ammonium et le « brown carbon » (partie absorbante du carbone organique). Pour tous les aérosols, on représente ainsi leurs émissions (dynamiques pour les sels marins et les poussières désertiques, avec des inventaires pour les émissions anthropiques), leur transport (inclus dans la dynamique du modèle de climat), leur évolution chimique de manière simplifiée (conversion SO₂-SO₄, équilibre gaz-particules pour les nitrates), leurs dépôts (dépôt sec, sédimentation, lessivage, dépôt humide), leurs effets sur le rayonnement (absorption et diffusion), et le premier effet indirect (effet Twomey). Par rapport au schéma originel de Morcrette, les travaux menés au CNRM dans un premier temps ont notamment concerné l'amélioration des poussières désertiques, des sels marins, et des propriétés optiques.

Cela a abouti à l'inclusion de TACTIC dans les simulations climatiques du CNRM pour CMIP6 dans le modèle de système Terre CNRM-ESM2-1 (Séférian et al. 2019). Cela permet donc au CNRM de faire partie du petit nombre d'instituts au monde à avoir un système de modélisation climatique du système Terre incluant une représentation interactive des composantes principales du climat (atmosphère, aérosols, océan, biogéochimie marine, surfaces continentales, cycle du carbone). Dans l'autre version du modèle de climat utilisé pour CMIP6, à savoir CNRM-CM6-1 (Voldoire et al. 2019), les aérosols sont toujours représentés par des champs évolutifs d'AOD, mais provenant de simulations effectuées avec TACTIC dans la version ESM, ce qui assure une meilleure cohérence entre la physique du modèle et le forçage en aérosols qu'avec les climatologies externes utilisées précédemment.

En parallèle, à l'échelle régionale, nous avons mis en place un système équivalent pour la région méditerranéenne, CNRM-RCSM6, qui inclut le modèle régional de climat ALADIN avec le même schéma d'aérosols TACTIC (Nabat et al. 2020). Cela est facilité par le fait que les modèles global et régional partagent exactement le même code, et les développements réalisés avec l'un des modèles profite donc à l'autre, et réciproquement.

C. Thématiques scientifiques de recherche

Grâce à ces développements, nous menons une activité de recherche autour des interactions aérosols-climat au sens large. L'objectif est de mieux comprendre le rôle des aérosols dans le système climatique à différentes échelles spatio-temporelles. A l'échelle globale, la sensibilité du modèle de climat aux aérosols a été étudiée dans la publication de Watson et al. (2018), montrant notamment le rôle important de leurs propriétés optiques et de leur distribution verticale. Plus récemment, les simulations CMIP6 permettent de mieux quantifier le forçage radiatif des aérosols (Michou et al. 2020), comprendre leur évolution future et les conséquences sur le changement climatique. Les exercices dédiés RFMIP et AerChemMIP auxquels nous avons participé ont permis ces analyses grâce aux nombreux diagnostics produits, et ont abouti à une dizaine de publications dans lesquelles le CNRM est impliqué (e.g. Allen et al., 2020, Smith et al. 2020, Zanis et al. 2020). Nous sommes également impliqués dans des projets nationaux (ANR MORDICUS) et européens (H2020 CRESCENDO, H2020 CONSTRAIN) dans lesquels s'inscrivent ces questions scientifiques.

A l'échelle régionale, plusieurs publications ont montré le fort impact des aérosols sur le climat de la région euro-méditerranéenne, que ce soit sur le climat moyen (Nabat et al. 2015a), les tendances historiques passées (Nabat et al. 2014, Drugé et al. 2019, Illustration 5), ou la variabilité quotidienne (Nabat et al. 2015b, 2020). Le CNRM joue ainsi un rôle de leader sur le thème des interactions aérosols-climat à l'échelle régionale, grâce au projet FPS-Aerosols du programme CORDEX dont il assure la coordination. Plus récemment, des premiers scénarios climatiques futurs avec aérosols interactifs ont été menés sur cette même région, et ont montré la contribution de l'évolution des aérosols anthropiques au changement climatique à l'échelle régionale (thèse de Thomas Drugé, 2019). Par ailleurs, des travaux spécifiques ont été réalisés en parallèle sur les feux de biomasse, et notamment leurs effets sur le climat de la région de l'Afrique Tropicale (Mallet et al. 2019, 2020).

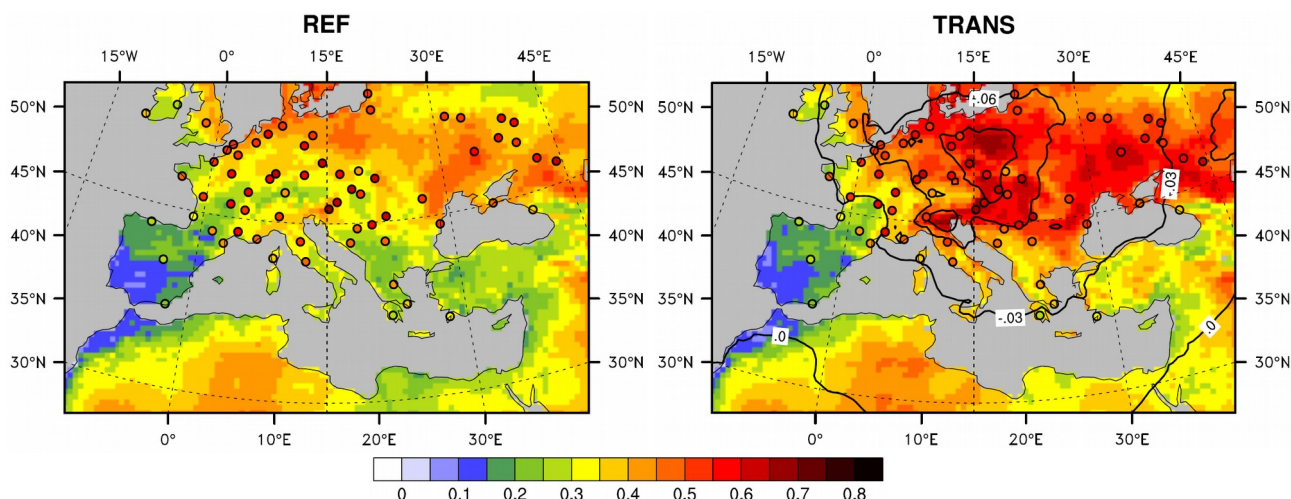


Illustration 5: Impact de l'évolution historique des aérosols sur le réchauffement climatique en Europe : tendance de température simulée par ALADIN-Climat (1980-2007, °C/décennie), à gauche dans une simulation sans évolution des aérosols (REF), à droite avec évolution des aérosols (TRANS, tendance de l'AOD en isolignes noires). Les tendances observées par des stations sont notées par des points dans la même gamme de couleur (d'après Nabat et al. 2014).

D'autre part, les simulations climatiques réalisées ont permis d'aborder d'autres questions scientifiques par l'intermédiaire de collaborations avec des groupes spécialistes. Nous avons ainsi travaillé grâce aux diagnostics de TACTIC dans des simulations régionales sur l'impact des aérosols sur l'énergie photovoltaïque en Europe (collaboration avec l'université de Toledo, Gutierrez et al. 2018, 2020), sur la biogéochimie marine (collaboration avec le LSCE, Richon et al. 2018), et sur le manteau neigeux (collaboration avec le CEN, Dumont et al. 2017, Tuzet et al. 2017).

D. Perspectives scientifiques

Dans le futur proche mais aussi à plus long terme, les travaux de recherche autour des interactions aérosols-climat seront toujours liés d'une part aux développements de modélisation permettant le maintien à l'état de l'art d'un schéma interactif d'aérosols, et d'autre part aux études de compréhension du rôle des aérosols dans le système climatique à différentes échelles spatio-temporelles.

