

Université
de Toulouse

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par l'Université Toulouse III - Paul Sabatier
Discipline : Physique de l'Atmosphère

Présentée et soutenue par Jérôme RANGOGNIO
Le 14/12/2009

IMPACT DES AEROSOLS SUR LE CYCLE DE VIE DU BROUILLARD

De l'observation à la modélisation

JURY

M. Serge CHAUZY *Président*
M. Paolo LAJ *Rapporteur*
M. Luc MUSSON-GENON *Rapporteur*
M. Wolfram WOBROCK *Rapporteur*
M. Robert TARDIF *Examinateur*
M. Laurent GOMES *Examinateur*
M. Thierry BERGOT *Directeur de thèse*
M. Pierre TULET *Co-directeur de thèse*

Ecole doctorale : Sciences de l'univers, de l'environnement et de l'espace (SDU2E)

Unité de recherche : Météo-France/GAME/CNRM/GMME/TURBAU

Directeur de Thèse : Thierry Bergot



Université Paul Sabatier - TOULOUSE III

U.F.R. Physique, Chimie et Applications
Sciences de la Planète et de l'Univers

THESE

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Toulouse

délivré par l'Université Toulouse III - Paul Sabatier

Discipline :

Physique de l'Atmosphère

Présentée par

Jérôme RANGOGNIO

IMPACT DES AEROSOLS SUR LE CYCLE DE VIE DU BROUILLARD

De l'observation à la modélisation

soutenue publiquement le 14/12/2009 devant la commission d'examen :

M. Serge CHAUZY	Président
M. Paolo LAJ	Rapporteur
M. Luc MUSSON-GENON	Rapporteur
M. Wolfram WOBROCK	Rapporteur
M. Robert TARDIF	Examinateur
M. Laurent GOMES	Examinateur
M. Thierry BERGOT	Directeur de thèse
M. Pierre TULET	Co-directeur de thèse

Centre National de Recherches Météorologiques 42 avenue Coriolis - 31057 Toulouse
cedex, France

À la mémoire de mon père

« Le temps et mon humeur ont peu de liaison ; j'ai mes brouillards et mon beau temps au-dedans de moi. »

Blaise Pascal

« C'est la moindre des choses d'essayer de montrer à quelqu'un de perdu dans le brouillard la direction de la lumière ! »

Vincent Ravalec – Extrait du recueil de nouvelles Vol de sucettes

UN GRAND MERCI ...

J'exprime mes profonds remerciements à mon directeur de thèse Thierry Bergot pour son encadrement irréprochable, son aide, son écoute, sa patience et son encouragement. Son œil critique m'a été très précieux pour structurer le travail. J'ai pu partager des moments extrêmement appréciables.

Ensuite, je tiens à remercier Pierre Tulet et Odile Thouron qui m'ont fait connaître le monde de la modélisation. Ils m'ont été d'un énorme soutien à la fois dans le travail mais aussi dans les moments difficiles.

Il n'y a pas de bon travail sans une très bonne ambiance. Je tiens à remercier tout d'abord tous ceux qui ont partagé avec moi ce fameux bureau 216 à commencer par le Père Pergaud avec qui j'ai passé des moments extraordinaires (hé ju, sans déconner, c'était bon ces années...), Emilie la vendéenne (il va falloir que j'aille aux sables !!), Pierro (fais attention aux engins de chantier et continue la boîte à blague !!), Rachel, Julia, Louis, Tomislav...oui oui le bureau est grand !!

Ensuite, merci à tous mes friends : mon Schlomo (comme c'était bon ses apéros et les crèmes brûlées), le Pangaud (mon nasbrock parpayou préféré !!), Dodo (african children !!), Seb (le marseillais fan de chichourle), Remi (j'espère qu'elle va démarrer cette 205 !!), Carole (allez l'USAP... non tom ?), Aurélie, Cécile, Olivier (tu m'entends ?), Camille (courage pour la suite), Alex (vive le nudging !),...

Pour continuer, je remercie le Laboratoire du CNRM de m'avoir accueilli pour la réalisation de la thèse (merci Joël pour ton soutien et tes encouragements). Un grand merci également à l'ensemble de l'équipe GMME dans laquelle j'ai rencontré des gens super lors des pauses café (la vaisselle des tasses va me manquer !) sans oublier également l'équipe informatique CTI. Je tiens également à apporter ma gratitude à l'équipe TurBAU.

Pour terminer, je remercie ma famille (merci papa) et ma Marselia qui m'ont encouragé dans les moments compliqués notamment en fin de thèse.

Résumé

Le rôle des particules atmosphériques dans la formation des gouttelettes nuageuses a fait l'objet de nombreux travaux, du point de vue expérimental comme numérique. Ce travail s'intéresse au brouillard radiatif. La particularité de ce type de nuage est qu'il se forme dans les basses couches de l'atmosphère, directement en contact avec la surface, là où les concentrations en particules d'aérosols sont les plus élevées. Pour comprendre l'impact de ces particules d'aérosols sur le cycle de vie du brouillard, deux campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG ont été réalisées.

Après un état de l'art général sur les caractéristiques des aérosols atmosphériques, plusieurs cas de brouillards radiatifs sont présentés, en insistant plus particulièrement sur les propriétés des aérosols et des gouttelettes nuageuses mesurées au cours de ces deux campagnes de mesures. Il apparaît en général très difficile de mettre en avant des interprétations physiques basées uniquement sur les observations. Pour répondre à cette problématique, des simulations numériques 1-D ont été réalisées en utilisant le modèle météorologique Meso-NH, incluant le module d'aérosol ORILAM couplé à un schéma microphysique nuageux à deux-moments. Le schéma d'activation des aérosols est basé sur les travaux de Abdul-Razzak et Ghan (2004). Ce schéma permet de prendre en compte la nature chimique et la granulométrie des particules d'aérosols observées. Dans cette approche, la nécessité d'une démarche conjointe entre l'observation et la modélisation numérique est clairement apparue.

Des études "off-line" de sensibilité de l'activation des CCN (Cloud Condensation Nuclei) à la concentration en nombre, la taille et la composition chimique des aérosols ont été réalisées en utilisant seulement le schéma d'activation de Abdul-Razzak et Ghan (2004). Les interactions avec les autres processus physiques n'ont pas été pris en compte pour ces études "off-line". Différents régimes de l'activation des CCN et une valeur critique de la concentration en nombre d'aérosols ont été mis en évidence. Ce nombre critique d'aérosols correspond au maximum de gouttelettes formées pour un taux de refroidissement et une composition chimique de l'aérosol donnés.

Des simulations 1-D ont reproduit avec succès l'évolution temporelle de la couche de brouillard observée lors d'une période d'observation intensive de la campagne de mesures ParisFOG. Ces simulations ont confirmé que la concentration en particules d'aérosols est un paramètre clef pour une prévision précise des propriétés microphysiques et du développement vertical du brouillard. Les phases de formation et de développement du brouillard sont déterminées par la concentration en nombre de CCN et par les propriétés chimiques de l'aérosol, ce qui illustre l'importance de l'interaction entre les processus microphysiques et radiatifs.

Abstract

The role of the atmospheric particles in cloud droplets formation was the object of numerous works, the point of view experimental as numerical. This work is interested in the radiation fog. One of the particularities of radiation fog is its development within the surface boundary layer, directly in contact with the ground, where aerosols concentrations are the highest. To understand the influence of these particles on the fog life cycle, two fields experiments ParisFOG and ToulouseFOG were realized.

After a state of general art on the characteristics of the atmospheric particles, several cases of radiation fogs are presented, by insisting more particularly on the properties of aerosols and cloud droplets measured during these two fields experiments. It seems generally very difficult to feature the physical explications based only on the observations. To achieve this objectif, a series of 1D simulations were preformed with the Meso-NH numerical mesoscale model, in which the ORILAM aerosol scheme was coupled with the two-moment microphysical scheme. The activation scheme used was taken from the work of Abdul-Razzak et Ghan (2004). This parameterization allows to take into account the observed aerosol chemical composition and size distribution. In this approach, the necessity of a joint initiative between the observation and the modelling is clearly appeared.

"Off-line" sensitivity analysis of CCN (Cloud Condensation Nuclei) were performed on number, median diameter and chemical compounds of aerosols using only the activation scheme of Abdul-Razzak et Ghan (2004). During this "off-line" study, the interactions with the other physical processes were not taken into account. Different regimes of CCN activation and a critical value of aerosol number concentration were found. This critical aerosol number corresponds to the maximum of activated cloud droplets for a given cooling rate and given aerosol chemical properties.

1D simulations successfully reproduced the observed temporal evolution of the fog layer during an intensive observation period of the field experiment ParisFOG. These simulations confirmed that the aerosol particle number concentration is a key parameter for the accurate prediction of the microphysical properties of a fog layer and also influences the vertical development of fog. The important of the interaction between microphysical and radiative processes is illustrated, showing how the life cycle of fog is determined by the CCN number concentration and chemical properties.

Table des matières

Résumé	i
Abstract	iii
1 Introduction	1
1.1 Avant-propos	1
1.2 Les différents types de brouillard	2
1.3 Le brouillard radiatif	3
1.4 Interactions entre le brouillard radiatif et les aérosols	7
2 Activation des particules d'aérosols en gouttelettes nuageuses : Etat de l'art	9
2.1 Aérosols atmosphériques	9
2.1.1 Caractéristiques physiques	10
2.1.2 Composition chimique	12
2.1.3 Paramètres descriptifs	15
2.2 Activation des Noyaux de Condensation Nuageux	18
2.2.1 Noyaux de Condensation Nuageux	18
2.2.2 Théorie de Köhler	18
2.3 Modélisation de l'activation des CCN	22
2.4 Résumé	25
3 Brouillard : Moyens d'observation et Mesures microphysiques	27
3.1 Introduction	28
3.2 La campagne de mesures ParisFOG	30
3.2.1 Le site d'observation du SIRTA	30
3.2.2 L'instrumentation de la campagne ParisFOG	31
3.2.3 Les données	38
3.3 La campagne de mesures ToulouseFOG	41
3.3.1 Le site d'observation de Météo France	41
3.3.2 L'instrumentation de la campagne ToulouseFOG	41

3.3.3	Les données	45
3.4	Description microphysique de la campagne ParisFOG	48
3.4.1	Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de particules d'aérosols de Janvier à Mars 2007	48
3.4.2	Variabilité journalière de la concentration en nombre de particules d'aérosols	52
3.4.3	Variabilité de la composition chimique des aérosols	53
3.4.4	Evolution de la concentration en nombre de grosses particules de Janvier à Mars 2007	55
3.4.5	Evolution du spectre granulométrique des grosses particules	60
3.5	Description microphysique de la campagne ToulouseFOG	64
3.5.1	Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de particules d'aérosols d'Octobre 2007 à Mars 2008	64
3.5.2	Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de grosses particules d'Octobre 2007 à Mars 2008	72
3.5.3	Evolution du spectre granulométrique des grosses particules	79
3.5.4	Relation entre particules d'aérosols, grosses particules et visibilité	86
3.6	Comportement de l'aérosol sur trois cas d'étude	94
3.6.1	Caractéristiques de l'aérosol avant les épisodes de brouillard	94
3.6.2	Caractéristiques de l'aérosol pendant et après les épisodes de brouillard	100
3.7	Apport des mesures obtenues par le Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100) et discrimination entre aérosols humides et gouttelettes nuageuses	105
3.7.1	Apport des mesures obtenues par le Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100)	105
3.7.2	Discrimination entre aérosols humides et gouttelettes nuageuses	107
3.8	Résumé	113
4	Configuration du modèle Méso-NH couplé au module d'aérosol ORILAM	115
4.1	Le modèle Méso-NH	115
4.1.1	Schéma de turbulence	116
4.1.2	Schéma microphysique	118
4.1.3	Le code de transfert radiatif	122
4.2	Le module d'aérosol ORILAM	125
4.2.1	Description générale	125
4.2.2	La dynamique des aérosols	126
4.3	La paramétrisation d'activation d'Abdul-Razzak	130
4.3.1	Description générale	130

4.3.2 Validation de la paramétrisation pour le couplage Méso-NH / ORILAM	132
4.4 Résumé	138
5 Impact de l'aérosol sur la formation et le développement du brouillard radiatif	139
5.1 Introduction	140
5.2 Article : Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog	142
5.3 Complément : Validation microphysique	185
5.4 Que se passe-t-il lors de la phase de formation ?	188
5.4.1 Retour sur la relation entre le nombre d'aérosols et le nombre de gouttelettes	188
5.4.2 Pendant les 45 premières minutes...	190
5.4.3 Les 45 minutes suivantes...	194
5.4.4 Encore plus loin...	197
5.5 Conclusions	200
6 Conclusions et Perspectives	203
6.1 Conclusions générales	203
6.2 Perspectives	207
Acronymes	211
Notations	213
Bibliographie	223

Liste des figures

1.1	<i>Algorithme permettant la classification des différents types de brouillard, tiré de l'étude de Tardif et Rasmussen (2007). RAD = brouillard radiatif, ADV = brouillard advectif, PCP = brouillard précipitant, EVP = brouillard d'évaporation et CBL = affaissement de stratus.</i>	4
2.1	<i>Exemple de distributions lognormales mettant en évidence les modes d'aérosols (en fonction du volume).</i>	12
2.2	<i>Variation de la pression de vapeur d'eau au-dessus d'une solution aqueuse pour des particules de NaCl (solide) et de $(NH_4)_2SO_4$ (pointillé) en fonction du rayon humide de la particule, figure tirée de Pruppacher et Klett (1997).</i>	19
2.3	<i>Variation de la pression de vapeur au-dessus d'une solution aqueuse en fonction du rayon humide de la particule, pour des particules d'aérosols mélangées de rayon 1 μm contenant une fraction volumique ϵ_v de NaCl et de $(NH_4)_2SO_4$ et une substance insoluble à l'eau, figure tirée de Pruppacher et Klett (1997).</i>	20
3.1	<i>(a) Localisation du dispositif expérimental de la campagne de mesures ParisFOG, (b) Réseau d'observation de Météo-France en région parisienne, (c) Zoom sur le site du Sirta.</i>	31
3.2	<i>Instruments fonctionnant en routine lors de la campagne de mesures ParisFOG. A gauche, les instruments de télédétection active avec de haut en bas : Radar Rasta, Sodar, télémètre, radar UHF et lidar. Au milieu, les deux mâts de 30 m (Z1 et Z3). A droite, les mesures en surface avec de haut en bas : les mesures radiatives en surface ainsi qu'un pluviomètre, la station de flux Bowen, les mesures de température et d'humidité à 1 et 2 m du sol et la fosse de mesures de température et de contenu en eau dans le sol.</i>	33
3.3	<i>Instruments microphysiques lors de la campagne de mesures ParisFOG. A haut à gauche, l'armoire contenant le SMPS et l'OPC (Pallas welas 2000). A haut à droite, les têtes de prélèvement sur filtres. En bas à gauche, des exemples de filtres pour le carbone organique et le black carbon. En bas à droite, les têtes de prélèvement des granulomètres OPC (Pallas welas 2000).</i>	36

3.4	<i>Instruments déployés lors des périodes d'observations intensives de la campagne de mesures ParisFOG. A gauche, le ballon captif au-dessus du mât de 30m (Z1). Au milieu : une vue du ballon captif dans le brouillard et un lâcher de radiosondage au petit matin après une nuit d'observation intensive. A droite : installation de filtres sur les têtes de prélèvement, le ballon captif avant son déploiement et des exemples de filtres de prélèvement.</i>	37
3.5	<i>Nombre d'heures de brouillard et de brume documentées pendant la campagne ParisFOG. Les étoiles situées en haut du graphique correspondent aux périodes d'observations intensives.</i>	40
3.6	<i>(a) Localisation du dispositif expérimental de la campagne de mesures ToulouseFOG, (b) Zoom sur le site de Météo-France à Toulouse.</i>	41
3.7	<i>Instruments fonctionnant en routine lors de la campagne de mesures ToulouseFOG. A gauche, les instruments de télédétection active avec de haut en bas : Radar UHF, télémètres et sodar. Au milieu, le mât de 10 m. A droite, les mesures en surface avec de haut en bas : la fosse de mesures de température et de contenu en eau dans le sol et les mesures radiatifs.</i>	43
3.8	<i>Instruments microphysiques lors de la campagne de mesures ToulouseFOG. En haut à gauche, l'abri contenant l'ensemble des instruments microphysique. En haut à droite, les têtes de prélèvements situés sur le toit de l'abri. En bas à gauche, intérieur de l'abri. En bas à droite, zoom sur l'instrument FSSP.</i>	44
3.9	<i>Répartition mensuelle du nombre d'heures de brouillard et de brume documentées pendant la campagne de mesures ToulouseFOG.</i>	45
3.10	<i>Nombre d'heures de brouillard et de brume documentées pendant la campagne de mesures ToulouseFOG.</i>	45
3.11	<i>ParisFOG, mois de Janvier 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale, le trait rouge matérialise la visibilité horizontale de 5000 mètres en-dessous de laquelle on est en situation de brume. Le trait bleu représente la limite météorologique de 1000 mètres en-dessous de laquelle les événements de brouillard sont identifiés. Les zones grisées verticales représentent les dates des POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre d'aérosols mesurée par le SMPS, le trait rouge représente la concentration moyenne en aérosols. (c) Evolution de la concentration en nombre d'aérosols mesurée par le SMPS en fonction du diamètre.</i>	49
3.12	<i>ParisFOG, mois de Février 2007 : idem Figure 3.11.</i>	50
3.13	<i>ParisFOG, mois de Mars 2007 : idem Figure 3.11.</i>	51
3.14	<i>Exemple d'évolution diurne de la concentration totale en nombre de particules d'aérosols mesurée par le SMPS (pour des tailles comprises entre 10 et 500 nm) sur la période du 06 au 13 Janvier 2007 lors de la campagne de mesures ParisFOG. Les données ont été moyennées toutes les heures.</i>	53