En ce qui concerne le schéma d'aérosols, plusieurs développements récents dans TACTIC sont validés ou en cours de validation, à savoir l'introduction d'aérosols de nitrates et d'ammonium via un module d'équilibre chimique entre phase particulaire et phase gazeuse (Drugé et al. 2019) et la mise en place d'un cycle du soufre plus détaillé prenant en compte l'oxydation en phase aqueuse et gazeuse. Ces deux améliorations ont nécessité l'utilisation de climatologies d'espèces gazeuses non représentées dans le modèle pour le moment (ozone troposphérique, acide nitrique, eau oxygénée et radical OH), qui proviennent de réanalyses du CEPMMT (CAMSiRA, CAMSRA). Le schéma de lessivage des aérosols a également été revu et amélioré récemment. Tous ces travaux ont été menés dans le cadre du programme COPERNICUS CAMS-43, et la proximité des codes entre ARPEGE et IFS permet de bénéficier dans TACTIC des développements du modèle IFS. A plus long terme, l'objectif est d'aller vers la mise en place d'un module de chimie troposphérique en ligne dans les modèles de climat. L'hypothèse privilégiée est l'appel aux routines de la chimie de MO-CAGE comme cela a été mis en place au CEPMMT dans C-IFS. Cela permettra ainsi d'avoir directement en ligne les espèces chimiques intervenant dans la formation et l'évolution des aérosols, et de remplacer ainsi les climatologies existantes. La question du temps de calcul reste bien évidemment primordiale, il faut pouvoir conserver la possibilité de réaliser des simulations multi-décennales, et trouver ainsi la complexité de la chimie nécessaire et suffisante. La chimie troposphérique permettra également d'améliorer la représentation

des aérosols organiques secondaires (SOA). Tous ces futurs développements sont prévus dans le cadre d'un projet européen soumis récemment (ESM2025).

L'intégration des émissions d'aérosols naturels et anthropiques dans le module de surfaces SURFEX, permettant ainsi de mieux prendre en compte les caractéristiques du sol, sera réalisée dans le cadre d'une approche coordonnée des émissions dans les modèles du CNRM. Cela permettra de mieux représenter les émissions de poussières désertiques, dans le but de mieux représenter leurs concentrations à l'échelle globale. Par exemple, un biais récurrent important sur l'épaisseur optique en aérosol existe dans la Saharan Air Layer sur lequel nous souhaitons travailler, en collaboration avec le LOA (utilisation d'observations satellites) et le LATMOS (observations obtenues sur la région dans le cadre du projet CNES ASKOS). Cela pourrait aussi ouvrir la voie à des études sur les interactions entre poussières désertiques et cyclones tropicaux. Des études plus spécifiques seront réalisées à l'échelle régionale sur la zone de l'Afrique de l'Ouest afin d'étudier l'impact de ces aérosols sur le bilan radiatif et son climat notamment sur la zone de mousson. Des études spécifiques concerneront également la représentation des feux de biomasse (meilleure prise en compte des émissions, propriétés optiques, hauteur d'injection, couplage avec un schéma interactif de feux), qui pourraient être un paramètre clé dans le contexte du changement climatique. Il s'agira notamment d'aborder le transport longue-distance de ces panaches, leurs impacts sur le bilan radiatif et le climat global. Des études plus spécifiques sur l'impact des feux extrêmes de 2019-2010 sur le climat régional et global seront également abordées (en collaboration avec le LA). Par ailleurs, une étude spécifique sur les propriétés du carbone-suie et ses impacts sur le climat régional commencera cet automne (thèse en collaboration entre les équipes de modélisation climatique et d'observations du CNRM).

Le couplage des aérosols avec le rayonnement sera également amélioré, grâce à l'implémentation dans nos modèles de climat du module ecRad (Hogan and Bozzo, 2018), permettant une meilleure prise en compte de toutes les propriétés optiques des aérosols à différentes longueurs d'onde, et notamment la diffusion dans les grandes longueurs d'onde par les aérosols désertiques (collaboration LISA) qui est actuellement négligée. En ce qui concerne les effets indirects des aérosols, une réflexion importante sera menée autour d'une meilleure prise en compte des interactions des aérosols avec la microphysique nuageuse dans le modèle. L'estimation des effets indirects des aérosols reste aujourd'hui dans la communauté scientifique ponctuée de larges incertitudes (Malavelle et al., 2017; Toll et al., 2019, Bellouin et al. 2020). Nous pourrions avancer sur la question, en abordant les interactions entre noyaux de condensation et précipitations. A plus long terme, l'objectif sera également de commencer à réfléchir à la meilleure façon de représenter les processus reliant aérosols et noyaux glaçogènes, qui ne sont pas non plus représentés dans le modèle.

D'autre part, il est important de continuer à participer et même à coordonner des études multi-modèles traitant de ces questions. En effet, les incertitudes autour des interactions aérosols-climat sont très importantes, et les ensembles de simulations peuvent apporter des éléments de réponse. L'exercice CMIP6, et notamment les simulations AerChemMIP et RFMIP, continueront à être analysées et valorisées pendant plusieurs années. A l'échelle régionale, des ensembles multi-modèles similaires se mettent actuellement en place dans le cadre du FPS-Aérosols de Med-CORDEX, et permettront d'améliorer nos connaissances sur cette région. De manière générale, nous continuerons à progresser sur les liens entre aérosols et changement climatique. Enfin, nous pouvons aussi mentionner le début de travaux sur des expériences de géo-ingénierie, qui permettront de mieux comprendre l'impact de méthodes faisant appel aux aérosols pour tenter de refroidir le climat (e.g. injection d'aérosols stratosphériques).

IV. Interaction aérosols – rayonnement

A. Propriétés de diffusion simple des aérosols

Les interactions des aérosols avec le rayonnement sont généralement représentées par leurs propriétés de diffusion simple (épaisseur optique dans une couche, albédo de diffusion simple et paramètre d'asymétrie). Ces propriétés sont généralement calculées à partir de la connaissance de la distribution en taille des aérosols, de leur indice de réfraction, et souvent en faisant l'hypothèse que les aérosols sont sphériques. La distribution en taille et l'indice de réfraction pouvant varier avec la nature exacte de l'aérosol au sein d'une même grande classe (poussière désertique ou carbone suie par exemple), les propriétés optiques peuvent en conséquence varier d'une base de données à l'autre. Pour les espèces hydrophiles, elles varient également avec l'humidité relative car les aérosols grossissent en captant de la vapeur d'eau. Ces propriétés optiques peuvent également être mesurées à l'aide d'observations in situ ou via de la télédétection (réseau AERONET de télédétection à partir de la surface). Ces observations montrent que les modélisations simples ne sont parfois pas suffisantes et qu'il faudrait aller vers plus de complexité (aérosols recouverts, formes complexes etc.). Afin de prendre en compte efficacement dans les modèles de Météo-France des mises à jour des propriétés optiques il est essentiel d'externaliser ces propriétés. Ceci facilite également la prise en compte de l'effet radiatif des nouvelles espèces d'aérosols introduites avec le raffinement des modèles d'aérosols.

B. Effet radiatif des aérosols

1. Schéma de rayonnement des modèles météorologiques

Dans un code radiatif atmosphérique, les propriétés optiques doivent d'abord être définies pour chaque bande spectrale du code radiatif, ce qui n'est pas forcément trivial dans le cas où les propriétés optiques varient fortement au sein d'une bande. Les contributions des différents aérosols sont ensuite sommées, puis combinées aux propriétés optiques de l'atmosphère gazeuse et des nuages afin de calculer les flux radiatifs à tous les niveaux de l'atmosphère. Avant cela, les propriétés optiques des aérosols doivent être estimées. Lorsque qu'elles sont déduites d'une concentration en aérosols, ce qui est généralement le cas, cela implique un certain nombre d'hypothèses sur le détail microphysique des aérosols. C'est ce qui est fait dans OPAC (Hess et al., 1998), ou dans le code ecRad par exemple (Bozzo et al., 2017).

Dans Meso-NH, les propriétés optiques des aérosols peuvent être calculées pour chaque classe d'aérosols à partir des profils verticaux des concentrations (e.g. Bozzo et al., 2019), ou calculées en ligne à partir de la connaissance détaillée de la distribution en taille des aérosols (Aouizerats et al., 2010). Dans ce dernier cas, des tables de référence ont été précalculées suivant la théorie de Lorenz-Mie pour différentes distributions.

Dans les modèles de PNT AROME et ARPEGE, des climatologies d'aérosols sont utilisées. Une climatologie d'aérosols est une carte globale donnant pour chaque point de grille et en fonction de l'époque de l'année (granulométrie mensuelle par exemple), soit la quantité totale d'aérosols intégrée sur la verticale (en masse ou en épaisseur optique) soit le profil vertical moyen sur ce point de grille. Elles peuvent être par exemple obtenues à partir de simulations numériques, d'observations satellitaires ou de réanalyses, moyennées sur plusieurs années. Dans AROME, c'est la climatologie de Tegen qui est utilisée en opérationnel.

Une nouvelle climatologie (Bozzo et al., 2019) est en cours d'implémentation dans Meso-NH. Des travaux en cours sur l'évaluation de l'impact de ce changement de climatologie montrent que sur le domaine AROME des différences de l'ordre de 2 % sur la prévision du rayonnement solaire pourraient en résulter. Les propriétés optiques sont fixées.

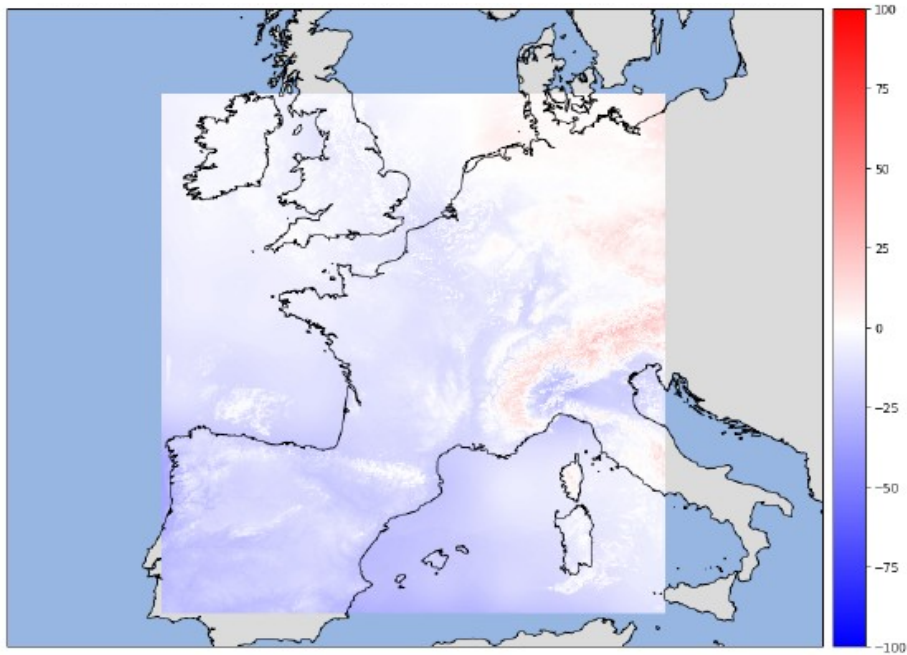


Illustration 6: Rayonnement solaire en surface calculé à partir des champs AROME du 2 août 2019. Différence entre climatologies CAMS et Tegen. Les différences peuvent atteindre 30 W m^{-2} , soit environ 3% du rayonnement total.

2. Interaction avec le manteau neigeux

Les dépôts des aérosols absorbants la lumière (carbone suie, poussières minérales, etc.) à la surface lorsque celle-ci est couverte de neige occasionne un assombrissement de la surface à l'origine blanche. Le bilan radiatif de la surface est alors fortement modifié (augmentation de l'énergie solaire absorbée) ce qui tend à accélérer l'évolution et la fonte du manteau neigeux via différents mécanismes de rétroaction (Skiles et al., 2018).

Dans le cadre de la thèse de F. Tuzet et de l'ANR JCJC EBONI, le modèle de neige SURFEX/ISBA-Crocus a été adapté afin de prendre en compte explicitement les aérosols absorbants dans le manteau neigeux ainsi que leur impact radiatif direct (assombrissement de la surface) et indirect (accélération du métamorphisme de la neige) (Tuzet et al., 2017). Les flux de dépôts d'aérosols en entrée d'ALADIN (Nabat et al., 2015) ont été utilisés. Nous avons pu montrer qu'ils étaient pertinents, au sens où l'impact radiatif des aérosols calculés via la combinaison des deux modèles (ALADIN et Crocus) étaient en bon accord avec les mesures effectuées sur le terrain. L'expérience a été renouvelée dans les Alpes italiennes (Di Mauro et al., 2019), au Col du Lautaret durant deux saisons hivernales (Tuzet et al., 2020) et dans les montagnes du Caucase après un fort événement de dépôt sahariens en combinaison avec des images Sentinel-2 (Dumont et al., 2020). Les flux de dépôts de MOCAGE ont été évalués moins adaptés que ceux d'ALADIN en particulier car les quantités totales de carbone suie semblent trop élevées par rapport à nos mesures terrain. Enfin, des réanalyses d'enneigement sur le période 1979-2018 ont été effectuées à partir d'ALADIN-SAFRAN-Crocus sur l'intégralité des Alpes et des Pyrénées en prenant en compte l'impact des aérosols absorbants. On a ainsi pu montrer que l'impact combiné des poussières et du carbone suie avançait la fonte d'une quinzaine de jours environ en moyenne, avec une forte variabilité interannuelle de l'impact.

Les travaux en cours sur l'assimilation de réflectances satellite pour la simulation du manteau neigeux inclut ces développements (quels seront les flux de dépôts opérationnels les plus adaptés pour cela). Des recherches sont à prévoir sur les propriétés optiques des aérosols dans le manteau neigeux (Tuzet et al., 2019) et l'évolution temporelle de ces propriétés au sein du manteau neigeux. Nous prévoyons également d'étendre notre étude d'impact sur la période future (quels flux de dépôts utiliser?)

3. Simulateur d'observations

Une autre thématique de la modélisation des interactions des aérosols avec le rayonnement concerne la modélisation du transfert radiatif pour les besoins opérationnels en assimilation de données satellitaires dans les modèles de Météo-France. Même si les modèles de PNT (ARPEGE et AROME) n'assimilent pas de luminances aérosols comme ils assimilent les luminances en ciel clair et dans certaines situations nuageuses ou si le CTM MOCAGE permet l'assimilation de produits aérosols tels que les épaisseurs optiques de MODIS à la place des luminances dans un premier temps, il est indispensable que Météo-France se dote d'un modèle de transfert radiatif prenant en compte les interactions entre le rayonnement et les aérosols afin de simuler les observations satellitaires des aérosols. Ce modèle existe, il est développé dans le cadre du projet européen SAF-NWP (Satellite Application Facilities for Numerical Weather Prediction) financé par EUMETSAT et s'appelle RTTOV (Saunders et al., 2018). Il permet de simuler les instruments passifs dans les domaines visible et proche infrarouge (0.4 à 2.5 μm) mais aussi de l'infrarouge à l'infrarouge lointain (3 à 100 μm). C'est un modèle de la catégorie des modèles rapides qui utilise en entrées les sorties des modèles de PNT ou CTM. Il permet outre les simulations de luminances au sommet de l'atmosphère de calculer les Jacobiens (dérivées partielles du modèle direct) pour chacune des entrées (profils atmosphériques et propriétés de surface).