3.15 Répartition de la composition chimique des aérosols au cours des mois de Janvier (a), Février (b) et Mars (c) 2007 durant la campagne de mesures ParisFOG. Le jeu de couleur utilisé pour représenter la composition chimique analysée est le suivant : La couleur verte indique la proportion de Matière Organique Particulaires (MOP) ; la couleur noire indique la proportion de Black Carbon (BC) ; la couleur jaune indique la proportion de Poussières (Ca^{2+}) ; la couleur bleue indique la proportion de sels marins ; la couleur rouge indique la proportion de sulfate (ion SO_4^{2-}) ; la couleur bleue foncée indique la proportion de nitrate (ion NO_3^-) et la couleur blanche indique la proportion d'ammonium (ion NH_4^+)	54
3.16 ParisFOG, mois de Janvier 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale, le trait rouge matérialise la visibilité horizontale de 5000 mètres en-dessous de laquelle on est en situation de brume. Le trait bleu représente la limite météorologique de 1000 mètres en-dessous de laquelle les événements de brouillard sont identifiés. Les zones grisées verticales représentent les dates des POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre de grosses particules mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000). (c) Evolution de la concentration en nombre de grosses particules mesurée par l'OPC en fonction du diamètre.	57
3.17 ParisFOG, mois de Février 2007 : idem Figure 3.16.	58
3.18 ParisFOG, mois de Mars 2007 : idem Figure 3.16.	59
3.19 ToulouseFOG, mois d'Octobre 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale. Le trait rouge matérialise la visibilité horizontale en-dessous de laquelle on est en situation de brume. Le trait bleu représente la limite météorologique en-dessous de laquelle le brouillard est identifié. Les zones grisées verticales représentent les POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre d'aérosols mesurée par le SMPS, le trait rouge représente la concentration moyenne en aérosols. (c) Evolution de la concentration en nombre d'aérosols en fonction du diamètre.	66
3.20 ToulouseFOG, mois de Novembre 2007 : idem Figure 3.19.	67
3.21 ToulouseFOG, mois de Décembre 2007 : idem Figure 3.19.	68
3.22 ToulouseFOG, mois de Janvier 2008 : idem Figure 3.19.	69
3.23 ToulouseFOG, mois de Février 2008 : idem Figure 3.19.	70
3.24 ToulouseFOG, mois de Mars 2008 : idem Figure 3.19.	71
3.25 ToulouseFOG, mois d'Octobre 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale. Le trait rouge matérialise la visibilité horizontale en-dessous de laquelle on est en situation de la brume. Le trait bleu représente la limite météorologique en-dessous de laquelle le brouillard est identifié. Les zones grisées verticales représentent les POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre de grosses particules. (c) Evolution de la concentration en nombre de grosses particules en fonction du diamètre.	73
3.26 ToulouseFOG, mois de Novembre 2007 : idem Figure 3.25.	74
3.27 ToulouseFOG, mois de Décembre 2007 : idem Figure 3.25.	75
3.28 ToulouseFOG, mois de Janvier 2008 : idem Figure 3.25.	76

3.29 <i>ToulouseFOG, mois de Février 2008 : idem Figure 3.25.</i>	77
3.30 <i>ToulouseFOG, mois de Mars 2008 : idem Figure 3.25.</i>	78
3.31 <i>Répartition de la concentration totale en nombre de grosses particules supérieures à 0.4 µm mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols inférieures à 0.5 µm mesurée par le SMPS selon le type de brouillard (a) et les phases du brouillard (b). Les données ont été moyennées toutes les heures dans le brouillard.</i>	84
3.32 <i>Répartition de la concentration totale en nombre de grosses particules (supérieures à 0.4 µm) mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols (inférieures 0.5 µm) mesurée par le SMPS obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG.</i>	87
3.33 <i>Répartition de la concentration en nombre de grosses particules (supérieures à 0.4 µm) mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols (inférieures à 0.5 µm) mesurée par le SMPS et de la visibilité horizontale obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG.</i>	88
3.34 <i>Répartition de la concentration en nombre de particules de rayon inférieur à 0.9 µm représentant le mode 1 (a) et de rayon supérieur à 0.9 µm représentant le mode 2 (b) mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols mesurée par le SMPS obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG.</i>	90
3.35 <i>Répartition de la concentration en nombre de particules de rayon supérieur et inférieur à 0.9 µm mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la visibilité horizontale minimale (a) et maximale (b) moyennée sur 1 heure. Les barres verticales noires correspondent aux limites météorologiques de visibilité caractérisant un brouillard dense (visibilité < 200 m), un brouillard (visibilité < 1000 m), une brume (1000 m < visibilité < 5000 m), hors brouillard (visibilité > 5000 m).</i>	93
3.36 <i>Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire avant la formation du brouillard pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.</i>	97
3.37 <i>Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire avant la formation du brouillard pour l'épisode du 25-26 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.</i>	98
3.38 <i>Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire avant la formation du brouillard pour l'épisode du 18-19 Février 2007 observé pendant ParisFOG.</i>	99
3.39 <i>Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire pendant et après le brouillard pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.</i>	102

3.40	<i>Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire pendant et après le brouillard pour l'épisode du 25-26 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.</i>	103
3.41	<i>Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire pendant et après le brouillard pour l'épisode du 18-19 Février 2007 observé pendant ParisFOG.</i>	104
3.42	<i>Evolution des spectres granulométriques des particules d'aérosols mesurés par le SMPS et l'OPC-GRIMM, évolution des spectres granulométriques des particules mesurés par l'OPC (Pallas welas 2000) et le FSSP lors de l'épisode du brouillard du 28-29 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.</i>	106
3.43	<i>Diamètre secs des CCN susceptibles de s'activer en fonction de la sursaturation critique de la masse d'air pour différentes valeurs de κ. Le trait noir représente notre cas d'étude avec un $\kappa=0.295$. La figure est basée sur l'étude de Petters et Kreidenweis (2007).</i>	110
4.1	<i>Comparaison de la fraction activée du mode 1 (en haut) et du mode 2 (en bas) en fonction de la concentration du mode 2 entre la paramétrisation Abdul-Razzak et Ghan (2000) (en ligne noire) et les résultats obtenus (en point rouge). Les deux modes d'aérosols ont un rayon modal de 0.05 μm et un $\sigma = 2$. Le mode 1 est composé de 100 % de sulfate d'ammonium, le mode 2 est composé de 10 % de sulfate d'ammonium et de 90 % de matière insoluble. La concentration en nombre d'aérosols du mode 1 est de 100 cm^{-3}. La vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1}.</i>	133
4.2	<i>Comparaison de la fraction activée du mode 1 et du mode 2 en fonction du rayon modal du mode 2 entre la paramétrisation Abdul-Razzak et Ghan (2000) (en ligne noire) et les résultats obtenus (en point rouge). Les deux modes d'aérosols ont un $\sigma = 2$ et sont composés de 100 % de sulfate d'ammonium. Le rayon modal du mode 1 est de 0.05 μm et la vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1}.</i>	134
4.3	<i>Comparaison de la fraction activée du mode 1 et du mode 2 en fonction de la vitesse verticale entre la paramétrisation Abdul-Razzak et Ghan (2000) (en ligne noire) et les résultats obtenus (en point rouge). Les deux modes d'aérosols ont un rayon modal de 0.05 μm, un $\sigma = 2$. Le mode 1 est composé de 100 % de sulfate d'ammonium et le mode 2 de 10 % de sulfate d'ammonium et de 90 % de matière insoluble.</i>	135
4.4	<i>Comparaison de la fraction activée (en haut) et de la sursaturation maximale (en bas) entre la paramétrisation sans surfactants (pointillé fin) et avec surfactants (pointillé gras) Abdul-Razzak et Ghan (2004) et les résultats obtenus (en point rouge) en fonction de la quantité de SDS en % constituant l'aérosol et pour trois concentrations en aérosols différentes. La vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1}. Le rayon modal est de 0.05 μm avec un $\sigma = 2$. La concentration en nombre d'aérosols varie de 100, 1 000 et 10 000 part.cm^{-3}.</i>	136

5.1	<i>Comparaison entre la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses simulées à 2 m (trait pointillé) et la concentration en nombre de gouttelettes de rayons supérieurs à 0.9 μm mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) (trait plein). Comparaison de la concentration en nombre de CCN calculée à partir des données SMPS et de la concentration maximale de gouttelettes simulées au sommet du brouillard.</i>	186
5.2	<i>Evolution de la concentration maximale de gouttelettes nuageuses (seuil maximal d'activation) en fonction de la concentration totale en nombre d'aérosols (trait gras pointillé) et du taux de refroidissement. Les 4 autres courbes montrent l'évolution du nombre de gouttelettes nuageuses formées en fonction du nombre d'aérosols et du taux de refroidissement donné par la Figure 5.3. La composition chimique de l'aérosol est celle du cas de référence (POI 13 de ParisFOG), le diamètre médian et la dispersion de la distribution est de 110 nm et 1.59, respectivement.</i>	189
5.3	<i>Evolution du taux de refroidissement pour lequel le nombre d'aérosols activés est maximal en fonction de la concentration totale en nombre d'aérosols. La composition chimique de l'aérosol est celle du cas de référence (POI 13 de ParisFOG), le diamètre médian et la dispersion de la dispersion est de 110 nm et 1.59, respectivement.</i>	190
5.4	<i>(a) Profils verticaux du contenu en eau liquide (en $\text{g}.\text{kg}^{-1}$), (b) profils verticaux de la concentration en nombre de gouttelettes (en $\text{gouttes}.\text{cm}^{-3}$) et (c) profils verticaux du taux de refroidissement (en $^{\circ}\text{K}.\text{h}^{-1}$). Les profils sont tracés à 22:15, 22:30 et 22:45 UTC et pour les 4 cas de sensibilité à la concentration : 1000 (trait plein fin), 5000 (trait pointillé), référence (trait gras) et 12000 (trait tireté) $\text{part}.\text{cm}^{-3}$ lors de la formation du brouillard radiatif de la POI 13.</i>	193
5.5	<i>Idem Figure 5.4 mais à 23:00, 23:15 et 23:30 UTC.</i>	196
5.6	<i>Idem Figure 5.4 mais à 23:45, 00:00 et 00:15 UTC.</i>	199
6.1	<i>Deux stratégies possibles pour la réalisation de simulations tri-dimensionnelles avec la prise en compte des aérosols</i>	210

Liste des tableaux

2.1	<i>Concentrations en nombre et en masse d'aérosols (pour toutes tailles) d'après Delmas et al. (2005), Seinfeld et Pandis (1998) et Pruppacher et Klett (1997).</i>	10
2.2	<i>Paramètres des distributions lognormales proposées par Jaenicke (1993) pour différents environnements. Les pourcentages pour N sont effectués sur le nombre total de particules N_a.</i>	11
2.3	<i>Bilans en masse sur la composition de l'aérosol pour différents types de masse d'air d'après l'étude de Sellegri (2002).</i>	13
2.4	<i>Exemples de solubilités en g/100 ml d'eau froide de plusieurs sels inorganiques ou organiques proposés par Yu (2000).</i>	16
2.5	<i>Exemples d'humidités relatives (RH) de déliquescence pour différents types de sels d'après Finlayson-Pitts et Pitts (1986).</i>	17
3.1	<i>Les principaux programmes d'observation sur le brouillard radiatif.</i>	29
3.2	<i>Instruments déployés sur le site du Sirta pendant la campagne ParisFOG.</i>	32
3.3	<i>Instruments microphysiques sur le site du Sirta pendant la campagne de mesures ParisFOG.</i>	34
3.4	<i>Chronologie des événements documentés au cours de la campagne de mesures ParisFOG : RADIATIF = brouillard radiatif, STRATUS = affaissement de stratus, ADVECTIF = brouillard d'advection, EVAPORATION = brouillard d'évaporation, BRUINE = brouillard précipitant, DIVERS = autres épisodes de brouillard non classés.</i>	39
3.5	<i>Instruments déployés sur le site du CNRM pendant la campagne ToulouseFOG.</i>	42
3.6	<i>Instruments microphysiques sur le site du CNRM pendant la campagne ToulouseFOG.</i>	44
3.7	<i>Chronologie des événements documentés au cours de la campagne de mesures ToulouseFOG.</i>	47
3.8	<i>Phase de formation du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale moyenne pour les 4 événements considérés. Les calculs ont été effectués pour la première heure du brouillard.</i>	60

3.9	<i>Phase de développement du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale moyenne pendant le brouillard pour les 4 événements considérés. Les calculs ont été effectués pendant toute la phase de développement du brouillard. Les valeurs entre parenthèses sont les valeurs minimales et maximales (MIN/MAX) de la concentration en nombre de particules, du rayon modal et de l'écart-type de la distribution moyennés sur chaque tranche horaire.</i>	61
3.10	<i>Phase de dissipation du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale moyenne lors de la phase de dissipation pour les 4 événements considérés. Les calculs ont été effectués pour la dernière heure du brouillard.</i>	62
3.11	<i>Phase de formation du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale pour différents types de brouillard. Les calculs ont été effectués pour la première heure du brouillard.</i>	79
3.12	<i>Phase de développement du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale pendant le brouillard pour différents types de brouillard. Les valeurs entre parenthèses représentent les valeurs minimales et maximales (MIN/MAX) de la concentration en nombre de particules, du rayon modal et de l'écart-type de la distribution moyennés sur chaque heure durant la phase de développement.</i>	80
3.13	<i>Phase de dissipation : caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale pour différents types de brouillard. Les calculs ont été effectués pour la dernière heure du brouillard.</i>	82
3.14	<i>Valeurs de concentrations de grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) de rayon inférieur et supérieure à 0.9 µm en fonction des visibilités minimales et maximales moyennées sur 1 heure en situation hors brouillard, de brume, de brouillard et de brouillard dense.</i>	92
3.15	<i>Caractéristiques de la distribution lognormale des aérosols mesurées par le SMPS entre 13:00 et 14:00 UTC.</i>	95
3.16	<i>Idem Tableau 3.15 mais entre 17:00 et 18:00 UTC.</i>	95
3.17	<i>Idem Tableau 3.15 mais 1 heure avant la formation de chaque épisode de brouillard considéré.</i>	96
3.18	<i>Caractéristiques de la distribution lognormale des aérosols mesurées par le SMPS pendant la formation de chaque épisode de brouillard considérés.</i>	100
3.19	<i>Idem Tableau 3.18 mais lors de la phase de développement du brouillard. Les calculs ont été effectués sur toute la phase de développement.</i>	101
3.20	<i>Idem Tableau 3.18 mais après la phase de dissipation du brouillard.</i>	101

3.21 <i>Sensibilité de la sursaturation critique S_c sur le diamètre critique d'activation D_c et sur la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses N. Les concentrations en nombre de gouttelettes sont moyennées sur 10 minutes et sont représentées par leurs valeurs minimales et maximales sur l'ensemble de l'épisode du brouillard de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG.</i>	108
3.22 <i>Sensibilité de la sursaturation critique S_c sur le diamètre critique sec et sur la concentration en nombre de CCN. La valeur de κ est de 0.295. Les concentrations en nombre de CCN sont moyennées sur 10 minutes et sont représentées par leurs valeurs minimales et maximales sur l'ensemble de l'épisode du brouillard de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG.</i>	109
3.23 <i>Principaux résultats du volet observation de l'étude obtenus à partir des campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG sur les brouillards radiatifs. (1) Données obtenues par SMPS (particules de diamètre < 0.5 μm) ; (2) Données obtenues par OPC (modèle Pallas welas 2000) (particules humides + gouttelettes de diamètre > 0.4 μm).</i>	114
4.1 <i>Propriétés physico-chimiques des composés SDS et NaCl.</i>	136
5.1 <i>Taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses pour les 4 cas de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols pour le mode accumulation : 1000 (Slightly Polluted), 5000 (More Polluted), 8300 (Polluted) et 12000 (Heavily Polluted) part.cm⁻³ à 22:15, 22:30 et 22:45 UTC. Les noms des tests de sensibilité sont identiques à ceux de l'article précédent.</i>	191
5.2 <i>Idem Tableau 5.1 mais à 23:00, 23:15 et 23:30 UTC.</i>	194
5.3 <i>Idem Tableau 5.1 mais à 23:45, 00:00 et 00:15 UTC.</i>	197

Chapitre 1

Introduction

Sommaire

1.1	Avant-propos	1
1.2	Les différents types de brouillard	2
1.3	Le brouillard radiatif	3
1.4	Interactions entre le brouillard radiatif et les aérosols	7

1.1 Avant-propos

De tout temps, le brouillard a inspiré la peur. D'abord craint des navigateurs, il continue de nos jours à perturber fortement la vie socio-économique, en particulier au niveau des transports routiers et aériens en réduisant la visibilité proche de la surface. Chaque année, les brouillards causent de nombreux accidents sur les routes et malheureusement de nombreux morts. A titre d'exemple, le 5 Novembre 2002, un épais brouillard fut à l'origine d'un terrible carambolage qui a coûté la vie à neuf personnes et en a blessé 39 autres sur l'autoroute A10 dans la Vienne. Au total, 58 véhicules, dont 10 poids-lourds, ont été impliqués. L'accident aérien le plus meurtrier de l'histoire de l'aviation civile, avec 583 victimes, a également eu pour cause la présence d'un épais brouillard le 27 mars 1977, sur l'aéroport de Ténérife dans les îles des Canaries. Ces accidents sont très graves mais heureusement rares. Les opérations aéroportuaires sont très sensibles aux brouillards. En effet, la fréquence de décollage et d'atterrissement d'un aéroport dépend fortement de l'occurrence de brouillard et de nuages bas. Ainsi, pour l'aéroport Charles de Gaulle, le nombre de rotation peut être divisé par un facteur 2 en conditions de faible visibilité (visibilité inférieure à 600 m et/ou plafond inférieure à 60 m). Ceci entraîne non seulement des retards des vols mais désorganise le trafic aérien structuré en "hub". Un exemple frappant est la paralysie de l'aéroport de Londres Heathrow (3^{eme} aéroport international), du 20 au 24 décembre 2006 par un épisode de brouillard persistant. Cet épisode a entraîné plus de 1000 annulations de vols et plus de 800 000 passagers ont été affectés par cette perturbation du transport aérien. Ceci a bien entendu un coût humain mais aussi un coût écologique et économique considérable. C'est pourquoi, le thème du brouillard répond à un besoin fort en prévision.