Dans RTTOV la diffusion par les aérosols est modélisée de deux façons différentes, soit avec une méthode de diffusion complète basée sur les ordonnées discrètes (Hocking et al., 2015) valable dans les domaines spectraux solaire et infrarouge, soit à partir d'une paramétrisation de la diffusion (Chou et al., 1999) valable uniquement dans l'IR. Cette dernière est beaucoup plus rapide tout en permettant de garder une bonne précision par rapport à un modèle de diffusion complète. Cette méthode est par exemple utilisée pour inverser les propriétés des aérosols à partir d'observations hyperspectrales infrarouges (Callewaert et al., 2019).

Contrairement aux modèles classiques de transfert radiatif qui simulent les observations satellitaires avec en entrées les propriétés optiques des aérosols (coefficient d'extinction, albédo de simple diffusion et fonction de phase), le modèle RTTOV utilise en entrées des profils de concentration par type d'aérosols (en kg.kg^{-1} ou en part.cm^{-3}) telles que fournies par les CTM. Ces profils sont ensuite convertis en propriétés optiques. Une des difficultés actuelles est alors d'utiliser des types d'aérosols cohérents entre les différents CTM et le modèle RTTOV. Dans les premières versions de RTTOV qui prenaient en compte les aérosols, les types d'aérosols de référence OPAC (Hess et al., 1998) ont été intégrés ainsi que deux autres types : un modèle d'aérosols volcaniques et un modèle de poussière désertique du désert de Gobi (Saunders et al., 2013). Plus récemment, les types d'aérosols CAMS (Bozzo et al., 2017) ont été ajoutées. Il est à noter que depuis la dernière version de RTTOV, il est possible de fournir ses propres propriétés microphysiques des aérosols (indice de réfraction spectrale et distribution en taille) pour lesquelles les propriétés optiques seront calculées avec la théorie de Mie (aérosols sphériques uniquement).

V. Interaction des aérosols avec la microphysique

Les aérosols interagissent avec les nuages et les précipitations via différents processus. Leur effet radiatif, notamment pour les aérosols absorbants, conduit à un réchauffement local de l'atmosphère qui peut modifier les nuages (fractionnement / dissipation) en favorisant l'évaporation des gouttelettes. Mais leur impact principal est lié à leur action comme noyaux de condensation et/ou de congélation, servant de support à la formation de gouttelettes et/ou de cristaux de glace (Köhler, 1936). Ainsi, la population d'aérosols conditionne directement le nombre de gouttelettes formées dans les nuages (Twomey, 1959). Différents mécanismes microphysiques et radiatifs expliquent ensuite la sensibilité des nuages à cette concentration initiale en gouttelettes. Pour les nuages chauds, à contenu en eau nuageuse égal, un nuage composé de gouttelettes plus nombreuses et plus petites aura un albédo plus fort (effet très visible pour les « ship tracks » par exemple, Ferek et al, 2000), la formation de précipitations sera retardée et la durée de vie du nuage augmentée, etc.

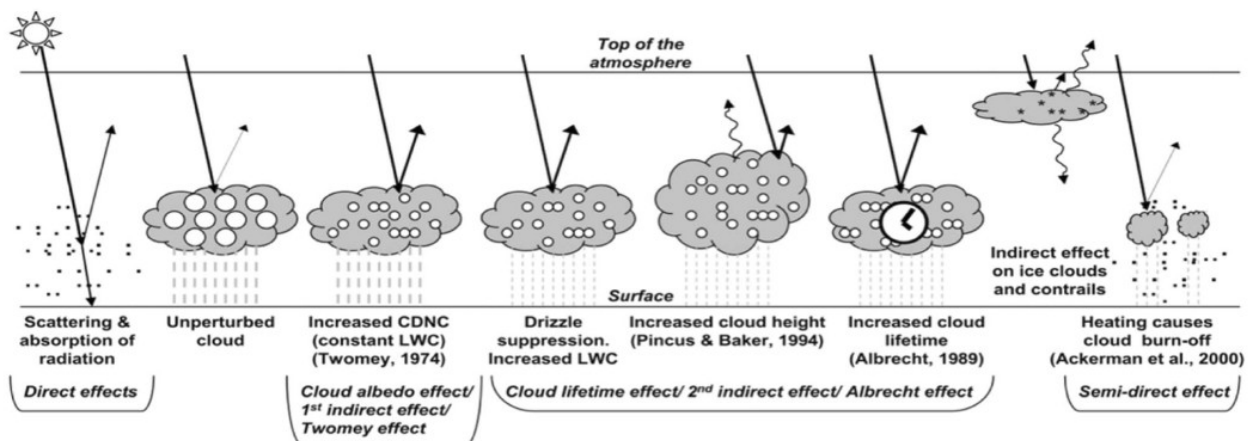


Illustration 7: Différents mécanismes expliquant l'impact des aérosols sur les nuages (Tao et al, 2012)

L'impact des aérosols sur les nuages froids (glacés et en phase mixte) et la convection est plus incertain. Le mécanisme de « renforcement de la convection » est souvent mis en avant (e.g. Rosenfeld et al, 2008) : une forte concentration en aérosols, et donc en gouttelettes, retarde la formation de pluie et permet à plus de gouttelettes d'être transportées à des hauteurs importantes, où elles seront congelées. Le dégagement de chaleur latente associé peut renforcer la convection et produire des systèmes plus intenses. Toutefois, les études montrent des résultats très divers, qu'elles soient réalisées à partir de simulations ou d'observations (Tao et al, 2012).

L'activation des aérosols en gouttelettes d'eau nuageuse est bien représentée par la théorie de Köhler (1936), et des travaux plus récents (théorie de kappa-Köhler, Petters et Kreidenweiss, 2007) permettent de prendre en compte simplement la solubilité de différents composés des noyaux de condensation. La bonne prévision du nombre de gouttelettes dans les nuages repose donc sur la capacité du modèle à bien estimer la distribution granulométrique des aérosols, leur affinité chimique avec la vapeur d'eau (kappa) et la sursaturation (qui dirige l'activation des noyaux de condensation). En revanche, la nucléation des noyaux de congélation pour former des petits cristaux de glace primaire est plus complexe. La capacité des aérosols à servir de noyau de congélation est liée à la configuration géométrique de leur surface, qui doit présenter des « sites actifs » compatibles avec la formation d'embryons de cristaux. Des paramétrisations empiriques sont disponibles (e.g. Phillips et al, 2013), élaborées à partir de mesures d'aérosols et de cristaux formés en chambre à nuage ou d'observations in-situ aéroportées.

Le schéma microphysique actuellement opérationnel dans AROME, ICE3 (Pinty et Jabouille, 1998), est un schéma dit « à un moment ». Il ne prévoit donc l'évolution que d'une variable pronostique pour chaque type d'hydrométéore, le contenu massique. Sa capacité à représenter les interactions aérosols-nuages est donc limitée. La concentration en nombre des gouttelettes est fixée à 100 cm⁻³ sur mer et 300 cm⁻³ sur terre, pour représenter la différence moyenne des concentrations en aérosols et en gouttelettes dans ces deux milieux. Des travaux menés par des partenaires du consortium HIRLAM/ALADIN permettent de faire varier la concentration en gouttelettes un peu plus finement, en s'appuyant sur les prévisions d'aérosols de CAMS, mais sans en faire un traitement pronostique complet.

Le schéma microphysique « à deux moments » LIMA (Vié et al, 2016), disponible dans Meso-NH et AROME, ajoute à ICE3 la prévision pronostique de la concentration en nombre des hydrométéores (gouttelettes, gouttes de pluie et petits cristaux) et des aérosols. Les interactions aérosols-nuages sont donc bien prises en compte. LIMA peut gérer la compétition entre plusieurs populations d'aérosols de caractéristiques différentes (type, taille, concentration), comme le mélange entre une population résiduelle d'aérosols organiques et les fortes concentrations d'aérosols anthropiques à proximité des villes).

La formation des gouttelettes repose sur les théories de Köhler et kappa-Köhler mentionnées ci-dessus. La sursaturation est diagnostiquée à partir de différents paramètres thermodynamiques (notamment la vitesse verticale et le taux de refroidissement). Une version plus précise laisse la sursaturation évoluer librement (il n'y a plus d'ajustement à saturation, mais une vitesse de condensation/évaporation explicite), mais sa validité et sa stabilité n'ont pas été testées pour des pas de temps longs comme celui d'AROME.

La formation des cristaux par nucléation des noyaux de congélation suit la paramétrisation de Phillips mentionnée ci-dessus, la plus précise à l'heure actuelle, qui distingue trois types d'aérosols (poussières/métaux, carbone suie et particules d'origine biologique). La nucléation par immersion (un noyau de congélation piégé dans une gouttelette favorise sa congélation) et la congélation homogène des noyaux de condensation à des températures très froides sont également représentés, en revanche, la congélation par contact entre un noyau glaçogène et une gouttelette d'eau surfondue ne l'est pas.

Le lessivage des aérosols par les précipitations est représenté suivant Berthet et al (2010). Ce schéma est précis, mais extrêmement coûteux.

La prise en compte pronostique des concentrations en nombre des hydrométéores dans les processus microphysiques (conversion des gouttelettes nuageuses en pluie, etc) et l'utilisation d'aérosols pronostiques pour déterminer le nombre de gouttelettes et de cristaux formés dans les nuages permettent donc à LIMA de représenter les interactions aérosols-nuages, et de bons résultats ont déjà été obtenus par exemple pour des études de systèmes convectifs (Taufour 2018) et de brouillard (Ducongé 2019).

L'objectif des travaux sur LIMA et de son évaluation dans Meso-NH et AROME est de rendre ce schéma opérationnel pour apporter cette nouvelle capacité au système de prévision. Toutefois, la représentation des aérosols dans LIMA est limitée aux aspects dynamiques (transport, turbulence) et microphysiques. Il n'y a pas de sources d'aérosols, et de nombreux processus ne sont pas pris en compte (vieillessement, sédimentation, dépôt sec notamment) qui limitent la capacité du modèle à représenter la granulométrie et l'affinité chimique des aérosols avec la vapeur d'eau et par conséquent leur capacité d'activation des aérosols en gouttelettes. Pour bénéficier d'une prise en compte complète du cycle de vie des aérosols et bien représenter leurs impacts, LIMA peut être couplé à des schémas d'aérosols (sources et processus). Dans le cadre d'une collaboration avec le LaCy, un test de couplage avec un module d'émission de sels marins a été réalisé dans Meso-NH pour un cas de cyclone tropical et a montré l'importance de prendre en compte les émissions en sels marins à la surface liés aux vents forts du cyclone (Hoarau 2018).

VI. Vers une approche coordonnée pour les aérosols dans les modèles du CNRM

Les précédents chapitres de ce document montrent la richesse des activités liées aux aérosols au CNRM. La prospective de l'UMR CNRM pour 2021-2025 propose ainsi de travailler à une approche coordonnée pour la représentation des aérosols et la chimie gazeuse dans les modèles du CNRM, au travers d'un projet transverse au laboratoire. L'objectif est de permettre aux différents modèles de s'enrichir mutuellement, par exemple en proposant plusieurs approches pour les aérosols en fonction de la thématique scientifique étudiée et, également, de permettre une interaction plus facile entre les différents compartiments du système Terre, tant en approche climat qu'en Prévision Numérique.

Tout d'abord, l'émission des aérosols, actuellement faite dans un module dédié SUMO pour MOCAGE, dans les modèles de climat directement et dans SURFEX pour certaines activités liées à Meso-NH et à AROME, sera envisagée dans le modèle SURFEX pour tous les modèles. Il s'agit de tirer parti des informations pertinentes déjà présentes dans SURFEX, au moins pour les émissions dépendant des types de sol et de végétation. Le couplage déjà existant entre SURFEX et les modèles météorologiques devrait également permettre d'utiliser des champs comme le vent (moyen et rafales) aussi réalistes que possible. Cela permettant d'améliorer les quantités émises, notamment. Des degrés de complexité variables pourront être intégrés selon les besoins.

Les différents schémas chimiques et d'aérosols utilisés dans MOCAGE ou ARPEGE-ALADIN-AROME seront rassemblés dans une bibliothèque commune. Différents compartiments sont déjà « externalisés », comme le schéma chimique de MOCAGE pour son utilisation dans IFS dans le cadre du projet Copernicus CAMS-42 et le schéma d'aérosols co-développé dans le cadre du projet CAMS-43. Il s'agira de travailler à des interfaces communes, permettant d'appeler les différentes paramétrisations à la fois depuis les modèles ARPEGE-ALADIN-AROME et le modèle MOCAGE. Entre autres, cela permettra d'évaluer les interactions avec le rayonnement et la microphysique de plusieurs de schémas d'aérosols plus ou moins complexes.

Quand ce projet transverse du CNRM sera défini et structuré, incluant les retours du COMSI 2020, les éléments stratégiques seront de nouveau présentés à un prochain comité.

VII. Bibliographie

Le style de paragraphe Bibliographie 1 appliqué ci-dessous permet de resserrer les lignes par rapport au corps de texte. Il est justifié, on a ajouté de l'espace en dessous, la première est alignée à la marge, les suivantes sont décalées, ce qui permet de mettre en évidence le nom de l'auteur.