La prédiction du plafond nuageux et de la visibilité à la surface est un formidable chal-

lengue pour les services de prévisions météorologiques. Malgré des modèles de plus en plus sophistiqués et des calculateurs de plus en plus puissants, la prévision du brouillard, même à très courte échéance, reste un problème délicat. Elle ne peut être améliorée qu'à travers le perfectionnement de la modélisation des processus physiques se produisant dans l'atmosphère. En effet, le brouillard constitue un phénomène météorologique complexe mettant en jeu des interactions entre les processus microphysiques, radiatifs, turbulents, physico-chimiques et d'échanges avec la surface. Pourtant les différents processus de base conduisant à la formation du brouillard qui déterminent les différents types de brouillard sont maintenant bien connus. Mais c'est l'alchimie entre ces différents processus d'échelle spatiale très fine qui rend la prévision difficile. En effet, les modèles opérationnels de prévision numérique ne sont pas actuellement capables de reproduire correctement les interactions entre ces nombreux processus intervenant dans l'apparition et l'évolution d'une couche de brouillard. Un des buts essentiel de la modélisation du brouillard est alors de bien comprendre et simuler le cycle de vie du brouillard, notamment son apparition et sa dissipation ainsi que les différentes interactions qui s'y produisent afin de pouvoir améliorer la prévision.

La modélisation numérique du brouillard date de plusieurs dizaines d'années. Les modèles 1-D ont prouvé qu'ils pouvaient être très utiles pour explorer les processus physiques impliqués dans le cycle de vie du brouillard en conditions homogènes horizontalement. Roach *et al.* (1976), Musson-Genon (1987), Duynkerke (1991) et Guedalia et Bergot (1994) ont ainsi montré que le refroidissement radiatif, le dépôt de rosée et le mélange turbulent sont des processus clefs dans la formation du brouillard. Cependant, ces études se basent sur des schémas microphysiques simplifiés. Bott *et al.* (1990) et Bott et Trautmann (2002) ont perfectionné la description des interactions entre la microphysique du brouillard et le transfert radiatif.

La modélisation numérique du brouillard à l'aide de modèle 1-D fait l'hypothèse d'homogénéité horizontale pour le calcul des flux de surface et des forçages externes. Les modèles 3-D peuvent prendre en compte les hétérogénéités aux échelles résolues par leur résolution horizontale, mais généralement ces modèles sont limités par leur résolution verticale et leurs paramétrisations physiques simplifiées, dictées par la puissance de calcul disponible. Les simulations 3-D de brouillard se sont principalement focalisées sur la modélisation de brouillard d'advection (Ballard *et al.*, 1991; Pagowski *et al.*, 2004; Fu *et al.*, 2006).

Notre étude s'est consacrée essentiellement à comprendre l'impact de l'aérosol sur le cycle de vie du brouillard radiatif, en particulier lors des phases de formation et de développement, ainsi que les différentes interactions qui peuvent conduire à des structures de brouillard différentes.

1.2 Les différents types de brouillard

Plusieurs types de brouillard peuvent se rencontrer dans la nature en fonction de l'environnement dans lequel ils se forment et des différents processus mis en jeu. Une étude récente de Tardif et Rasmussen (2007) expose une climatologie des différents types de brouillard observés dans la région de New-York en utilisant 20 années de données. Cette étude met en évidence 5 principaux types de brouillard : radiatifs (RAD), advectifs (ADV), précipitants (PCP), d'évaporation (EVP) et d'affaissement de stratus (ou CBL,

l'acronyme anglais pour Cloud-Base Lowering). La Figure 1.1 illustre l'algorithme permettant de distinguer les différents types de brouillard tiré de cette étude. Les recherches effectuées lors de cette thèse s'intéressent essentiellement aux brouillards radiatifs qui se forment en général la nuit sur des surfaces continentales.

1.3 Le brouillard radiatif

Plusieurs études ont été menées sur le brouillard de rayonnement ou radiatif. Elles reposent sur des campagnes de mesures (Roach *et al.*, 1976; Brown et Roach, 1976; Meyer et Garland Lala, 1989) ou de simulations numériques (Garland Lala *et al.*, 1975; Brown et Roach, 1976; Brown, 1980; Duynkerke, 1991; Guedalia et Bergot, 1994; Nakanishi, 2000). Nous présentons ici quelques conclusions de ces différentes études. Tous les auteurs s'accordent pour distinguer trois périodes dans le cycle de vie d'un brouillard : la formation, la phase mature et la dissipation.

La phase de formation

Lors de la formation d'une nappe de brouillard radiatif, plusieurs facteurs interviennent : (1) le refroidissement radiatif de la surface, (2) la turbulence dans les basses couches et (3) les échanges entre la surface et l'atmosphère (essentiellement le transport de chaleur, l'évaporation et le dépôt de rosée) (Brown et Roach, 1976; Roach *et al.*, 1976). Ces trois facteurs ne sont pas indépendants les uns des autres mais interagissent entre eux : par exemple, le type de surface influence le refroidissement du sol, ce qui modifie la stabilité et donc l'intensité de la turbulence dans les basses couches.

Le refroidissement radiatif de la surface est le processus clef dans la formation du brouillard radiatif. Il est lié à un important déséquilibre radiatif au niveau de la surface au couper du soleil. Dès le couper du soleil, le sol émet plus (rayonnement infrarouge) qu'il ne reçoit d'énergie de l'atmosphère conduisant ainsi à un intense refroidissement radiatif de la surface, qui peut atteindre le point de condensation. La surface peut ainsi perdre plusieurs degrés en quelques heures. Ceci entraîne, en conditions de vent faible, la création d'une forte inversion thermique diminuant, mais ne stoppant pas, les échanges turbulents au sein de la couche nocturne. Dès que le point de saturation est atteint au niveau du sol, un dépôt de rosée sur la surface (ou sur les végétaux) se produit. Si le refroidissement radiatif (infrarouge) est suffisamment intense, des gouttelettes d'eau peuvent se former dans l'atmosphère au voisinage du sol conduisant à la formation d'une couche de brouillard.

La turbulence de basses couches est due au cisaillement du vent (production dynamique qui est un terme source) et à la stratification de l'atmosphère (production thermique qui peut être un terme puits ou source selon la stratification). Le transport turbulent de chaleur et d'humidité a un rôle important dans la formation et l'évolution du brouillard. Cependant, la turbulence a un rôle ambigu car elle peut avoir un effet inhibiteur avant la formation, limitant le refroidissement, et catalyseur une fois que le brouillard est formé favorisant le développement vertical du brouillard (Bergot et Guedalia, 1994).

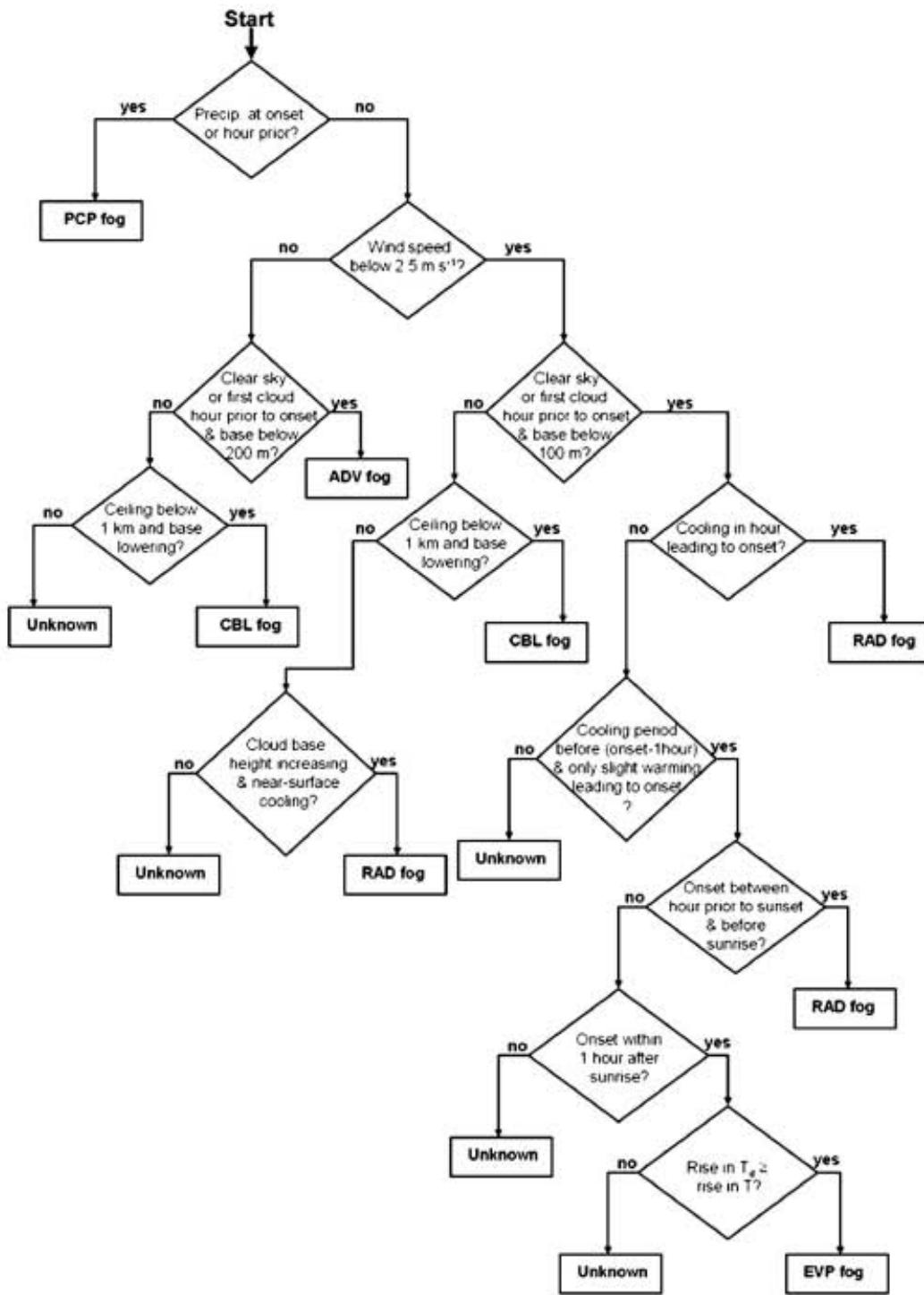


FIGURE 1.1 – Algorithme permettant la classification des différents types de brouillard, tiré de l'étude de Tardif et Rasmussen (2007). RAD = brouillard radiatif, ADV = brouillard advectif, PCP = brouillard précipitant, EVP = brouillard d'évaporation et CBL = affaissement de stratus.

En conditions de vent très faible, voire nul, le refroidissement de la surface va être intense mais par manque d'échanges turbulents, ce refroidissement ne pourra pas se propager verticalement. Par conséquent, l'inversion thermique sera très marquée et très basse en altitude (typiquement une dizaine de degrés sur une couche d'une dizaine de mètres). La saturation ne pourra donc pas se diffuser sur la verticale ; elle se traduira principalement par un dépôt de rosée et éventuellement des bancs de brouillard très fins pourront se former.

Au contraire, un vent faible mais non nul va diminuer le refroidissement de la surface en augmentant les échanges verticaux. Ainsi, la saturation des basses couches de l'atmosphère sera retardée. Mais une fois celle-ci atteinte, le vent va permettre au brouillard de se développer verticalement pouvant conduire à un brouillard dense. Plus le vent est important, plus le développement du brouillard sera rapide. Mais si les échanges turbulents sont trop importants, la couche de brouillard aura des difficultés à se former ou se dissiper rapidement. Par conséquent, l'équilibre entre les processus turbulents et radiatifs est important dans la formation d'une couche de brouillard radiatif.

Les échanges entre l'atmosphère et la surface ont également un rôle très important. En effet, le refroidissement radiatif va non seulement se transmettre à l'atmosphère mais va aussi se propager dans le sol. Il est bien connu que les conditions de surface modifient les échanges entre le sol et l'atmosphère, et donc influent sur le refroidissement de la surface. Pour les échanges thermiques, les paramètres pilotant les échanges entre le sol et l'atmosphère sont la température dans le sol et la conductibilité thermique du sol c'est à dire sa capacité à conduire la chaleur. La conductibilité thermique dépend de la nature du sol et de son contenu en eau. Plus un sol va être sec, plus sa conductibilité va être faible et donc plus il va se refroidir rapidement.

Lors de la formation du brouillard les échanges hydriques entre le sol et l'atmosphère sont essentiellement représentés par le dépôt de rosée en cours de nuit. Celui-ci a également un rôle crucial car il assèche les basses couches de l'atmosphère. Il peut être considéré comme un "pilote" dans la formation du brouillard radiatif. Pour un taux de refroidissement donné qui conduit l'atmosphère à la saturation, si le dépôt de rosée est important, ceci va entraîner une perte d'eau au niveau de l'atmosphère et donc inhiber la formation du brouillard. A l'opposé, un dépôt de rosée faible peut faire en sorte que le refroidissement radiatif soit suffisant pour initier la formation du brouillard.

De plus, il faut souligner que la présence de nébulosité peut freiner ou retarder le refroidissement radiatif et par conséquent retarder ou empêcher la formation du brouillard. Un autre facteur à prendre éventuellement en compte est la présence de végétation et de zones urbanisées, au travers desquelles vont se faire les échanges entre le sol et l'atmosphère. A titre d'exemple, le dépôt de rosée sera plus important en présence de végétation, car le refroidissement radiatif de la végétation sera plus important que celui du sol.

La phase mature

Une fois formé, le brouillard est un phénomène qui agit de plusieurs façons sur son environnement. Les phénomènes qui interviennent sont : le refroidissement radiatif au sommet du brouillard, la diffusion turbulente et la microphysique.

Une fois la couche de brouillard formée et suffisamment dense, la divergence des flux

radiatifs au sommet de la couche de brouillard va la déstabiliser, amenant la destruction de l'inversion nocturne en surface. Alors que la formation intervient par conditions stables, la couche de brouillard devient neutre, voire légèrement instable lors de la phase mature. L'eau liquide est alors principalement créée au sommet de la couche et se propage aux couches inférieures par turbulence et sédimentation des gouttelettes nuageuses. A ce moment là, le dépôt de rosée faiblit et n'a plus d'influence sur l'évolution de la couche de brouillard.

Il faut remarquer que les processus décrits correspondent à des échanges verticaux, au sein d'une colonne atmosphérique. Mais il existe aussi d'autres processus d'échanges sur l'horizontale, liés à la circulation atmosphérique à méso-échelle. Le premier de ces processus concerne les advections, soit de chaleur ou d'humidité, soit directement d'eau condensée. Etant donné le profil de vent dans la couche limite nocturne, ces termes advektifs vont croître dans les premiers mètres de l'atmosphère. Les advections peuvent donc faciliter ou inhiber le développement vertical du brouillard.

La phase de dissipation

La dissipation intervient par augmentation de la turbulence. Trois phénomènes peuvent provoquer cette augmentation : le lever du soleil conduisant au réchauffement de la surface, l'augmentation du vent et l'apparition d'une couche nuageuse au dessus de la nappe de brouillard peut également avoir un effet sur la dissipation.

Après le lever du soleil, une partie du rayonnement ondes courtes (rayonnement solaire) est réfléchie par la couche de brouillard, dont l'albédo est élevé. Mais une fraction est également transmise jusqu'au sol. Le réchauffement de la surface par le flux solaire (atténué par la présence de la couche de brouillard) va conduire, s'il est suffisant, à la déstabilisation de la couche du brouillard et à son "décollement" de la surface. Il importe donc de connaître très précisément l'épaisseur optique de la couche de brouillard au lever du soleil si l'on veut prévoir sa dissipation.

La dissipation peut être totale, ou alors la couche de brouillard peut évoluer en couches de strato-cumulus plus ou moins fractionnées. Ceci dépend de la quantité totale d'eau liquide présente dans le brouillard, et donc de son épaisseur, au moment où le soleil se lève, ainsi que l'intensité du rayonnement solaire incident (qui dépend donc de la saison et de la latitude).

Notons également qu'au moment de la dissipation, des structures peuvent apparaître sous forme de rouleaux au début de cette phase puis de cellules. Les rouleaux semblent plus ou moins alignés avec le vent (Nakanishi, 2000; Kurita *et al.*, 1990), au contraire de ceux qui apparaissent avant le lever du soleil. Le même auteur a mis en évidence que la production thermique de turbulence, liée à l'instabilité convective due au réchauffement du sol, est à l'origine à la fois des rouleaux et des cellules.

1.4 Interactions entre le brouillard radiatif et les aérosols

Le brouillard est un nuage constitué de fines gouttelettes d'eau en suspension dans l'air, accompagnées de particules hygroscopiques saturées en eau, souvent de la taille de quelques microns.

Au sens météorologique du terme, nous parlons de brouillard si la présence de ces gouttelettes réduit la visibilité horizontale à moins de 1000 mètres. Nous qualifions un brouillard de dense lorsque la visibilité devient inférieure à 200 mètres. Le terme brume est, quant à lui, utilisé lorsque la visibilité est comprise entre 1000 et 5000 mètres.