- Allen, R. J., S. Turnock, P. Nabat, D. Neubauer, U. Lohmann, D. Olivie, N. Oshima, M. Michou, T. Wu, J. Zhang, T. Takemura, M. Schulz, K. Tsigaridis, S. Bauer, L. Emmons, L. Horowitz, V. Naik, T. van Noije, T. Bergman, J.-F. Lamarque, P. Zanis, I. Tegen, D. M. Westervelt, P. Le Sager, P. Good, S. Shim, F. O'Connor, D. Akritidis, A. K. Georgoulas, M. Deushi, L. Sentman, S. Fujimori, and W. J. Collins (2020) Climate and air quality impacts due to mitigation of non-methane near-term climate forcers, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 9641–9663, DOI:10.5194/acp-20-9641-2020.
- Amiri-Farahani, A., R. Allen, K.-F. Li and P. Nabat (2020) A La Nina-like climate response to south African biomass burning aerosol in CESM simulations, *Journal of Geophysical Research*, 125, e2019JD031832, DOI:10.1029/2019JD031832.
- Aouizerats, B., Thouron, O., Tulet, P., Mallet, M., Gomes, L., & Henzing, J. S. (2010). Development of an online radiative module for the computation of aerosol optical properties in 3-D atmospheric models: validation during the EUCAARI campaign.
- Berland, K., C. Rose, J. Pey, A. Culot, E. Freney, N. Kalivitis, N. Kouvakaris, J.C. Cerro, M. Mallet, K. Sartelet, M. Beckmann, T. Bourriane, G. Roberts, N. Marchand, N. Mihalopoulos and K. Sellegri, Spatial extend of new particle events over the Mediterranean basin from multiple ground-based and airborne measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 9567-9583, 2017.
- Boé, J., S. Somot, L. Corre and P. Nabat (2020) Large discrepancies in summer climate change over Europe as projected by global and regional climate models : causes and consequences, *Climate Dynamics*, 54, 2981–3002, DOI:10.1007/s00382-020-05153-1.
- Bozzo A., S. Remy, A. Benedetti, J.Flemming, P. Bechtold, M.J. Rodwell and J.-J. Morcrette Implementation of a CAMS-based aerosol climatology in the IFSA. ECMWF Tech Memo. 801., 2017.
- Bozzo, A., Benedetti, A., Flemming, J., Kipling, Z., & Remy, S. (2020). An aerosol climatology for global models based on the tropospheric aerosol scheme in the Integrated Forecasting System of ECMWF. *Geoscientific Model Development*, 13(3), 1007-1034.
- Callewaert, S., Vandenbussche, S., Kumpp, N., Kylling, A., Shang, X., Komppula, M., Goloub, P., and De Mazière, M.: The Mineral Aerosol Profiling from Infrared Radiances (MAPIR) algorithm: version 4.1 description and evaluation, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 3673–3698, <https://doi.org/10.5194/amt-12-3673-2019>, 2019.
- Carrer, D. et al., AERUS-GEO: a newly available satellite-derived aerosol optical depth product over Europe and Africa, *GRL*, 41, 7731-7738, 2014
- Ceamanos, X. et al., Retrieving the diurnal cycle of aerosol optical depth from current and future Meteosat geostationary satellites, AGU Fall Meeting, 2019
- Champeaux, J.L., Masson, V. and Chauvin, F. (2005), ECOCLIMAP: a global database of land surface parameters at 1 km resolution. *Met. Apps*, 12: 29-32. doi:[10.1017/S1350482705001519](https://doi.org/10.1017/S1350482705001519)
- Chou, M., K. Lee, S. Tsay, and Q. Fu. 1999: Parameterization for Cloud Longwave Scattering for Use in Atmospheric Models. *J. Climate*, 12, 159–169, <https://doi.org/10.1175/1520-0442-12.1.159>.
- Cussac, M., Marécal, V., Thouret, V., Josse, B., and Sauvage, B.: The impact of biomass burning on upper tropospheric carbon monoxide: a study using MOCAGE global model and IAGOS airborne data, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 9393–9417, <https://doi.org/10.5194/acp-20-9393-2020>, 2020.
- Descheemaeker, M., M. Plu, V. Marécal, M. Claeys, F. Olivier, Y. Aoun, Ph. Blanc, L. Wald, J. Guth, B. Sič, J. Vídot, E. Emili, A. Piacentini, and B. Josse. Monitoring aerosols over Europe: an assessment of the potential benefit of assimilating the VIS04 measurements from the future MTG/FCI geostationary imager. *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 1251-1275, <https://doi.org/10.5194/amt-12-1251-2019>, 2019.
- Di Mauro, B., Garzonio, R., Rossini, M., Filippa, G., Pogliotti, P., Galvagno, M., Morra di Cella, U., Migliavacca, M., Baccolo, G., Clemenza, M., Delmonte, B., Maggi, V., Dumont, M., Tuzet, F., Lafaysse, M., Morin, S., Cremone, E., and Colombo, R. : Saharan dust events in the European Alps : role on snowmelt and geochemical characterization, *The Cryosphere*, <https://doi.org/10.5194/tc-2018-241>, 2019.
- Drugé, T., Nabat, P., Mallet, M., and Somot, S. (2019) Model simulation of ammonium and nitrate aerosols distribution in the Euro-Mediterranean region and their radiative and climatic effects over 1979–2016, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 3707-3731, DOI:10.5194/acp-19-3707-2019.
- Dubovik, O. et al., Statistically optimized inversion algorithm for enhanced retrieval of aerosol properties from spectral multi-angle polarimetric satellite observations, *AMT*, 4, 975-1018, 2011
- Dumont, M., Tuzet, F., Gascoin, S., Picard, G., Kutuzov, S., Lafaysse, M., et al. (2020). Accelerated snow melt in the Russian Caucasus mountains after the Saharan dust outbreak in March 2018. *Journal of Geophysical Research : Earth Surface*, 125, e2020JF005641. <https://doi.org/10.1029/2020JF005641>
- El Amraoui, L., Sič, B., Piacentini, A., Marécal, V., Frebourg, N., and Attié, J.-L.: Aerosol data assimilation in the MOCAGE chemical transport model during the TRAQA/ChArMEx campaign: lidar observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 13, 4645–4667, <https://doi.org/10.5194/amt-13-4645-2020>, 2020.
- Gong, S.: A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub-and super-micron particles, *Global Biogeochem. Cycles*, 17, 1097, doi:10.1029/2003GB002079, 2003.