La particularité du brouillard radiatif par rapport aux autres types de nuages réside dans le fait qu'il se forme dans les basses couches de l'atmosphère, directement en contact avec la surface où les concentrations en particules d'aérosols sont les plus élevées. Les interactions entre particules d'aérosols et nuages ont été largement étudiées depuis la fin des années 50 (Twomey, 1959; Squires, 1958; Squires et Twomey, 1960). Actuellement, il est bien connu dans la communauté scientifique que les aérosols servent de noyaux sur lesquels la vapeur d'eau se condense et sont appelés Noyaux de Condensation Nuageux (ou CCN, l'acronyme anglais pour Cloud Condensation Nuclei). La théorie du grossissement par condensation des CCN pour former des gouttelettes nuageuses est aussi bien développée (Mason, 1971; Twomey, 1977; Pruppacher et Klett, 1978; Seinfeld et Pandis, 1998).

Du fait de la grande quantité d'aérosols susceptibles d'être activés en gouttelettes nuageuses, le brouillard est un nuage dont la concentration en gouttelettes nuageuses est élevée et varie beaucoup : plusieurs centaines de gouttelettes par cm^3 , pour un rapport de mélange en eau nuageuse faible. Les valeurs peuvent être comprises entre 50 et 300 gouttelettes par cm^3 en milieu maritime, et de 150 et 700 gouttelettes par cm^3 en milieu continental (Wendish *et al.*, 1998; Miles *et al.*, 2000).

Les rapports de mélange en eau liquide rencontrés dans le brouillard varient de 0.1 à 0.5 $g.kg^{-1}$ (Roach *et al.*, 1976; Nakanishi, 2000; Gultepe *et al.*, 2006) avec un maximum au niveau de la zone de condensation. La diffusion turbulente ainsi que la sédimentation par gravitation diffusent l'eau condensée vers le bas. La forte stabilité empêche une éventuelle diffusion au-dessus de la zone de condensation. Les vitesses de sédimentation des particules d'eau nuageuse varient entre 1.6 et 2.2 $cm.s^{-1}$ (Roach *et al.*, 1976; Bergot et Guedalia, 1994). Les gouttelettes dans le brouillard sont en général plus petites que dans les autres nuages. La distribution dimensionnelle des gouttelettes nuageuses est ainsi spécifique au brouillard.

Afin de répondre au mieux aux problèmes soulevés par cette étude, le plan se divise comme suit :

Dans un premier temps, nous dresserons un état de l'art sur l'activation des aérosols. Une description des caractéristiques physiques et des différentes compositions chimiques des particules d'aérosols sera effectuée. Ceci nous conduira à un bilan de la modélisation de l'activation des aérosols après avoir présenté la théorie de Köhler.

Ensuite, un second chapitre sera consacré au volet observation de l'étude. Les deux campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG seront présentées en décrivant les sites d'observation sur lesquels les mesures ont été effectuées ainsi que les différents instru-

ments utilisés, en particulier les instruments microphysiques. Nous présenterons un bilan des données recueillies. Les données microphysiques obtenues (aérosols et gouttelettes nuageuses) ont été analysées.

La chapitre suivant introduira la configuration du couplage de Méso-NH avec le module d'aérosol ORILAM. Le couplage utilise le schéma d'activation des aérosols de Abdul-Razzak et Ghan (2004) qui sera présenté.

Le dernier chapitre traitera le volet modélisation du travail. Tout d'abord, des études "off-line" avec le schéma d'activation des aérosols en conditions de brouillard ont été réalisées. Des tests de sensibilité au taux de refroidissement radiatif, à la concentration, à la taille et à la composition chimique des aérosols seront présentés. Ceci nous conduira à présenter des simulations numériques unidimensionnelles afin de montrer l'impact des aérosols sur les phases de formation et de développement d'une couche de brouillard radiatif. Une première simulation présentera un cas de brouillard radiatif observé lors de la campagne de mesures ParisFOG et sera comparée avec les observations. Des tests de sensibilité à la concentration en nombre et à la composition chimique de l'aérosol seront également présentés. La phase de formation sera ensuite analysée plus en détail.

Enfin, une conclusion générale permettra de résumer l'essentiel des résultats obtenus. Des perspectives seront proposées à la fin de l'étude.

Chapitre 2

Activation des particules d'aérosols en gouttelettes nuageuses : Etat de l'art

Sommaire

2.1	Aérosols atmosphériques	9
2.1.1	Caractéristiques physiques	10
2.1.2	Composition chimique	12
2.1.3	Paramètres descriptifs	15
2.2	Activation des Noyaux de Condensation Nuageux	18
2.2.1	Noyaux de Condensation Nuageux	18
2.2.2	Théorie de Köhler	18
2.3	Modélisation de l'activation des CCN	22
2.4	Résumé	25

Le bilan des connaissances sur l'aérosol présenté dans cette étude se consacre essentiellement sur le rôle des aérosols dans la formation des nuages de couche limite continentale.

La couche limite est directement ou quasi-directement influencée par les émissions polluantes ; c'est la région de l'atmosphère où les concentrations en particules d'aérosols sont les plus élevées. C'est aussi la région de l'atmosphère dans laquelle le brouillard radiatif se forme.

Les caractéristiques des aérosols troposphériques seront dans un premier temps présentées par un bref bilan de la composition globale des aérosols et des paramètres habituellement utilisés dans la description de ses propriétés hygroscopiques. Ceci nous conduira à présenter l'état des connaissances sur l'activation de ces particules d'aérosols en gouttelettes nuageuses.

2.1 Aérosols atmosphériques

La compréhension des processus de formation des nuages dans l'atmosphère nécessite une connaissance des caractéristiques physiques et chimiques des aérosols atmosphériques. Ce bilan des connaissances sur l'aérosol ne devra pas être considéré comme une description exhaustive des propriétés des aérosols.

2.1.1 Caractéristiques physiques

Dans le langage des sciences de l'atmosphère, le terme "aérosol" est défini comme une suspension de particules, solides ou liquides, dans une masse d'air à l'exclusion des gouttelettes (ou des cristaux) de nuage ou de pluie, plus généralement désignés sous le terme "hydrométéores". La taille de ces particules peut varier de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de micromètres.

Les concentrations en particules d'aérosols sont très variables selon le type d'environnement considéré. Les concentrations représentatives d'un environnement urbain, rural, marin et de troposphère libre sont résumées en nombre et en masse dans le tableau 2.1, sans prendre en compte la composition chimique. Les concentrations en nombre rencontrées en milieu urbain sont généralement supérieures de plusieurs ordres de grandeur à celles mesurées en milieu marin ou rural. Le tableau 2.1 illustre ainsi la très grande variabilité de ce paramètre.

Types d'environnement	Concentration massique ($\mu\text{g.m}^{-3}$)			Concentration en nombre (part. cm^{-3})		
	Pruppacher	Seinfeld	Delmas	Pruppacher	Seinfeld	Delmas
Urbain	80 - 230	100 - 300	10 - 100	50 000 - 400 000	$10^5 - 4 \times 10^6$	$50 000 - 10^6$
Rural	20 - 45	10 - 40	1 - 10	1 000 - 100 000	2 000 - 10 000	5 000 - 40 000
Troposphère libre	< 20	2 - 10	0.5 - 5	< 450	50 - 10 000	100 - 10 000
Marin	15 - 30	10	1 - 100	300 - 1 000	100 - 400	100 - 1 000

TABLE 2.1 – Concentrations en nombre et en masse d'aérosols (pour toutes tailles) d'après Delmas et al. (2005), Seinfeld et Pandis (1998) et Pruppacher et Klett (1997).

Le spectre dimensionnel des particules est une donnée indispensable pour l'étude des aérosols atmosphériques. Une population de particules est composée généralement de plusieurs modes correspondant aux diamètres des particules les plus fréquemment rencontrés. L'aspect multi-modal des aérosols dans la troposphère a été mis en évidence par Junge (1955) et plus récemment actualisé par Whitby (1978). Les modes les plus communément rencontrés sont le mode nucléation ou Aitken (diamètre centré sur $0.01\text{-}0.05 \mu\text{m}$), le mode accumulation (diamètre centré sur $0.15\text{-}0.5 \mu\text{m}$) qui constituent à eux deux la fraction fine de l'aérosol (diamètre $<2.5 \mu\text{m}$), et le mode grossier (diamètre $>2.5 \mu\text{m}$). La description d'une distribution granulométrique est en général l'information donnée par un granulomètre.

Dans la plupart des cas, la granulométrie d'une population de particules est, à l'origine, une information discrète, puisque les granulomètres mesurent le nombre de particules pour une série limitée de diamètres. Il est souvent plus simple de travailler avec une fonction continue, en ajustant une loi de probabilité à la distribution mesurée. La distribution la plus fréquemment utilisée suit la loi lognormale. Ce type de distribution utilisée en modélisation est issu des travaux de Jaenicke (1993) qui décrit les distributions en taille comme la superposition de lois lognormales, directement utilisables en entrée de modèle. La description mathématique de la distribution lognormale pour chaque mode d'aérosol est la suivante :

$$n(r_{ap}) = \frac{N_a}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma} \exp\left(-\frac{\ln^2(\frac{r_{ap}}{r_m})}{2 \ln^2(\sigma)}\right), \quad (2.1)$$

où N_a correspond à la concentration totale en nombre de particules d'aérosols pour le mode considéré (en particules/m³), r_{ap} est le rayon de la particule d'aérosol (μm), r_m est le rayon géométrique moyen du mode considéré (μm), et σ est la dispersion de la distribution du mode considéré. Le spectre dimensionnel des particules est une donnée importante et est caractéristique d'un environnement particulier. Dans la suite de l'étude, la loi lognormale sera utilisée pour représenter le spectre granulométrique des aérosols.

Jaenicke (1993) propose, pour cinq environnements différents (sources différentes d'aérosols) les paramètres des différents modes de la distribution dimensionnelle (Tableau 2.2).

	N_a total (cm ⁻³)	N (%)	r_{ap} (μm)	σ	N (%)	r_{ap} (μm)	σ	N (%)	r_{ap} (μm)	σ
Urbain	135 000	72	0.0065	1.76	1	0.007	4.63	27	0.025	2.17
Marin	200	65	0.004	4.54	33	0.133	1.62	2	0.29	2.49
Rural	10 000	75	0.075	1.68	2	0.027	3.61	23	0.042	1.85
Continental	6 000	52	0.001	1.45	47	0.058	1.65	1	0.9	2.40
Troposphère libre	250	51	0.0035	4.42	24	0.125	1.79	25	0.26	2.66

TABLE 2.2 – *Paramètres des distributions lognormales proposées par Jaenicke (1993) pour différents environnements. Les pourcentages pour N sont effectués sur le nombre total de particules N_a .*

La répartition de la masse (et du nombre) d'aérosols entre les différents modes varie suivant le type de masse d'air. Pour un aérosol urbain, la majeure partie du nombre et de la masse se situent dans la fraction fine (Seinfeld et Pandis, 1998). Pour ce type d'aérosol, le mode ultra-fin n'est observable qu'en nombre et prend une forme large englobant les particules plus petites que 0.001 μm aux particules proches de 0.1 μm (Jaenicke, 1993). Dans le cadre de ce travail, la fraction en taille étudiée correspondra principalement à la fraction fine de l'aérosol c'est à dire aux modes nucléation et accumulation (taille submicronique ultra-fine inférieure à 0.1 μm). Le nombre d'aérosols contenu dans ces deux modes est important dans les phénomènes d'activation et dans les processus qui nous intéressent.

En milieu urbain, Gomes *et al.* (2008) montrent que les variations journalières de la concentration en nombre d'aérosols présentent deux maxima. Les pics observés dans la matinée et dans la soirée sont le résultat de l'augmentation des émissions des particules d'aérosols provenant des véhicules pendant les heures de fort trafic routier. Entre ces deux pics, la concentration en nombre d'aérosols est plus faible. En effet, l'augmentation de l'épaisseur de la couche limite par réchauffement de la surface provoque un mélange des aérosols émis dans la couche limite convective et par conséquent engendre une diminution de la concentration en nombre d'aérosols en surface. Les variations journalières de la concentration en nombre d'aérosols sont importantes à considérer dans notre étude.

En s'intéressant aux processus de formation et de transformation des aérosols, nous distinguons deux types d'aérosols : les aérosols primaires, produits généralement mécaniquement ou par combustion (feux de brousse, moteurs), et les aérosols secondaires issus de la conversion gaz-particules. La majeure partie des particules contenue dans les gammes de tailles submicroniques est constituée d'aérosols secondaires. Une population de particules se trouve soit en mélange externe (coexistence de particules de compositions chimiques différentes pour une taille donnée) fréquemment rencontrée dans la nature, soit en mé-

lange interne (mélange de plusieurs espèces chimiques au sein d'une même particule). Dans cette étude, nous nous intéresserons essentiellement au mélange interne qui témoigne de l'altération de l'aérosol par condensation de composés gazeux sur des aérosols présents de nature chimique différente. Le mélange interne est un paramètre non négligeable à prendre en compte pour l'étude des processus d'activation. Les processus de coagulation et de condensation sont parmi les processus les plus efficaces pour engendrer une augmentation de diamètre des particules, et tendent à former des mélanges internes de particules qui sont par conséquent souvent caractéristiques du mode accumulation. La Figure 2.1 résume les distributions lognormales pour chacun des modes d'aérosol considérés.

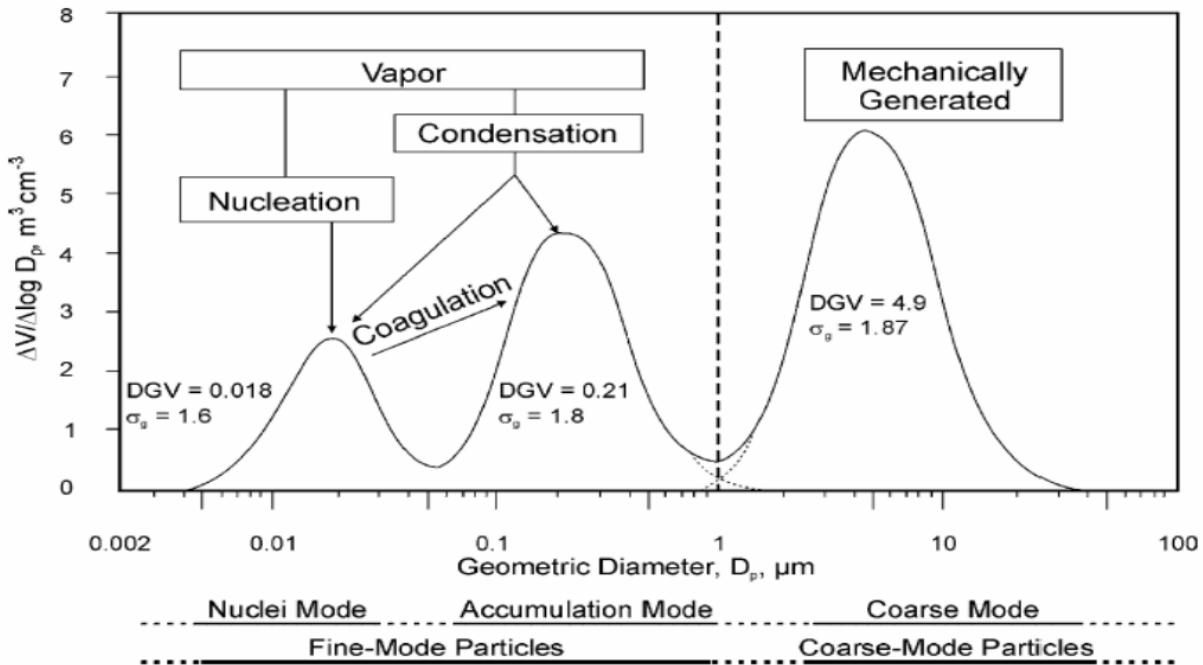


FIGURE 2.1 – *Exemple de distributions lognormales mettant en évidence les modes d'aérosols (en fonction du volume).*

2.1.2 Composition chimique

Les composés chimiques présents sous forme particulaire dans l'atmosphère sont extrêmement nombreux et divers. Dans l'état actuel, les techniques de mesures ne permettent l'identification que d'une partie de ces composés. De nombreuses études illustrent la difficulté de rendre compte de la composition chimique de l'aérosol puisque des milliers d'espèces chimiques peuvent être identifiées, chacune d'entre elle ne représentant qu'une fraction très limitée de la masse totale particulaire (Pruppacher et Klett, 1997). La description de la composition chimique de l'aérosol présentée ici est essentiellement axée sur sa fraction fine, puisqu'elle constitue la majeure partie du nombre de particules présente dans l'atmosphère et comme indiqué précédemment représente la fraction prépondérante pour les processus d'activation.

Généralement, la composition chimique de l'aérosol est décrite d'une part en différenciant les composés organiques des composés inorganiques (ou minéraux), et d'autre part en tenant compte des propriétés physiques et chimiques des composés. C'est le sens de l'étude récente de Decesari *et al.* (2001) qui propose une classification de la fraction fine des aérosols dans la région de la vallée du Pô en Italie. Elle permet une spéciation en fonction de la nature chimique des composés constituant les particules d'aérosols. Nous nous limiterons dans ce travail de description à l'identification des fractions solubles et insolubles des composés organiques et inorganiques. Cette limitation est tout à fait adaptée à la problématique du comportement hygroscopique des aérosols car la solubilité est un paramètre indispensable pour déterminer l'affinité des composés chimiques avec l'eau et donc pour étudier la capacité des aérosols à s'activer en gouttelettes nuageuses. Le tableau 2.3 tiré de l'étude synthétique effectuée par Sellegrí (2002) permet d'avoir un aperçu sur les proportions en masse de composés inorganiques (solubles et insolubles), de composés organiques (solubles et insolubles) et de carbone organique contenus dans les aérosols pour différentes masses d'air.

Type de masse d'air	Conc. totale ($\mu\text{g.m}^{-3}$)	Auteur	Composés				Carbone Elément.	Masse Indé.
			Inorganiques (%) solubles	Inorganiques (%) insolubles	Organiques (%) solubles	Organiques (%) insolubles		
Urbaine	38	(1)	60	11 ^a	14	7	3	6
	50-60	(2)	50	3	25		5	15
Rurale	24	(1)	52	-	14	13	2	18
		(3)	30			37		
Continentale fond	6	(1)	39	15	36	7	1	-
	23.5-28	(4)	47	5 ^b		8	1	39
Marine fond	1	(5)	61	0-8	20		<1	10
Tropos. libre fond	0.5	(5)	37	2-8		43	1	11
Tropos. libre influence continentale	1	(5)	30	-	43		1	-
	3	(6)	56	n.d. ²	21		17	6

TABLE 2.3 – Bilans en masse sur la composition de l'aérosol pour différents types de masse d'air d'après l'étude de Sellegrí (2002).

(1) Zappoli *et al.* (1999)

(2) J.P. Putaud Bologna (communication personnelle de la part de Karine Sellegrí)

(3) Temesi *et al.* (2001)

(4) Andrews *et al.* (2000)

(5) Putaud *et al.* (2000)

(6) Krivacsy *et al.* (2000)

^a mesuré en tant que carbone inorganique

^b mesuré en tant que "soil"

Ce tableau regroupe plusieurs études portant sur la composition globale de l'aérosol et met en évidence que la fraction soluble est rarement différenciée de la fraction insoluble. Zappoli *et al.* (1999) relate des proportions de matière carbonée variant de 25 % à 50 % de la masse totale pour une atmosphère urbaine. Sans rentrer dans le détail de la spéciation de tous les composés présents dans l'aérosol, nous nous limiterons à la description des composés habituellement observés (notamment lors des campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG décrites dans le chapitre 3) et qui seront utilisés pour la suite dans l'étude de modélisation.

La fraction inorganique

La fraction inorganique constitue généralement entre 30 et 70 % de la masse sèche totale de l'aérosol submicronique. La fraction inorganique fine soluble est composée essentiellement de sulfates, de nitrates et d'ammonium, tous trois résultant de la condensation des acides sulfurique et nitrique, d'une part, et de celle de l'ammoniac d'autre part. De ces trois composés chimiques principaux, le sulfate est majoritaire dans les différents types de masse d'air, le nitrate le moins concentré malgré une augmentation de sa proportion dans les masses d'air polluées (Zappoli *et al.*, 1999). Les concentrations de sulfate, de nitrate et d'ammonium dans l'aérosol dépendent évidemment de la proximité des sources d'émission.

La fraction inorganique insoluble présente dans les particules est principalement constituée de carbone inorganique, de poussières minérales et de métaux. Zappoli *et al.* (1999) mesurent cette fraction dans plusieurs types d'aérosols (pollué, rural et aérosol de fond).

La fraction organique - le carbone suie

La fraction organique représente une part comprise entre 10 et 70 % de la masse sèche totale des particules atmosphériques. Contrairement à la fraction inorganique de l'aérosol, la spéciation chimique de la fraction organique est un problème extrêmement complexe où se mêlent des difficultés d'échantillonnage et d'analyse de ces composés. La complexité de la fraction organique reste un problème majeur limitant, d'une part l'obtention d'une information chimique complète sur l'aérosol et, d'autre part, la compréhension des effets des composés organiques particulaires sur la chimie atmosphérique. Nous détaillons, dans la suite de la description la fraction organique, le carbone élémentaire ou carbone-suie (BC) et le carbone organique (OC). L'identification de ces espèces est loin d'être exhaustive.

Le carbone élémentaire (EC) est émis directement dans l'atmosphère au cours des processus de combustion (de fuel fossile ou biomasse) et est inerte chimiquement. L'EC est souvent apparenté aux suies émises, notamment lors des combustions des dérivés du pétrole. Ces suies ne sont cependant pas uniquement constituées de carbone élémentaire ; mais elles contiennent également une part significative de matière organique fonctionnalisée (OC). Les concentrations les plus élevées de EC sont rencontrées dans les milieux urbains et peuvent atteindre des valeurs de l'ordre de $40 \mu\text{g.m}^{-3}$. Nous considérons, pour la suite de l'étude, le carbone suie (BC) totalement insoluble.

Le carbone organique peut être défini comme la fraction de l'aérosol regroupant tous les composés organiques fonctionnalisés (alcanes, aldéhydes, cétones, esters, alcools, acides carboxyliques, hydrocarbures aromatiques polycycliques, composés organiques volatils). Emis directement dans l'atmosphère (OC primaire) ou forme *in situ* par condensation ou nucléation des produits de dégradation photochimique des composés organiques volatils (COV), nous parlons de carbone organique secondaire. L'OC est une matrice très complexe constituée d'une multitude de composés organiques différents. Les sources d'OC sont multiples : anthropiques primaires (combustion des dérivés du pétrole, circulation automobile...) et secondaires (produits d'oxydation des COV anthropiques comme le benzène ou le toluène) pour ne citer que quelques exemples. Les composés organiques secondaires peuvent soit se dissoudre dans l'aérosol soit créer des films sur les couches externes des aérosols. Compte tenu de cette grande diversité de composés organiques, les propriétés

hygroscopiques/de solubilité sont extrêmement variables pouvant agir sur la capacité des aérosols à s'activer ou non en gouttelettes nuageuses. Ce point sera détaillé dans le paragraphe suivant.

2.1.3 Paramètres descriptifs

Etant donné la complexité de la composition chimique de l'aérosol, il convient de pouvoir décrire l'aérosol à l'aide de critères simplificateurs. Au vu de l'information recherchée, il est nécessaire de prendre en compte des caractères physiques permettant d'étudier au mieux l'activation des aérosols. Pour cela, les propriétés de solubilité, d'hygroscopicité et de tension de surface seront détaillées.

La solubilité de l'aérosol est la quantité maximale de composés le constituant qui se dissout ou se dissocie dans l'eau, à une température donnée. Le tableau 2.4 présente les solubilités de différents sels inorganiques et organiques.

Les propriétés d'activation des aérosols inorganiques solubles sont bien documentées (Junge, 1963; Mason, 1971; Twomey, 1977; Eichel *et al.*, 1996). Mais depuis plus d'une dizaine d'années, de nombreuses études se sont portées sur les propriétés d'activation des aérosols organiques. Comme le montre le tableau 2.4, les solubilités des différents composés organiques sont extrêmement variables et peuvent donc agir différemment sur l'activation des aérosols. Les études de leurs propriétés de solubilité et d'hygroscopicité sont nombreuses (Gill *et al.*, 1983; Saxena *et al.*, 1995; Shulman *et al.*, 1996; Cruz et Pandis, 1997, 1998; Zappoli *et al.*, 1999; Yu, 2000; Facchini *et al.*, 2000; Mircea *et al.*, 2002).

L'hygroscopicité est la mesure d'affinité d'un composé, ou d'une particule avec l'eau. La quantité d'eau condensée en surface de l'aérosol est directement proportionnelle à l'humidité relative (RH). Les sels inorganiques, principalement les sulfates, nitrates, sels d'ammonium et de sodium, de même que certains composés organiques peuvent facilement intégrer des molécules d'eau dans leur structure moléculaire. Pour de faibles humidités relatives, la plupart des particules restent sèches et solides. Au fur et à mesure que RH augmente, les particules composées uniquement de sels restent sèches jusqu'à ce que RH soit suffisamment importante pour qu'un équilibre thermodynamique soit atteint entre la pression de vapeur et la solution formée par les composés chimiques de la particule et l'eau condensée. A cette humidité relative appelée "point de déliquescence", la particule devient donc une solution aqueuse saturée. La pression de vapeur nécessaire à la formation d'une gouttelette d'une solution saline est plus faible que la pression de vapeur saturante (soit une humidité relative inférieure à 100 %). Ce phénomène est communément appelé l'effet "Raoult". Si l'humidité relative continue de croître, la condensation de l'eau entraîne une augmentation de volume de la particule. Au contraire, si l'humidité relative diminue, l'eau s'évapore.

L'humidité relative (RH) de déliquescence de plusieurs sels (Tableau 2.5) donne une idée de leur hygroscopicité. Le lien peut être effectué avec la solubilité de ces sels donnée dans le tableau 2.4. La forme sous laquelle ces sels sont mélangés à d'autres sels a une grande influence sur le point de déliquescence. Par exemple, le type d'association entre le sulfate et l'ammonium influence le point de déliquescence. Il est donc important de prendre en compte l'état de mélange de l'aérosol. La solubilité intrinsèque d'un aérosol ne suffit pas à décrire la manière dont il peut réagir en présence d'eau.

Il n'est pas trivial de relier l'hygroscopicité à la composition chimique de l'aérosol.

Composés	Solubilité
<i>Ammonium</i>	
Acétate	148
Formate	102
Nitrate	118
Chlorure	30
Sulfate	71
Oxalate	2.5
<i>Sodium</i>	
Acétate	119
Formate	97
Nitrate	92
Chlorure	36
Sulfate	-
Oxalate	3.7
<i>Potassium</i>	
Acétate	253
Formate	331
Nitrate	13
Chlorure	34
Sulfate	12
Oxalate	29

TABLE 2.4 – *Exemples de solubilités en g/100 ml d'eau froide de plusieurs sels inorganiques ou organiques proposés par Yu (2000).*

En effet, la condensation de matériel organique à la surface de particules d'aérosols peut modifier les propriétés hygroscopiques (Gill *et al.*, 1983; Novakov et Penner, 1993; Saxena *et al.*, 1995; Saxena et Hildemann, 1996; Li *et al.*, 1998; Facchini *et al.*, 2000). De plus, après évaporation d'un nuage, certains produits non volatils de réactions en phase aqueuse peuvent rester en phase particulaire et modifier les propriétés physico-chimiques des particules et donc leur hygroscopité.

Le dernier paramètre à considérer pour notre étude est la *tension de surface*. C'est un élément indispensable dans la paramétrisation de l'activation des aérosols.

Lorsqu'une masse d'air atteint sa saturation en eau, RH est à 100 %. Cette humidité relative correspond à la pression de vapeur saturante pour une surface plane. La pression de vapeur saturante pour une surface de forme sphérique est plus importante. L'effet de courbure a en effet tendance à déstabiliser les molécules d'eau, qui ont besoin d'une force (la tension de surface) plus importante pour se maintenir en phase liquide. L'influence de la courbure est appelée l'effet "Kelvin".

De nombreuses études ont révélé que certains composés organiques peuvent modifier la tension de surface des aérosols humides (Gill *et al.*, 1983; Saxena *et al.*, 1995; Shulman *et al.*, 1996; Li *et al.*, 1998; Facchini *et al.*, 2000). Saxena *et al.* (1995) idéalisent le comportement de ces composés organiques en interactions avec l'eau de deux manières :

- certains composés organiques, originaires principalement d'émissions primaires ayant

Sels	RH de déliquescence (%)
$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	79.9
$(\text{NH}_4)\text{HSO}_4$	39
$(\text{NH}_4)_3\text{H}(\text{SO}_4)_2$	69
Na_2SO_4	84.2
NH_4NO_3	61.8
NaCl	75.3
NaNO_3	74.3
NaCl-NaNO_3	68
KCl	84.2
NaCl-KCl	72.7

TABLE 2.5 – *Exemples d'humidités relatives (RH) de déliquescence pour différents types de sels d'après Finlayson-Pitts et Pitts (1986).*

un poids moléculaire important (alcanes, aldéhydes, cétone par exemple) ont un comportement hydrophobe. Ils peuvent se comporter comme surfactants (molécules organiques ayant un groupe hydrophile se fixant à la surface de la particule), formant des films (ou micelles) à la surface de la particule (Gill *et al.*, 1983). Ces films agissent comme une barrière entre le transfert de l'eau à la surface de la particule empêchant ainsi l'absorption de l'eau par les substances inorganiques et organiques hydrophiles constituant la particule (Gill *et al.*, 1983). Ils peuvent diminuer la tension de surface et influencer l'activation des aérosols en gouttelettes nuageuses (Li *et al.*, 1998).

- d'autres composés organiques possèdent une fraction hydrophile formée par oxydation de gaz organiques sur les particules durant la combustion. Cette fraction, ayant un poids moléculaire plus faible comme par exemple les acides carboxyliques, les dicarboxyliques, les alcools, est condensable et soluble. Ces composés absorbent l'eau et ajoutent une quantité d'eau supplémentaire en plus de celle absorbée par les composés inorganiques solubles déjà présents dans la particule. Ces composés permettent de faciliter par conséquent l'activation de la particule en gouttelette nuageuse.

Il est donc indispensable de prendre en compte cet effet de tension de surface dans les processus d'activation des aérosols.

2.2 Activation des Noyaux de Condensation Nuageux

2.2.1 Noyaux de Condensation Nuageux

La formation de gouttelettes nuageuses peut s'effectuer par nucléation homogène. Celle-ci se produit lors d'une sursaturation de la phase gaz pouvant alors former des embryons constitués de plusieurs molécules de gaz. En l'absence de corps étrangers comme support, elle ferait appel à des sursaturations de plusieurs centaines de pourcents (Pruppacher et Klett, 1997). La formation d'un nuage n'est donc possible qu'en présence de particules d'aérosols réduisant fortement la sursaturation nécessaire à la condensation (nucléation hétérogène). Les particules servent de support permettant de faciliter la condensation et donc la formation de gouttelettes nuageuses. Ces particules sont appelées "noyaux de condensation nuageuses" (CCN). L'ensemble des aérosols ne sont pas susceptibles de jouer le rôle de CCN, et leur capacité à pouvoir le devenir dépend fortement de leur composition chimique (solubilité, hygroscopicité, tension de surface), de leur taille et de la sursaturation ambiante de l'atmosphère.

Les sels inorganiques comme le chlorure de sodium et le sulfate d'ammonium sont les espèces chimiques dominantes dans les CCN (Pruppacher et Klett, 1997) et se dissolvent facilement dans l'eau. Comme nous l'avons vu précédemment, la présence de composés organiques dans les particules peut altérer la composition chimique des CCN et donc l'équilibre de la pression de vapeur de l'eau autour des CCN qui détermine le taux de grossissement de la gouttelette (Shulman *et al.*, 1996). Pour créer une gouttelette nuageuse, le CCN doit être soumis à une faible sursaturation critique (un peu au-delà de 100 % d'humidité relative). La gouttelette quitte alors son état d'équilibre et grossit tant qu'il reste de la vapeur d'eau à disposition. Le passage de l'état d'équilibre à l'état de croissance hygroscopique est appelé le processus d'activation des particules d'aérosols. Le diamètre de la particule humide auquel se produit cette activation est le diamètre critique d'activation. L'accroissement et l'activation des gouttelettes nuageuses sont décrits par la théorie de Köhler (Köhler, 1936; Pruppacher et Klett, 1997).

2.2.2 Théorie de Köhler

La théorie de Köhler (Köhler, 1936) estime la sursaturation permettant l'activation des particules d'aérosols inorganiques en fonction des effets Kelvin (courbure et tension de surface, Eq. 2.3), et Raoult (hygroscopicité du soluté, Eq. 2.4). Ainsi, pour *une solution aqueuse purement soluble*, l'équation de Köhler prend la forme :

$$S = \frac{e_{goutte}}{e_{sat}} = \exp\left(\frac{A}{r} - \frac{B}{r^3}\right) \quad (2.2)$$

où

$$A = \frac{2\tau M_w}{\rho_w RT} \quad (2.3)$$

et

$$B = \frac{v\phi M_w \rho_{ap}}{M_{ap} \rho_w} \quad (2.4)$$

où S est la sursaturation, τ est la tension de surface, M_w est le poids moléculaire de l'eau, ρ_w est la densité de l'eau, R est la constante des gaz parfaits, T est la température, v est le nombre d'ions qui se dissocie, ϕ est le coefficient osmotique (égal à 1), ρ_{ap} est la densité de la particule d'aérosol sèche et M_{ap} est le poids moléculaire de la particule d'aérosol sèche, e_{goutte} est la pression de vapeur d'une goutte d'eau pure, e_{sat} est la pression de vapeur saturante de l'environnement au-dessus d'une surface plane.

Si $\frac{e_{goutte}}{e_{sat}} \approx 1$, l'équation 2.2 peut être approximée par :

$$S \sim 1 + \frac{A}{r} - \frac{B}{r^3} \quad (2.5)$$

La pression de vapeur autour d'une gouttelette d'eau pure obéit toujours à l'inégalité $e_{goutte} \geq e_{sat}$. Cependant, la pression de vapeur autour d'une gouttelette en solution aqueuse peut être plus grande ou plus petite que e_{sat} . En effet, si le terme de soluté B (Eq. 2.4) est plus petit ou plus grand que le terme de courbure A (Eq. 2.3) ceci implique qu'une solution aqueuse peut être en équilibre avec un environnement sous-saturé, particulièrement, si $r^2 A < B$ alors $e_{goutte} < e_{sat}$.