- Guenther, A. B., Jiang, X., Heald, C. L., Sakulyanontvittaya, T., Duhl, T., Emmons, L. K., and Wang, X.: The Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature version 2.1 (MEGAN2.1): an extended and updated framework for modeling biogenic emissions, *Geosci. Model Dev.*, 5, 1471–1492, doi:10.5194/gmd-5-1471-2012, 2012.
- Guth, J., Josse, B., Maréchal, V., Joly, M., and Hamer, P.: First implementation of secondary inorganic aerosols in the MOCAGE version R2.15.0 chemistry transport model, *Geosci. Model Dev.*, 9, 137–160, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-137-2016>, 2016.
- Gutierrez, C., Somot, S., Nabat, P., Mallet, M., Gaertner, M. and Perpignan, O. (2018), Impact of aerosols on the spatiotemporal variability of photovoltaic energy production in the Euro-Mediterranean area, *Solar Energy*, 174, 1142–1152, DOI:10.1016/j.solener.2018.09.085.
- Gutierrez, C., S. Somot, P. Nabat, M. Mallet, L. Corre, E. Van Meijgaard, O. Perpignan and M. A. Gaertner (2020) Future evolution of surface solar radiation and photovoltaic potential in Europe : investigating the role of aerosols, *Environ. Res. Lett.*, 15, 034035, DOI:10.1088/1748-9326/ab6666.
- Hess, M., P. Koepke, and I. Schult, 1998: Optical Properties of Aerosols and Clouds: The Software Package OPAC. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 79, 831–844, [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1998\)079<0831:OPOAAC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1998)079<0831:OPOAAC>2.0.CO;2).
- Hoarau, T., Barthe, C., Tulet, P., Claeys, M., Pinty, J.-P., Bousquet, O., et al. (2018). Impact of the generation and activation of sea salt aerosols on the evolution of tropical cyclone Dumile. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 123, 8813–8831. <https://doi.org/10.1029/2017JD028125>
- Hocking, J.: A visible/infrared multiple-scattering model for RTTOV, NWPSAF report, available at: http://nwpsaf.eu/publications/tech_reports/nwpsaf-mo-tr-031.pdf, 2015.
- Jaeglé, L., Quinn, P. K., Bates, T. S., Alexander, B., and Lin, J.-T.: Global distribution of sea salt aerosols: new constraints from in situ and remote sensing observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 3137–3157, doi:10.5194/acp-11-3137-2011, 2011.
- Kok, J. F., N. M. Mahowald, G. Fratini, J. A. Gillies, M. Ishizuka, J. F. Leys, M. Mikami, M.-S. Park, S.-U. Park, R. S. Van Pelt, and T. M. Zobeck. An improved dust emission model – part 1 : Model description and comparison against measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(23) :13023–13041, 2014. doi : 10.5194/acp-14-13023-2014. URL <https://www.atmos-chem-phys.net/14/13023/2014/>.
- Levy, R. C. et al., The Collection 6 MODIS aerosol products over land and ocean, *AMT*, 6, 2989–3034, 2013
- Mallet, M., Dubovik, O., Nabat, P., Dulac, F., Kahn, R., Sciare, J., Paronis, D., and Léon, J. F. (2013), Absorption properties of Mediterranean aerosols obtained from multi-year ground-based remote sensing observations *Atm. Chem. Phys.*, 13, 9195–9210, DOI:10.5194/acp-13-9195-2013
- Mallet, M., Dulac, F., Nabat, P., Formenti, P., Sciare, J., Roberts, G., Denjean, C., Pelon, J., Tanré, D., Parol, F., Ancellet, G., Auriol, F., Blarel, L., Bourriane, T., Brogniez, G., Chazette, P., Chevallier, S., Claeys, M., Colomb, A., D’Anna, B., Derimian, Y., Desboeufs, K., Doussin, J.-F., Durand, P., Féron, A., Ferré, H., Fleury, L., Freney, E., Goloub, P., Grand, N., Hamonou, É., Jankowiak, I., Jeannot, M., Lambert, D., Léon, J.-F., Mailler, S., Menut, L., Momboisse, G., Nicolas, J., Podvin, T., Pont, V., Rea, G., Renard, J.-B., Roblou, L., Schwarzenboeck, A., Sellegri, K., Sicard, M., Solmon, F., Somot, S., Torres, B., Totems, J., Triquet, S., Verdier, N., Verwaerde, C., Vignelles, D. (2015), Interactions aérosols-rayonnement-climat en région méditerranéenne : Impact de l’effet radiatif direct sur le cycle de l’eau, *La Météorologie*, 91, novembre 2015, DOI:10.4267/2042/57860.
- Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F., Denjean, C., Brogniez, G., di Sarra, A., Alados-Arboledas, L., Arndt, J., Auriol, F., Blarel, L., Bourriane, T., Chazette, P., Chevallier, S., Claeys, M., D’Anna, B., Derimian, Y., Desboeufs, K., Di Iorio, T., Doussin, J.-F., Durand, P., Féron, A., Freney, E., Gaimoz, C., Goloub, P., Gómez-Amo, J. L., Granados-Muñoz, M. J., Grand, N., Hamonou, E., Jankowiak, I., Jeannot, M., Léon, J.-F., Maillé, M., Mailler, S., Meloni, D., Menut, L., Momboisse, G., Nicolas, J., Podvin, T., Pont, V., Rea, G., Renard, J.-B., Roblou, L., Schepanski, K., Schwarzenboeck, A., Sellegri, K., Sicard, M., Solmon, F., Somot, S., Torres, B., Totems, J., Triquet, S., Verdier, N., Verwaerde, C., Waquet, F., Wenger, J., and Zapf, P. : (2016), Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/ Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRIMED) summer 2013 campaign, *Atm. Chem. Phys.*, 16, 455–504, DOI:10.5194/acp-16-455-2016.
- Mallet, M., Nabat, P., Zuidema, P., Redemann, J., Sayer, A. M., Stengel, M., Schmidt, S., Cochrane, S., Burton, S., Ferrare, R., Meyer, K., Saide, P., Jethva, H., Torres, O., Wood, R., Saint Martin, D., Roehrig, R., Hsu, C., and Formenti, P. (2019) Simulation of the transport, vertical distribution, optical properties and radiative impact of smoke aerosols with the ALADIN regional climate model during the ORACLES-2016 and LASIC experiments, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 4963–4990, DOI:10.5194/acp-19-4963-2019.
- Mallet, M., Solmon, F., Nabat, P., Elguindi, N., Waquet, F., Bouniol, D., Sayer, A. M., Meyer, K., Roehrig, R., Michou, M., Zuidema, P., Flamant, C., Redemann, J., and Formenti, P., (2020) Direct and semi-direct radiative forcing of biomass burning aerosols over the Southeast Atlantic (SEA) and its sensitivity to absorbing properties : a regional climate modeling study, *Atmos. Chem. Phys.*, accepted, DOI:10.5194/acp-2020-317.
- Marticorena, B., Bergametti, G., Aumont, B., Calot, Y., N’doumé, C., and Legrand, M.: Modeling the atmospheric dust cycle: 2. Simulation of Saharan dust sources, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 102, 4387–4404, doi:10.1029/96JD02964, 1997.
- C.J. Merchant, O. Embury, P. Le Borgne, B. Bellec : Saharan dust in nighttime thermal imagery: Detection and reduction of related biases in retrieved sea surface temperature, *Remote Sensing of Environment*, Volume 104, Issue 1, 2006, <https://doi.org/10.1016/j.rse.2006.03.007>.
- Michou, M., Nabat, P., and Saint-Martin, D. (2015), Development and basic evaluation of a prognostic aerosol scheme (v1) in the CNRM Climate Model CNRM-CM6, *Geosci. Model Dev.*, 8, 501–531, DOI:10.5194/gmd-8-501-2015.