Les sursaturations données par l'équation de Köhler sont représentées sur la Figure 2.2 pour deux types de solutions de sels. Le maximum des courbes correspond au rayon critique $r_c = (\frac{3B}{A})^{1/2}$ qui donne la sursaturation critique :

$$s_c = \left[\left(\frac{e_{goutte}}{e_{sat}} \right) - 1 \right]_c = \left(\frac{4A^3}{27B} \right)^{1/2} \quad (2.6)$$

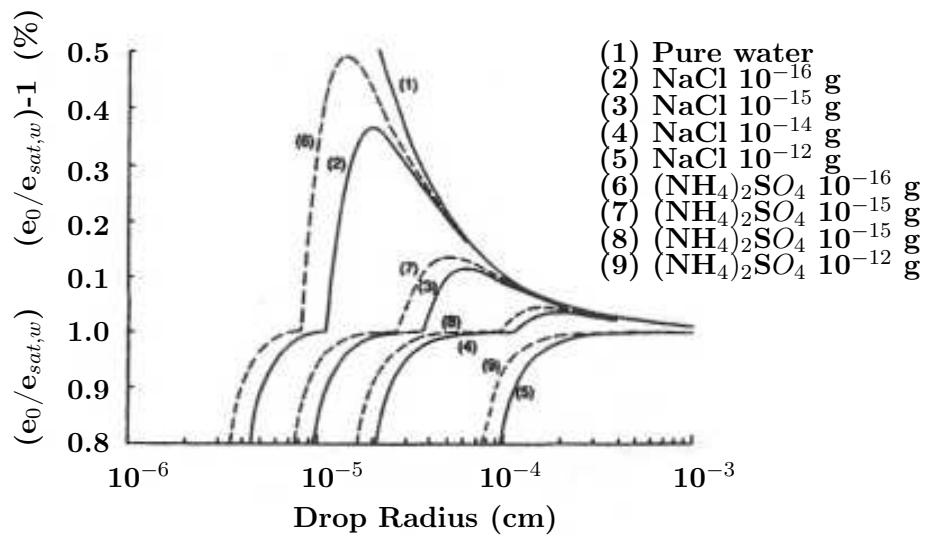


FIGURE 2.2 – Variation de la pression de vapeur d'eau au-dessus d'une solution aqueuse pour des particules de NaCl (solide) et de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (pointillé) en fonction du rayon humide de la particule, figure tirée de Pruppacher et Klett (1997).

Pour $r > r_c$, la particule est dans un état instable avec son environnement. Elle capte de l'eau et augmente en taille jusqu'à donner potentiellement une gouttelette nuageuse. Au contraire, pour $r < r_c$, la particule reste à une taille inférieure au rayon critique et

demeure dans l'état d'aérosol humide.

Si l'environnement a atteint une sursaturation égale ou supérieure à $[(\frac{e_{goutte}}{e_{sat}}) - 1]_c$, on dit que la sursaturation a atteint la valeur critique permettant l'activation de la gouttelette.

L'équation 2.2 montre le comportement à l'équilibre d'une solution aqueuse en fonction de la masse totale m_s de sels dans la particule et du type de sels considérés. Cette dépendance est également illustrée sur la Figure 2.3 qui montre la sursaturation critique qu'il faut atteindre pour l'activation d'une particule (de composition chimique variée) en fonction de sa masse de sels considérée.

Comme nous l'avons vu précédemment, la grande majorité des particules d'aérosols sont *mélangées* c'est à dire qu'elles sont composées d'espèces solubles avec l'eau mais aussi de substances insolubles. La forme modifiée de l'équation de Köhler, prenant en compte l'effet d'une substance solide insoluble avec l'eau dans une solution aqueuse est :

$$S = \frac{e_{goutte}}{e_{sat}} = \exp\left(\frac{A}{r} - \frac{\epsilon_v B r_{ap}^3}{(r^3 - r_{ap}^3)}\right) \quad (2.7)$$

où

$$r_{ap}^3 = m_{ap}/(4\pi/3)\rho_{ap} \quad (2.8)$$

et

$$\rho_{ap} = \rho_s \epsilon_v + \rho_u (1 - \epsilon_v) \quad (2.9)$$

r_{ap} correspond au rayon de la particule d'aérosol, ρ_{ap} est la densité de la particule d'aérosol contenant une fraction soluble de densité ρ_s et une fraction insoluble de densité ρ_u . $\epsilon_v = \epsilon_m (\rho_{ap} / \rho_s)$ où $\epsilon_m = m_s / m_{ap}$ qui représente la fraction en masse de matériel soluble dans une particule d'aérosol mélangée de masse m_{ap} et de rayon r_{ap}^3 .

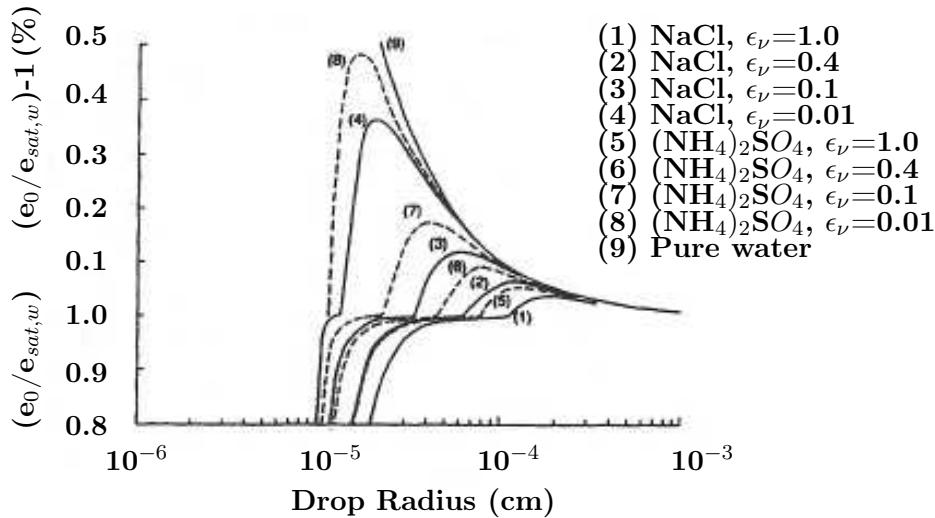


FIGURE 2.3 – Variation de la pression de vapeur au-dessus d'une solution aqueuse en fonction du rayon humide de la particule, pour des particules d'aérosols mélangées de rayon 1 μm contenant une fraction volumique ϵ_v de NaCl et de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ et une substance insoluble à l'eau, figure tirée de Pruppacher et Klett (1997).

Comme indiqué précédemment, les CCN peuvent être mélangés chimiquement (Saxena *et al.*, 1995; Novakov et Penner, 1993; Hanel, 1976) et contenir *des composés organiques (surfactants) de nature chimique variable*, et sont souvent faiblement solubles dans des solutions aqueuses (Cronn, 1975). Après que le grossissement de la gouttelette ait eu lieu par déliquescence des sels inorganiques, l'état physique des composés faiblement solubles présents est fonction de leur solubilité dans la solution aqueuse, de leur quantité dans le CCN et du volume de la gouttelette. La quantité totale de matériel dissout dans la solution et la tension de surface de l'aérosol humide affectent la pression de vapeur d'eau à l'équilibre et peuvent favoriser la croissance de la gouttelette nuageuse (Saxena et Hildemann, 1996; Shulman *et al.*, 1996; Facchini *et al.*, 2000). Il est donc nécessaire de prendre en compte la solubilité et la tension de surface de composés qui ne se dissolvent pas totalement dans la solution aqueuse.

Shulman *et al.* (1996) ont donc modifié le terme Raoult dans la forme initiale de la théorie de Köhler (Eq. 2.2) afin d'inclure l'effet des composés organiques sur l'activation des sels inorganiques en supposant que l'effet sur la pression de vapeur provenant de la partie des composés organiques solubles et de la partie des composés inorganiques soit simplement additionnée. Cruz et Pandis (1997) ont également montré que la théorie de Köhler peut aussi prédire l'activation des aérosols organiques purs. L'équation de Köhler modifiée est :

$$S = \frac{e_{goutte}}{e_{sat}} \sim 1 + \frac{A}{r} - \frac{Br_{ap}^3}{r^3} \quad (2.10)$$

où

$$A = \frac{2\tau M_w}{\rho_w RT} \quad (2.11)$$

et

$$B = \frac{M_w \rho_{ap}}{\rho_w} \left[\frac{v_{sal} \phi_{sal} (1 - \epsilon_m)}{M_{sal}} + \frac{v_{sft} \phi_{sft} \epsilon_m}{M_{sft}} \right] = B_{sal} + B_{sft} \quad (2.12)$$

Pour un mélange de sels inorganiques (sal) et de composés organiques (sft pour surfactants), le terme d'hygroscopicité B peut être exprimé en supposant le comportement additionnel des deux composés (Shulman *et al.*, 1996). ϵ_m est la fraction massique des composés organiques surfactants et $\rho_{ap} = \frac{\rho_{sal}}{1 - \epsilon_m (1 - (\frac{\rho_{sal}}{\rho_{sft}}))}$ est la densité totale du mélange.

B_{sal} et B_{sft} sont les contributions des sels inorganiques et des surfactants sur l'hygroscopicité. Cruz et Pandis (1997) ont étudié expérimentalement l'activation des aérosols en prenant en compte un noyau inorganique recouvert d'un film organique et ont trouvé que l'activation de particules mélangées chimiquement peut être prédit par la modification de la théorie de Köhler, validant ainsi l'hypothèse de Shulman *et al.* (1996).

Cette dernière forme de l'équation de Köhler (Eq. 2.10) correspond à la base du schéma d'activation de Abdul-Razzak et Ghan (2004) qui sera détaillée dans le chapitre 4. Ce schéma sera utilisé pour toutes les simulations du cycle de vie du brouillard présentées dans la suite de l'étude.

2.3 Modélisation de l'activation des CCN

L'activation des aérosols est le processus par lequel les particules en suspension dans l'atmosphère grossissent pour former des gouttelettes nuageuses. De nombreux travaux ont étudié l'activation des CCN à l'intérieur de nuages de couche limite comme par exemple dans des stratocumulus ou des cumulus (Sandu *et al.*, 2008; Hill et Dobbie, 2008; Geoffroy, 2007; Khairoutdinov et Kogan, 2000; Zhang et Kreidenweis, 1999; Kogan *et al.*, 1995; Ghan *et al.*, 1995). La spécificité de notre travail est d'étudier l'activation des CCN dans des conditions de brouillard. Le cadre de cette étude est donc relativement différent des études antérieures s'intéressant à l'activation des CCN. Le brouillard radiatif est un nuage de couche limite qui est en contact avec la surface, là où les concentrations en nombre d'aérosols sont généralement les plus élevées. De plus, le taux de refroidissement est principalement associé au refroidissement radiatif et par conséquent est différent du taux de refroidissement rencontré dans les autres nuages de couche limite, dû à des mouvements convectifs verticaux.

Il est important de noter que ces particules d'aérosols affectent également l'équilibre radiatif de la planète directement en diffusant le rayonnement solaire dans l'espace et indirectement à travers leur influence sur la concentration en gouttelettes nuageuses et donc sur l'albédo des nuages. Les estimations de l'ampleur du refroidissement radiatif par les aérosols anthropogéniques sont comparables au réchauffement radiatif dû à l'augmentation des gaz à effets de serre (Charlson *et al.*, 1992; Penner *et al.*, 1992). Cependant, les estimations de l'effet radiatif indirect des aérosols sont très incertaines. Parmi ces incertitudes, nombreuses sont dues à l'interaction complexe entre la concentration en aérosols et en gouttelettes nuageuses. Une grande partie de cette complexité provient du processus d'activation des aérosols, qui détermine le nombre de gouttelettes nuageuses ; additionné à la complexité des processus de mélange, qui évaporent les gouttelettes et remettent en suspension les aérosols. Nous considérons ici seulement le processus d'activation des aérosols.

Comme expliqué précédemment, la formation de gouttelettes nuageuses dans l'atmosphère a lieu via la nucléation hétérogène sur les particules d'aérosols qui servent de CCN. Bien que la concentration en nombre d'aérosols activables n'influence pas directement le contenu en eau du nuage, elle détermine grandement la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses. Pour un contenu en eau liquide donné, la concentration en nombre de CCN influence la taille moyenne des gouttelettes qui à son tour influence la réflectivité et l'autoconversion des gouttelettes nuageuses pour former des gouttes précipitantes.

Bien que beaucoup de processus intervenant dans l'activation des aérosols soient bien compris (Pruppacher et Klett, 1997; Seinfeld et Pandis, 1998), la théorie complète de l'activation des aérosols est trop complexe pour être directement utilisée dans des modèles de grande échelle qui nécessitent des paramétrisations simplifiées.

Tous les traitements du processus d'activation doivent prendre en compte la compétition entre tous les aérosols sur lesquels l'eau peut se condenser (Ghan *et al.*, 1998) en fonction de la taille et de la composition chimique des particules qui peuvent influencer la sursaturation de la masse d'air considérée (qui est fonction du taux de refroidissement radiatif dans notre étude).

Squires (1958), Twomey (1959) et Squires et Twomey (1960) ont développé les premières paramétrisations de l'activation des aérosols. Ces paramétrisations calculent la croissance des particules quand la sursaturation atteint une valeur soit de zéro (Squires, 1958) soit la sursaturation critique pour activer les aérosols (Twomey, 1959). La concentration des CCN est alors donnée par :

$$N_{CCN} = cS^k \quad (2.13)$$

où c et k sont des paramètres dépendant de la forme du spectre des aérosols et de la nature de ces derniers. Néanmoins, les paramétrisations du spectre granulométrique des aérosols dans Squires (1958) et dans Twomey (1959) ne sont pas explicitement nécessaires. Les études de Justio et Lala (1981) et de Herbert (1986) ont utilisé la théorie de Köhler pour montrer que pour des sels solubles purs, la forme du spectre de sursaturation $N_{CCN} = cS^k$ est cohérente avec un spectre d'aérosol qui suit la loi puissance :

$$\frac{dn}{da} = a^{-b} \quad (2.14)$$

où a est le rayon de la particule. Cette forme produit une concentration immense en nombre d'aérosols pour un rayon "a" égal à zéro et une concentration en nombre de gouttelettes nuageuses sans limite pour une sursaturation infinie.

Cette faiblesse a été corrigée par Cohard *et al.* (1998) en utilisant une forme modifiée pour le spectre de sursaturation. La paramétrisation de Cohard *et al.* (1998) est alors une généralisation de l'approche de Twomey (1959). Elle donne une estimation du pic de sursaturation S_{max} à partir de considérations théoriques effectuées à l'aide de l'équation de Köhler et selon la méthodologie de Twomey (1959). L'expression paramétrée de N_{CCN} comporte alors deux paramètres supplémentaires dépendant de la forme et de la nature du spectre d'activation. La nouvelle forme de l'équation de la concentration des CCN s'écrit :

$$N_{CCN} = cS_{max}^k F(\mu, \frac{k}{2}, \frac{k}{2} + 1; -\beta S_{max}^2) \quad (2.15)$$

avec S_{max} solution de l'équation suivante :

$$S_{max}^{k+2} F(\mu, \frac{k}{2}, \frac{k}{2} + \frac{3}{2}; -\beta S_{max}^2) = \frac{(\psi_1(T)w)^{3/2}}{2kc\pi\rho_w\psi_2(T,P)^{3/2}B(\frac{k}{2}, \frac{3}{2})} \quad (2.16)$$

où c , k , μ et β sont des paramètres décrivant les propriétés observables des aérosols : distribution dimensionnelle, propriétés chimiques, solubilités et concentration (Cohard et Pinty, 2000a,b). $\psi_1(T)$ et $\psi_2(T,P)$ sont des fonctions de la température et de la pression. $B(a,b)$ et $F(a, b, c; x)$ sont respectivement la fonction Bêta et la fonction Hypergéométrique.

En 1993, Von der Emde et Wacker (1993) ont mis en évidence que le spectre granulométrique des aérosols pouvait être représenté de manière plus réaliste en suivant une distribution lognormale multimodale, présentée dans le paragraphe 2.1.1 (Eq. 2.1). Ils ont montré que la théorie de Köhler pouvait être utilisée pour exprimer le spectre de sursaturation des particules d'aérosols activables $N_{CCN}(S)$ selon une distribution lognormale.

C'est à partir de cette approche que Ghan *et al.* (1993) ont utilisé le spectre granulométrique des aérosols lognormal pour aboutir à une paramétrisation d'activation des

aérosols. Contrairement à l'approche de Squires (1958) et de Twomey (1959), Ghan *et al.* (1993) ont négligé le grossissement de la gouttelette après que la sursaturation excède la sursaturation critique de la particule, mais ont traité le grossissement en supposant qu'à la sursaturation maximale, le rayon de chaque particule est donné par son rayon critique. Ghan *et al.* (1995) ont étendu leur paramétrisation unimodale à une paramétrisation multimodale mais celle-ci est limitée par la non-prise en compte de la croissance de la particule après qu'elle soit activée. Le nombre total d'aérosols activés est alors donné par la somme du nombre d'aérosols activés pour chaque mode d'aérosol considéré. En supposant que le spectre granulométrique des aérosols suive une distribution lognormale, le nombre total de gouttelettes formées N (aérosols activés) est représenté par l'équation suivante :

$$N = \sum_{i=1}^I N_i [1 - \operatorname{erf}(\chi_{ci})] \quad (2.17)$$

où

$$\chi_{ci} \equiv \frac{\ln(a_{ci}/a_{mi})}{\sqrt{2 \ln \sigma_i}} \quad (2.18)$$

N_i est le nombre total d'aérosols dans le mode i , a_{ci} est le rayon sec de la plus petite particule activable pour le mode i , a_{mi} et σ_i le rayon géométrique et la dispersion de la distribution du mode i .

En se basant sur toutes ces études antérieures et sur des résultats de simulations numériques du processus d'activation des aérosols, Abdul-Razzak *et al.* (1998) ont combiné les résultats obtenus par Twomey (1959) et Ghan *et al.* (1993) en traitant le début du grossissement de la particule à partir d'un rayon critique lorsque la sursaturation excédait la valeur critique de la particule. La paramétrisation d'activation des aérosols effectuée par Abdul-Razzak *et al.* (1998) et étendue par Abdul-Razzak et Ghan (2000) et Abdul-Razzak et Ghan (2004) a été implémentée dans le couplage Méso-NH - ORILAM dont la description précise sera détaillée dans le chapitre 4.