- Michou, M., P. Nabat, D. Saint-Martin, J. Bock, B. Decharme, M. Mallet, R. Roehrig, R. Séférian, S. Sénési and A. Voldoire (2020) Present-day and historical aerosol and ozone characteristics in CNRM CMIP6 simulations, *JAMES*, 12, e2019MS001816, DOI:10.1029/2019MS001816.
- Nabat, P. (2012), Modélisation des aérosols sur la région méditerranéenne *La Météorologie*, 8ème série, 76, février 2012, DOI:10.4267/2042/47243
- Nabat, P., Solmon F., Mallet M., Kok J.F., Somot S (2012), Dust emission size distribution impact on aerosol budget and radiative forcing over the Mediterranean region : a regional climate model approach *Atm. Chem. Phys.*, 12, 10545-10567, DOI:10.5194/acp-12-10545-2012
- Nabat, P., Somot S., Mallet M., Chiapello I., Morcrette J.-J., Solmon F., Szopa S., Dulac F., Collins W., Ghan S., Horowitz L.W., Lamarque J.F., Lee Y. H., Naik V., Nagashima T., Shindell, D., and Skeie R. (2013), A 4-D climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the Mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products *Atm. Meas. Tech.*, 6, 1287-1314, DOI:10.5194/amt-6-1287-2013
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Sanchez-Lorenzo, A. and Wild, M. (2014), Contribution of anthropogenic sulfate aerosols to the changing Euro-Mediterranean climate since 1980, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 5605-5611, DOI:10.1002/2014GL060798.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Sevault, F., Chiacchio, M. and Wild, M. (2015a), Direct and semi-direct aerosol radiative effect on the Mediterranean climate variability using a coupled Regional Climate System Model *Climate dynamics*, 44, 1127-1155, DOI:10.1007/s00382-014-2205-6
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech F., Meloni, D., Di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., Sicard, M., Léon, J.-F. and Bouin, M.-N. (2015b), Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol-atmosphere-ocean model over the Mediterranean region, *Atm. Chem. Phys.*, 15, 3303-3326, DOI:10.5194/acp-15-3303-2015.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M. (2016), Les aérosols, composants essentiels du système climatique régional : illustrations pour le climat méditerranéen (prix Prud'homme 2015) *La Météorologie*, 94, août 2016, 19-26, DOI:10.4267/2042/60701
- Nabat, P., S. Somot, C. Cassou, M. Mallet, M. Michou, D. Bouniol, B. Decharme, T. Drugé, R. Roehrig, and D. Saint-Martin (2020) Modulation of radiative aerosols effects by atmospheric circulation over the Euro-Mediterranean region, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 8315–8349, DOI:10.5194/acp-20-8315-2020.
- Rémy, S., Kipling, Z., Flemming, J., Boucher, O., Nabat, P., Michou, M., Bozzo, A., Ades, M., Huijnen, V., Benedetti, A., Engelen, R., Peuch, V.-H., and Morcrette, J.-J (2019). Description and evaluation of the tropospheric aerosol scheme in the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) Integrated Forecasting System (IFS-AER, cycle 45R1), *Geosci. Model Dev.*, 12, 4627–4659, DOI:10.5194/gmd-12-4627-2019.
- Roehrig, R., I. Beau, D. Saint-Martin, A. Alias, B. Decharme, J.-F. Guérémy, A. Voldoire, A.-L. Ahmat Younous, E. Bazile, S. Belamari, S. Blein, D. Bouniol, Y. Bouteloup, J. Cattiaux, F. Chauvin, M. Chevallier, J. Colin, H. Douville, P. Marquet, M. Michou, P. Nabat, T. Oudar, P. Peyrillé, J.-M. Piriou, D. Salas y Melia, R. Séférian and S. Sénési (2020) The CNRM global atmosphere model ARPEGE-Climat 6.3 : description and evaluation, *JAMES*, 12, in press, DOI:10.1029/2020MS002075.
- Sartelet, K.; Couvidat, F.; Wang, Z.; Flageul, C.; Kim, Y. SSH-Aerosol v1.1: A Modular Box Model to Simulate the Evolution of Primary and Secondary Aerosols. *Atmosphere* **2020**, *11*, 525.
- Saunders, R.; Hocking, J.; Rundle, D.; Rayer, P.; Matricardi, M.; Geer, A.; Lupu, C.; Brunel, P.; Vidot, J. RTTOV-11 Science and Validation Report. NWP-SAF Report. 2013. Available online: https://www.nwpsaf.eu/site/download/documentation/rtm/docs_rtov11/rtov11_svr.pdf
- Saunders, R., Hocking, J., Turner, E., Rayer, P., Rundle, D., Brunel, P., Vidot, J., Roquet, P., Matricardi, M., Geer, A., Bormann, N., and Lupu, C.: An update on the RTTOV fast radiative transfer model (currently at version 12), *Geosci. Model Dev.*, 11, 2717–2737, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-2717-2018>, 2018.
- Séférian, R., Nabat, P., Michou, M., Saint-Martin, D., Voldoire, A., Colin, J., Decharme, B., Delire, C., Berthet, S., Chevallier, M., Sénési, S., Franchisteguy, L., Vial, J., Mallet, M., Joetzjer, E., Geoffroy, O., Guérémy, J.-F., Moine, M.-P., Msadek, R., Ribes, A., Rocher, M., Roehrig, R., Salas-y-Méla, D., Sanchez, E., Terray, L., Valcke, S., Waldman, R., Aumont, O., Bopp, L., Deshayes, J., Éthé, C. and Madec, G. (2019) Evaluation of CNRM Earth-System model CNRM-ESM2-1 : role of Earth system processes in present-day and future climate, *JAMES*, 11, 4182-4227, DOI:10.1029/2019MS001791.
- Skiles, S. M., M. Flanner, J. M. Cook, M. Dumont and T. H. Painter, 2018 : Radiative forcing by light-absorbing particles in snow. *Nature Climate Change*, Doi : <https://doi.org/10.1038/s41558-018-0296-5>.
- Smith, C. J., R. J. Kramer, G. Myhre, K. Alterskjaer, W. Collins, A. Sima, O. Boucher, J.-L. Dufresne, P. Nabat, M. Michou, S. Yukimoto, J. Cole, D. Paynter, H. Shiogama, F. M. O'Connor, E. Robertson, A. Wiltshire, T. Andrews, C. Hannay, R. Miller, L. Nazarenko, A. Kirkevåg, D. Olivie, S. Fiedler, R. Pincus, and P. M. Forster (2020) Effective radiative forcing and adjustments in CMIP6 models, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 9591–9618, DOI:10.5194/acp-20-9591-2020.
- Sič, B., El Amraoui, L., Marécal, V., Josse, B., Arteta, J., Guth, J., Joly, M., and Hamer, P. D.: Modelling of primary aerosols in the chemical transport model MOCAGE: development and evaluation of aerosol physical parameterizations, *Geosci. Model Dev.*, 8, 381–408, <https://doi.org/10.5194/gmd-8-381-2015>, 2015.
- Spracklen, D. V., Jimenez, J. L., Carslaw, K. S., Worsnop, D. R., Evans, M. J., Mann, G. W., Zhang, Q., Canagaratna, M. R., Allan, J., Coe, H., McFiggans, G., Rap, A., and Forster, P.: Aerosol mass spectrometer constraint on the global secondary organic aerosol budget, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 12109–12136, <https://doi.org/10.5194/acp-11-12109-2011>, 2011.

-
- Tegen, I., Hollrig, P., Chin, M., Fung, I., Jacob, D., & Penner, J. (1997). Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness: Estimates from model results. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102(D20), 23895-23915.
 - Tuzet, F., Dumont, M., Picard, G., Lamare, M., Voisin, D., Nabat, P., Lafaysse, M., Larue, F., Revuelto, J., and Arnaud, L. : Quantification of the radiative impact of light-absorbing particles during two contrasted snow seasons at Col du Lautaret (2058 m a.s.l., French Alps), *The Cryosphere*, <https://doi.org/10.5194/tc-2019-287>, in press, 2020.
 - Tuzet, F., Dumont, M., Arnaud, L., Voisin, D., Lamare, M., Larue, F., Revuelto, J., and Picard, G. : Influence of light-absorbing particles on snow spectral irradiance profiles, *The Cryosphere*, 13, 2169–2187, <https://doi.org/10.5194/tc-13-2169-2019>, 2019.
 - Tuzet, F., Dumont, M., Lafaysse, M., Picard, G., Arnaud, L., Voisin, D., Lejeune, Y., Charrois, L., Nabat, P., and Samuel, M. : A multi-layer physically-based snowpack model simulating direct and indirect radiative impacts of light-absorbing impurities in snow, *The Cryosphere*, 11, 2633-2653, <https://doi.org/10.5194/tc-11-2633-2017>, 2017.
 - Voldoire, A., D. Saint-Martin, S. Sénési, B. Decharme, A. Alias, M. Chevallier, J. Colin, J-F. Guérémy, M. Michou, M.-P. Moine, P. Nabat, R. Roehrig, D. Salas y Mélia, R. Sférian, S. Valcke, I. Beau, S. Belamari, S. Berthet, C. Cassou, J. Cattiaux, J. Deshayes, H. Douville, L. Franchisteguy, C. Ethé, O. Geoffroy, C. Lévy, G. Madec, Y. Meurdesoif, R. Msadek, A. Ribes, E. Sanchez-Gomez, L. Terray and R. Waldman (2019) Evaluation of CMIP6 DECK experiments with CNRM-CM6-1, *JAMES*, 11, 2177-2213, DOI:10.1029/2019MS001683.
 - Watson, L., Michou, M., Nabat, P. and Saint-Martin, D. (2018), Assessment of climate sensitivity to the representation of aerosols in the CNRM coupled ocean-atmosphere model, *Climate Dynamics*, 51, 2877-2895, DOI:10.1007/s00382-017-4054-6.
 - Winker, D. M. et al., The CALIPSO mission: A global 3D view of aerosols and clouds, *BAMS*, 91, 1211-1229, 2010
 - Zanis, P., D. Akritidis, A. K. Georgoulas, R. J. Allen, S. E. Bauer, O. Boucher, J. Cole, B. Johnson, M. Deushi, M. Michou, J. Mulcahy, P. Nabat, D. Olivie, N. Oshima, A. Sima, M. Schulz and T. Takemura (2020) Fast responses on pre-industrial climate from present-day aerosols in a CMIP6 multi-model study, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 8381–8404, DOI:10.5194/acp-20-8381-2020.