Pour compléter cette partie, une autre paramétrisation de l'activation des CCN a été développée par Nenes et Seinfeld (2003). En comparaison avec la paramétrisation de Abdul-Razzak et Ghan (2004), les principales différences sont : tout d'abord, cette paramétrisation est basée sur une représentation sectionnelle de la taille et de la composition chimique de l'aérosol. Le coût numérique est alors plus important que celui utilisé pour une représentation lognormale. Ensuite, Nenes et Seinfeld (2003) ont introduit le concept de "population splitting" dans lequel les CCN qui forment les gouttelettes sont divisés en deux populations : d'une part, ceux qui ont une taille proche de leur diamètre critique d'activation et, d'autre part, ceux qui ont une taille trop petite ne leur permettant pas d'atteindre leur diamètre critique d'activation. Enfin, les limitations cinétiques ont également été introduites et correspondent à des limitations de transfert de masse sur le grossissement des CCN pouvant avoir un impact sur le nombre de gouttelettes nuageuses créées (Chuang *et al.*, 1997). La description complète de la paramétrisation se trouve dans les travaux de Nenes et Seinfeld (2003).

Cette partie a permis de montrer que depuis une dizaine d'année, les paramétrisations de l'activation des CCN se sont multipliées tout en se complexifiant.

2.4 Résumé

L'activation des particules d'aérosols en gouttelettes nuageuses constitue le point central de notre étude. Il paraissait donc indispensable de dresser un état de l'art présentant les propriétés physiques et chimiques des aérosols. Les processus de formation des nuages dans l'atmosphère nécessite une bonne connaissance des caractéristiques physiques et chimiques des aérosols atmosphériques. La formation d'un nuage n'est possible qu'en présence de particules d'aérosols réduisant fortement la sursaturation nécessaire à la condensation. Les particules servent de support permettant de faciliter la condensation et donc la formation de gouttelettes nuageuses. Ces particules sont appelées "noyaux de condensation nuageuses" (CCN). La granulométrie des aérosols est représentée dans notre étude par la distribution lognormale. Des paramètres descriptifs tels que la solubilité, l'hygroscopicité ou encore la tension de surface permettant de bien caractériser l'aérosol ont été présentés et constituent des éléments essentiels pour aborder au mieux notre étude.

La théorie de Köhler (Köhler, 1936) qui prédit l'activation des particules d'aérosols a servi de base principale aux premières paramétrisations de l'activation des aérosols en gouttelettes nuageuses. Un bref historique des différentes paramétrisations d'activation des aérosols a alors été réalisé. Ceci nous a permis de bien cadrer le volet modélisation de notre étude.

Chapitre 3

Brouillard : Moyens d'observation et Mesures microphysiques

Sommaire

3.1	Introduction	28
3.2	La campagne de mesures ParisFOG	30
3.2.1	Le site d'observation du SIRTA	30
3.2.2	L'instrumentation de la campagne ParisFOG	31
3.2.3	Les données	38
3.3	La campagne de mesures ToulouseFOG	41
3.3.1	Le site d'observation de Météo France	41
3.3.2	L'instrumentation de la campagne ToulouseFOG	41
3.3.3	Les données	45
3.4	Description microphysique de la campagne ParisFOG	48
3.4.1	Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de particules d'aérosols de Janvier à Mars 2007	48
3.4.2	Variabilité journalière de la concentration en nombre de particules d'aérosols	52
3.4.3	Variabilité de la composition chimique des aérosols	53
3.4.4	Evolution de la concentration en nombre de grosses particules de Janvier à Mars 2007	55
3.4.5	Evolution du spectre granulométrique des grosses particules	60
3.5	Description microphysique de la campagne ToulouseFOG	64
3.5.1	Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de particules d'aérosols d'Octobre 2007 à Mars 2008	64
3.5.2	Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de grosses particules d'Octobre 2007 à Mars 2008	72
3.5.3	Evolution du spectre granulométrique des grosses particules	79
3.5.4	Relation entre particules d'aérosols, grosses particules et visibilité	86
3.6	Comportement de l'aérosol sur trois cas d'étude	94
3.6.1	Caractéristiques de l'aérosol avant les épisodes de brouillard	94
3.6.2	Caractéristiques de l'aérosol pendant et après les épisodes de brouillard	100

3.7 Apport des mesures obtenues par le Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100) et discrimination entre aérosols humides et gouttelettes nuageuses	105
3.7.1 Apport des mesures obtenues par le Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100)	105
3.7.2 Discrimination entre aérosols humides et gouttelettes nuageuses	107
3.8 Résumé	113

Le travail de recherche présenté dans ce manuscrit est basé essentiellement sur des épisodes de brouillard observés lors des campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG.

Dans un premier temps, la présentation des deux campagnes de mesures sera réalisée en décrivant les sites d'observation sur lesquels les mesures ont été effectuées et les différents instruments utilisés. Dans un second temps, nous présenterons un bilan des données recueillies.

Les données microphysiques (aérosols et gouttelettes nuageuses) obtenues lors des deux campagnes seront ensuite analysées. Ces données microphysiques permettent d'estimer la variabilité des aérosols sur deux sites de mesure.

3.1 Introduction

Depuis le début des années 1970, un certain nombre de programmes d'observation intensive du brouillard a été réalisé. Ils ont permis d'améliorer progressivement nos connaissances sur les processus complexes (turbulence, surface, radiatif, microphysique) intervenant dans la formation, le développement et la dissipation du brouillard. Le Tableau 3.1 répertorie les principaux programmes d'observations du brouillard.

L'originalité des campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG est le nombre d'évènements documentés, liée à un fonctionnement en mode routine pendant un hiver complet. Les campagnes de mesures ne se sont pas focalisées sur un aspect du brouillard, mais ont essayé de documenter de manière plus ou moins précise l'ensemble des processus microphysiques lié au brouillard, comme nous allons le voir dans la suite ce chapitre.

TABLE 3.1 – *Les principaux programmes d'observation sur le brouillard radiatif.*

Nom et lieu de la campagne	Publications	Date	Processus documentés			
			Turbulence	Surface	Radiatif	Gouttelettes Microphysique Aérosols
Valley Fog Elmira, New-York	Pilie et al., 1975a,b	Du 5 Août au 15 Septembre 1970	-	-	-	X
Cardington Grande-Bretagne	Roach et al., 1976	Entre 1971 et 1976	-	X	X	-
Grafenwöhrl Allemagne de l'Est	Pinnick et al., 1978	Février 1976	-	-	X	X
ASRC-SUNY Albany, New-York	Justio et Garland Lala 1980, 1983; Meyer et Garland Lala, 1989	Entre 1977 et 1981	X	X	-	-
FOG-82 Albany, New-York	Meyer et al., 1986	1982	X	X	X	X
Plateau de Valladolid Espagne	Monerris, 1989; Guedalia et al.,1989	1985	-	X	X	X
Dübendorf Suisse	Capel et al.,1991	De Septembre à Décembre 1986	-	-	-	X
Lille88 et Lille91 Carmin	Bergot, 1993	Hiver 1988 et Hiver 1991	-	X	X	X
California's San Joaquin Valley PO Valley Region Po, Italie	Collett et al.,1998 Ming et Russell,2004	Décembre 1995 et Janvier 1996 1998-1999	-	-	-	X
FRAM-C et FRAM-L Ontario (CARE) et Novia Scotia (Lumenburg)	Gultepe et al.,2006	Hiver 2005-2006 et Eté 2006	X	X	X	X
ParisFOG Palaiseau (Sirte)	Bergot et al.,2008	Novembre 2006 à Avril 2007	X	X	X	X
ToulouseFOG Toulouse (Météo-France)		Octobre 2007 à Mars 2008	X	X	X	X

3.2 La campagne de mesures ParisFOG

Au travers de la campagne de mesures ParisFOG, la communauté scientifique a impulsé une dynamique sur la thématique brouillard, en réunissant des scientifiques de différents instituts de recherche : le Centre d'Enseignement et Recherches en Environnement Atmosphérique (CEREA), l'Institut Pierre-Simon-Laplace (IPSL), le Laboratoire Régional des Ponts et Chaussée de Clermont-Ferrand (LRPC) et le Centre National de Recherches Météorologiques - Groupe d'étude de l'Atmosphère MÉtéorologique (CNRM-GAME). Des détails sur la campagne de mesures ParisFOG peuvent être trouvés dans Bergot *et al.* (2008).

Le programme de recherche ParisFOG s'est fixé comme objectifs :

- de mettre en place, de coordonner et de valoriser un ensemble d'observations permettant de documenter de manière simultanée l'ensemble des processus (turbulence, microphysique, radiatif) intervenant dans le cycle de vie du brouillard. Ceci a été possible grâce à la mutualisation de moyens d'observation des partenaires du projet et à l'intégration de ces moyens sur le Site instrumenté de recherche par télédétection atmosphérique (Sirta) à Palaiseau en région Parisienne (Haeffelin *et al.*, 2005) ;
- de construire une base de données accessible à tous et contenant l'intégralité des mesures réalisées au cours de l'expérience ;
- d'améliorer notre compréhension et notre capacité à modéliser numériquement le cycle de vie du brouillard et les phénomènes de petites échelles qui l'affectent. Les données issues de la campagne permettent d'aborder des problèmes fondamentaux et de définir de nouvelles paramétrisations physiques adaptées aux brouillards et nuages bas, qui serviront aux futurs modèles météorologiques.

3.2.1 Le site d'observation du SIRTA

Le site instrumenté du Sirta est situé sur le campus de l'Ecole Polytechnique de Palaiseau (48°71'N, 2°21'E), à 20 km au Sud de Paris. La phase d'observation s'est déroulée sur ce site et a duré 6 mois, de Novembre 2006 à Avril 2007. Le site se situe dans un environnement hétérogène à l'échelle locale (Figure 3.1). En effet, il se trouve sur un plateau de 10 km de long situé à environ 160 m au-dessus du niveau de la mer. Le plateau est un environnement semi-urbain composé de champs agricoles, de forêts, de bâtiments et de zones industrielles (Haeffelin *et al.*, 2005).

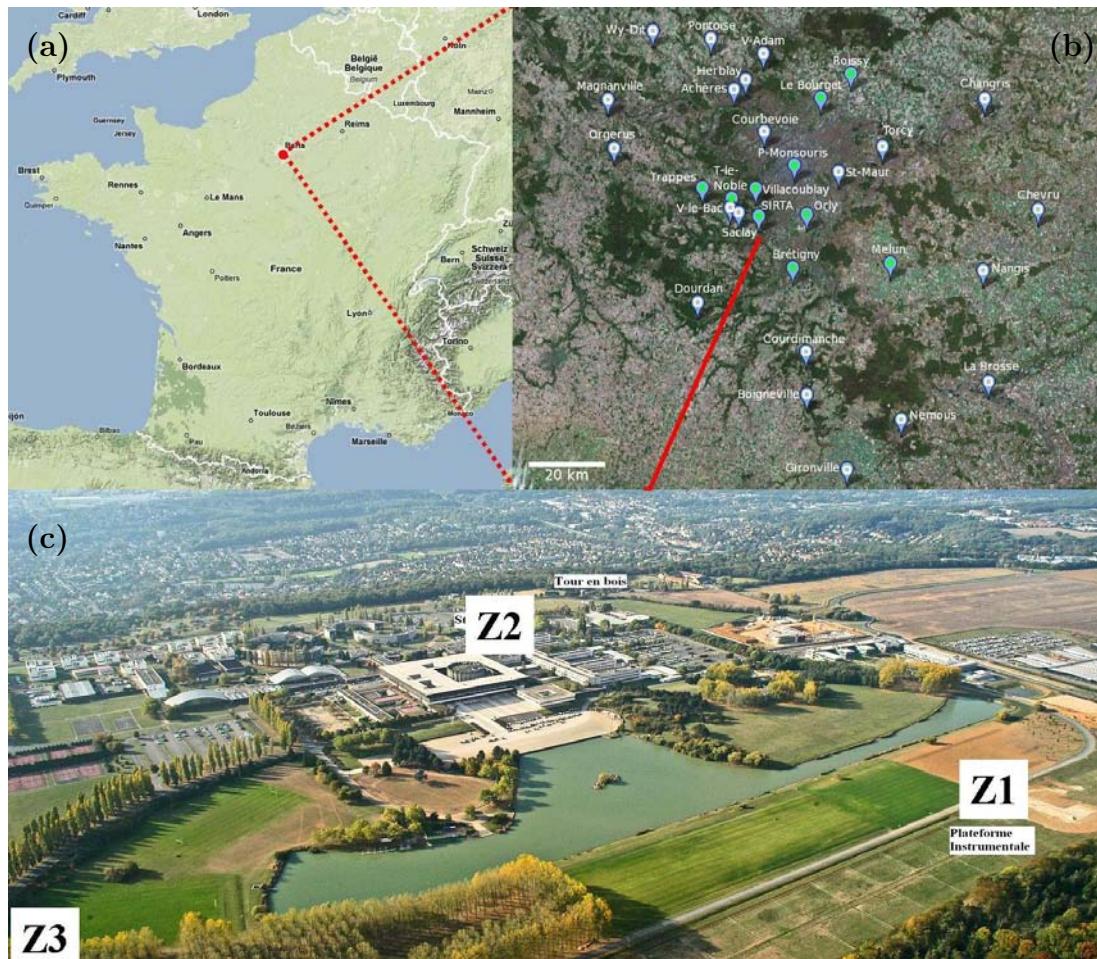


FIGURE 3.1 – (a) Localisation du dispositif expérimental de la campagne de mesures ParisFOG, (b) Réseau d'observation de Météo-France en région parisienne, (c) Zoom sur le site du Sirta.

3.2.2 L'instrumentation de la campagne ParisFOG

Afin de documenter l'ensemble des processus liés au cycle de vie du brouillard, un dispositif étendu, composé d'instruments de mesures de dix laboratoires de recherches, a été mis en place. Etant donné la difficulté à prévoir précisément l'apparition et la dissipation d'une couche de brouillard, la majeure partie des instruments a fonctionné de manière automatique et continue, pendant toute la période hivernale. Cependant, il a fallu planifier le déclenchement de Périodes d'Observations Intensives (POIs) correspondant à des situations pour lesquelles des moyens d'observations supplémentaires furent déployés. Le Tableau 3.2 présente les différents instruments déployés pendant la campagne, les paramètres mesurés, leur localisation ainsi que leur mode de fonctionnement.

TABLE 3.2 – *Instruments déployés sur le site du Sirta pendant la campagne ParisFOG.*

Paramètres	Localisation	Fonctionnement
COUCHE LIMITE DE SURFACE		
- Température et humidité à 1, 2, 5, 10 et 30 m (mât)	Z1 et Z3	Routine
- Anémomètres sonique (turbulence) à 10 et 30 m	Z1 et Z3	Routine
- Abri météo classique (pression, température, humidité, précipitation)	Z1 et Z2	Routine
SURFACE ET SOL		
- Température et contenu en eau à 0, -10, -20, -30 et -50 cm	Z1	Routine
- Bilan d'énergie en surface (station BOWEN)	Z1	Routine
RADIATIF		
- Flux radiatifs courte et longue longueur d'onde montant et descendant à 2 et 30 m	Z1	Routine
- Flux radiatifs courte et longue longueur d'onde descendant à 2 m	Z2	Routine
PROFIL ATMOSPHERIQUE		
- Radiosondages Météo-France 00 et 12 UTC	Trappes (78)	Routine
- Radiosondages ParisFog	Z1	POI
- Sondages sous ballon captif jusqu'à 150 m	Z1	POI
TELEDETECTION		
- Télémètre CT25K	Z1	Routine
- SODAR	Z1	Routine
- Radar UHF	Z1	Routine
- Radar RASTA 95 GHz	Z1	Routine
- Lidar retrodiffusion	Z2	POI
MICROPHYSIQUE		
- Visibilité météorologique	Z1	Routine
- Granulomètre gouttelettes PALLAS 0,4 - 40 μm	Z1	POI
- Aethalomètre (coef. d'absorption)	Z1	Routine
- Néphélosomètre (coef. de diffusion)	Z1	Routine
- Granulomètre aérosol SMPS 0,01 - 0,5 μm	Z1	Routine
- Granulomètre aérosol GRIMM 0,25 - 32 μm	Z1	Routine
- Prélèvements aérosols pour analyses chimiques	Z1	POI

Les instruments ont été déployés sur trois zones d'observation couvrant un domaine d'environ 4 km² (Figure 3.1). Un aperçu des instruments fonctionnant en routine est présenté sur la Figure 3.2. La zone Z1 rassemble la majorité des instruments à proximité d'hétérogénéités de petite échelle (lac, forêt et milieu bâti). La zone Z2 se caractérise par une forte concentration de bâtiments et dispose d'une plate-forme d'observation à 15 m au-dessus du sol, sur le toit d'un bâtiment. La zone Z3 est située sur une prairie, à l'extrémité du campus. Ce dispositif permet d'étudier les hétérogénéités à l'échelle de chaque site de mesures. Deux mâts instrumentés de 30 m en Z1 et Z3 recueillent des données sur la structure verticale de la couche limite de surface, ainsi que l'état de la turbulence à l'aide d'anémomètres soniques. Ces mesures sont complétées par des radiosondages effectués par la station météorologique de Trappes, située à environ une dizaine de kilomètres au nord-ouest du site, et en POI par des radiosondages classiques ou par le déploiement du ballon captif sur le site de la campagne de mesures.

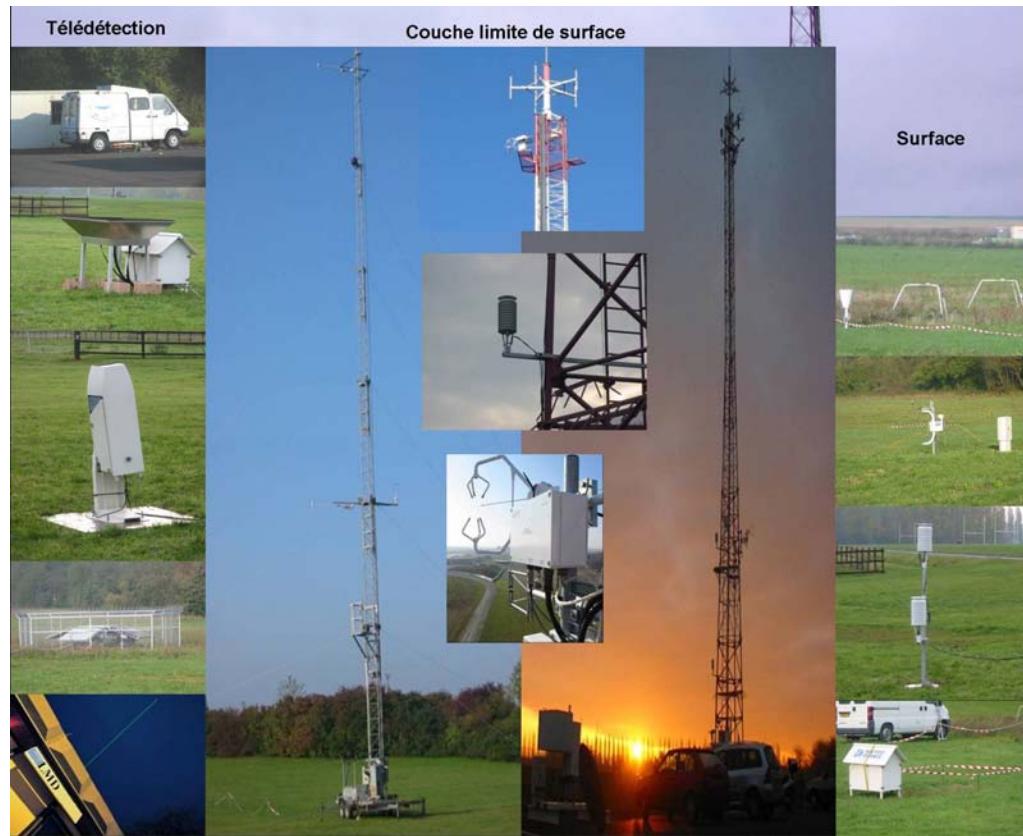


FIGURE 3.2 – *Instruments fonctionnant en routine lors de la campagne de mesures Paris-FOG. A gauche, les instruments de télédétection active avec de haut en bas : Radar Rasta, Sodar, télémètre, radar UHF et lidar. Au milieu, les deux mâts de 30 m (Z1 et Z3). A droite, les mesures en surface avec de haut en bas : les mesures radiatives en surface ainsi qu'un pluviomètre, la station de flux Bowen, les mesures de température et d'humidité à 1 et 2 m du sol et la fosse de mesures de température et de contenu en eau dans le sol.*

Les instruments microphysiques

Notre étude, qui se consacre essentiellement à l'étude microphysique du brouillard, nous conduit à présenter les instruments microphysiques de façon plus précise. Plusieurs instruments ont été installés pour documenter les propriétés microphysiques de l'aérosol et des gouttelettes de brouillard.

La granulométrie et la concentration en nombre de particules d'aérosols sèches sont obtenues à l'aide d'un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), composé d'un long analyseur à mobilité différentielle (en anglais Differential Mobility Aerosol, DMA, modèle TSI 3081) connecté à un compteur de particule par condensation (en anglais Condensation Particle Counter, CPC, modèle TSI 3025 High Flow) pour des diamètres compris entre 10 et 500 nm (Figure 3.3) et également à partir d'un compteur optique de particules (OPC pour l'acronyme anglais signifiant optical particle counter, modèle GRIMM 1.109) pour des diamètres compris entre 0.25 et 32 μm (Tableau 3.3). Ces mesures ont été réalisées en conditions sèches (c'est à dire à une humidité relative inférieure à 50 %). L'aérosol est échantillonné via une tête de prélèvement PM2.5 à une hauteur de 2 mètres avec une résolution temporelle de 10 minutes. Ces deux instruments aspirent l'air extérieur avec un débit de 0.5 l.min⁻¹ et 1.2 l.min⁻¹ pour le DMA et l'OPC, respectivement. Ces instruments ont été calibrés avant la campagne par des concentrations connues d'aérosols de sulfate d'ammonium mono-dispersés et de latex polystyrènes (PSL).

TABLE 3.3 – *Instruments microphysiques sur le site du Sirta pendant la campagne de mesures ParisFOG.*

Nom des instruments microphysiques	Mesures	Fréquence d'échantillonnage
SMPS (aérosols)	10 nm - 0.5 μm	10 minutes
OPC GRIMM (aérosols)	0.25 μm - 32 μm	1 minutes
OPC (Pallas Welas 2000)	0.4 μm - 40 μm	5 minutes
(Gouttelettes + aérosols humides)		5 minutes
Aethalomètre	Coefficient d'absorption des aérosols	1 minutes
Néphéloscope	Coefficient de diffusion des aérosols	1 minutes

La granulométrie et la concentration en nombre de particules (aérosols humides et gouttelettes) de brouillard sont mesurées par un autre OPC (Modèle Pallas Welas 2000) pour des diamètres compris entre 0.4 et 40 μm (Tableau 3.3). Le capteur contenant le volume de détection optique installé à une hauteur de 2 m est connecté à l'analyseur via une fibre optique. Cet instrument a été régulièrement calibré tout au long de la phase d'observation en utilisant des aérosols de PSL. La courbe de calibration est ensuite corrigée pour prendre en compte l'indice de réfraction de l'eau. L'échantillonnage est réalisé toutes les 5 minutes. Cependant, il faut noter que ce granulomètre n'a mesuré aucune gouttelette ayant une taille supérieure à 10 μm pour l'ensemble des POIs réalisées au cours de la campagne. De plus, compte tenu que l'OPC mesure dans des tailles inférieures

à $1 \mu\text{m}$, il faut garder à l'esprit dans la suite de l'étude que cet instrument peut mesurer à la fois des gouttelettes nuageuses et des aérosols humides et qu'il ne fait pas la distinction entre les deux.

Dans la suite, nous qualifions de particules d'aérosols toutes les particules mesurées par le SMPS de diamètre inférieur à $0.5 \mu\text{m}$ et de grosses particules toutes les particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) de diamètre supérieur à $0.4 \mu\text{m}$ représentant à la fois des aérosols humides et des gouttelettes nuageuses.

Pour obtenir la composition chimique des aérosols atmosphériques, des filtres ont été installés dans les systèmes de prélèvement dès le matin afin d'échantillonner les particules pendant une dizaine d'heures avant la formation du brouillard (Figure 3.3). De nouveaux filtres ont été mis en place après l'apparition du brouillard. Enfin, les filtres ont été changés à nouveau après la dissipation de la couche de brouillard pour un prélèvement d'une durée de dix heures. Le but est de voir l'impact de la composition chimique de l'aérosol sur une couche de brouillard et inversement. La fraction inorganique (NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- , NH_4^+ , Ca^{2+} , K^+ , Na^+ and Mg^{2+}) a été mesurée par chromatographie ionique. Une méthode thermique a été appliquée pour la séparation et l'analyse du carbone suie (BC) et du carbone organique (OC).

Malheureusement, la combinaison d'un printemps peu favorable aux brouillards denses, ainsi que des problèmes techniques (surtensions sur le réseau électrique du site du Sirta en début d'expérience...) et instrumentaux (une tempête au mois de décembre 2006 a endommagé certains instruments, problème d'étanchéité sur certains granulomètres...) n'ont permis de documenter de manière optimale le volet microphysique que pour quatre événements de brouillard.



FIGURE 3.3 – *Instruments microphysiques lors de la campagne de mesures ParisFOG. A haut à gauche, l'armoire contenant le SMPS et l'OPC (Pallas welas 2000). A haut à droite, les têtes de prélèvement sur filtres. En bas à gauche, des exemples de filtres pour le carbone organique et le black carbon. En bas à droite, les têtes de prélèvement des granulomètres OPC (Pallas welas 2000).*

Les instruments supplémentaires lors des Périodes d'Observation Intensives

La planification de la campagne est réalisée par deux responsables. Le responsable localisé à Toulouse consulte les prévisions météorologiques des modèles opérationnels français et européens et discute de la situation météorologique avec les prévisionnistes du CDM91 (Centre départemental Météorologique 91 de Météo-France). Il dispose également de plusieurs outils expérimentaux testés pendant la période de l'expérience. Le deuxième responsable situé sur le site du Sirta vérifie l'état des installations et s'assure du bon fonctionnement des instruments.

Lorsque la situation devenait favorable à la formation du brouillard et que l'état des instruments était satisfaisant, les deux responsables prenaient ou non la décision de passer en période d'alerte. Cette décision était prise 48h avant le début de l'épisode de façon à permettre la planification de la POI. Deux briefings quotidiens sont alors réalisés permettant ainsi d'affiner les heures des radiosondages, la période de déploiement du ballon

captif (avec l'autorisation du centre de contrôle aérien d'Athis-Mons) et la planification des prélèvements chimiques.

Une fois la POI enclenchée, cinq opérations sont à réaliser comme illustré par la Figure 3.4 :

- l'activation des mesures chimiques des aérosols atmosphériques ;
- la mise en place du ballon captif ;
- l'activation des mesures granulométriques du brouillard OPC (Pallas welas 2000) ;
- la planification des radiosondages ;
- l'ultime vérification du bon fonctionnement des instruments automatiques.

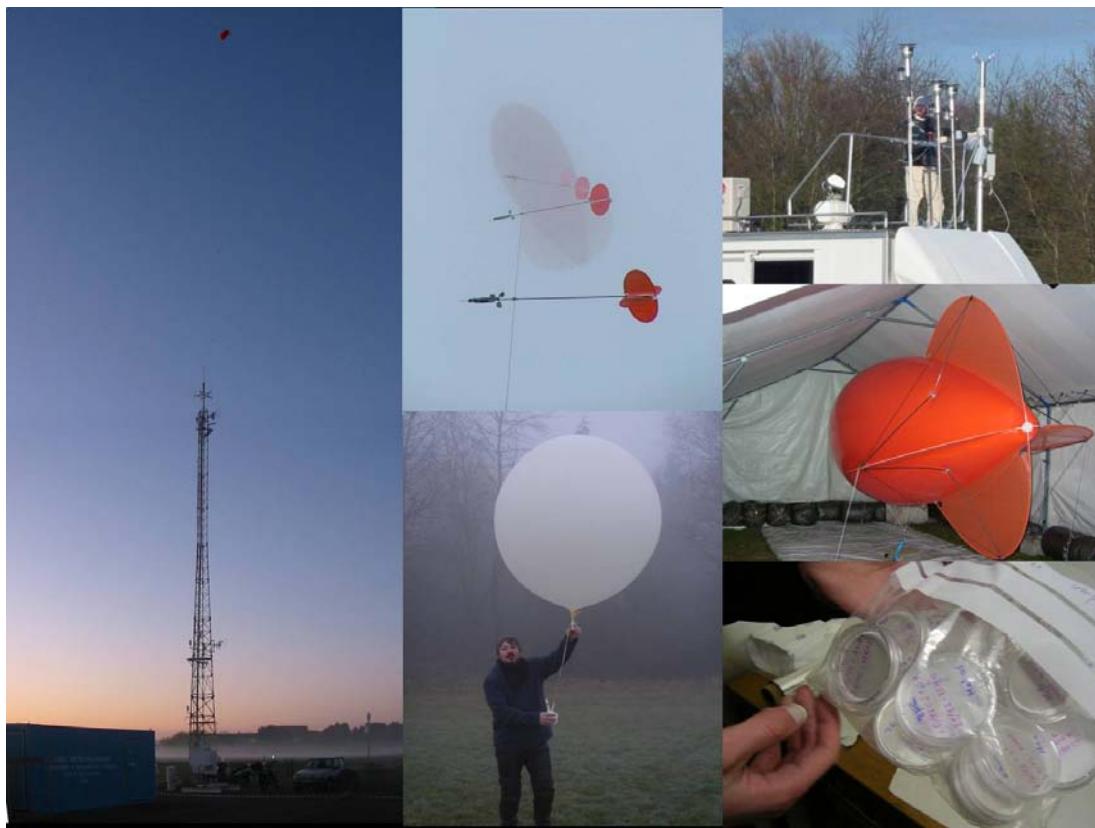


FIGURE 3.4 – *Instruments déployés lors des périodes d'observations intensives de la campagne de mesures ParisFOG. A gauche, le ballon captif au-dessus du mât de 30m (Z1). Au milieu : une vue du ballon captif dans le brouillard et un lâcher de radiosondage au petit matin après une nuit d'observation intensive. A droite : installation de filtres sur les têtes de prélèvement, le ballon captif avant son déploiement et des exemples de filtres de prélèvement.*

3.2.3 Les données

Les données recueillies par l'ensemble des instruments décrits précédemment sont stockées au sein d'une banque de données.

Cet hiver 2006-2007 sur le site du Sirta a été en moyenne 1,7°C plus chaud que la normale avec environ 25 % de situations zonales perturbées en plus. Cependant, la campagne ParisFOG a permis de documenter plus de 160 heures de brouillard (visibilité inférieure à 1 km) et plus de 518 heures de brume (visibilité comprise entre 1 et 5 km). Comme le montre la Figure 3.5, les périodes de brouillard les plus longues ont eu lieu au mois de novembre (plus de 57 heures de brouillard observé) et au mois de décembre (plus de 47 heures de brouillard observé). En janvier et février, les épisodes ont été moins longs et souvent moins denses, avec une prédominance de phénomènes de brume et de bancs de brouillard très localisés. Cependant, un épisode de brouillard très dense s'est produit au cours de la nuit du 18 au 19 février et a fait l'objet d'une période d'observation intensive. Celle-ci constitue le cœur de ce travail de recherche et sera analysée dans le chapitre 5.

Une classification des évènements documentés a été effectuée par R. Tardif selon la méthode décrite par Tardif et Rasmussen (2007) et est présentée dans le Tableau 3.4. Cette méthode consiste à classer automatiquement les évènements de brouillard en fonction de l'évolution des observations réalisées. Cette méthode appliquée aux données de ParisFOG a permis d'identifier 36 évènements de brouillard. Le brouillard radiatif est majoritaire et représente 75 heures pour 13 évènements. Le second type de brouillard concerne les affaissements de stratus jusqu'au sol, réduisant la visibilité en-dessous de 1000 m (65 heures environ). Ces cas d'affaissement de stratus se sont produits principalement pendant la période de Noël. Les autres types de brouillard (par advection et par évaporation) ont été marginaux lors de la campagne.

Date (année/mois/jour)	Heure de Formation (UTC)	Durée (min)	Visibilité Minimale (en m)	Type de Brouillard
OCTOBRE				
2006/10/27	01 h 50	370	90	Stratus
2006/10/28	01 h 00	440	90	Radiatif
2006/10/29	17 h 40	50	170	Radiatif
NOVEMBRE				
2006/11/03	21 h 50	70	120	Radiatif
+2006/11/03	23 h 30	70	140	Radiatif
+2006/11/04	01 h 50	140	210	Divers
2006/11/04	22 h 30	760	50	Radiatif
2006/11/05	17 h 50	670	60	Radiatif
2006/11/06	17 h 30	80	180	Stratus
2006/11/07	18 h 10	240	90	Stratus
+2006/11/08	07 h 00	40	320	Stratus
2006/11/29	20 h 20	850	70	Radiatif
2006/11/30	12 h 20	510	110	Stratus
DECEMBRE				
2006/12/03	00 h 50	40	580	Stratus
2006/12/14	18 h 00	230	90	Radiatif
+2006/12/15	01 h 30	30	390	Radiatif
+2006/12/15	02 h 30	450	90	Stratus
2006/12/16	21 h 50	140	70	Radiatif
2006/12/18	02 h 50	180	200	Stratus
+2006/12/18	07 h 30	280	150	Stratus
2006/12/24	04 h 10	80	230	Stratus
2006/12/25	18 h 50	500	200	Stratus
2006/12/28	01 h 50	90	710	Stratus
2006/12/28	16 h 00	730	150	Stratus
+2006/12/29	05 h 00	120	710	Stratus
JANVIER				
2007/01/07	07 h 10	50	450	Advectif
2007/01/27	07 h 50	220	140	Stratus
2007/01/27	23 h 30	260	70	Divers (POI 10)
FEVRIER				
2007/02/02	10 h 00	230	880	Divers
2007/02/08	02 h 20	120	350	Bruine
2007/02/18	22 h 40	630	70	Radiatif (POI 13)
MARS				
2007/03/04	06 h 30	40	150	Radiatif
2007/03/08	07 h 00	90	140	Advectif (POI 14)
2007/03/13	23 h 10	510	100	Radiatif (POI 15)
2007/03/16	07 h 10	160	70	Evaporation
2007/03/25	03 h 10	200	580	Divers

TABLE 3.4 – Chronologie des évènements documentés au cours de la campagne de mesures ParisFOG : RADIATIF = brouillard radiatif, STRATUS = affaissement de stratus, ADVECTIF = brouillard d'advection, EVAPORATION = brouillard d'évaporation, BRUINE = brouillard précipitant, DIVERS = autres épisodes de brouillard non classés.

La répartition des brumes et brouillards au cours de la campagne ainsi que les différentes périodes d'observations intensives sont résumées sur la Figure 3.5. Quinze POI ont été réalisées au cours de l'hiver 2006-2007. Elles ont permis d'étudier des situations très variées allant de l'épisode de brouillard dense généralisé (POI 1, 2, 3, 8, 13) aux bancs de brouillards locaux (POI 6, 14, 15). Des conditions propices à la formation d'un brouillard, pour lesquelles un brouillard dense était prévu mais n'est pas apparu sur le site, même si la visibilité a été réduite à moins de 5 km, ont également été observées (POI 4, 5, 7, 9, 10, 11, 12). Pendant ces épisodes, des brouillards denses ont souvent été signalés en région parisienne, mais la visibilité n'a jamais été durablement réduite sur le site de ParisFOG.

Lors des quinze périodes d'observations intensives, 57 radiosondages ont été effectués avec succès. Le ballon captif a été déployé huit fois pour une durée totale d'environ 80 heures et 35 prélèvements chimiques ont été réalisés.

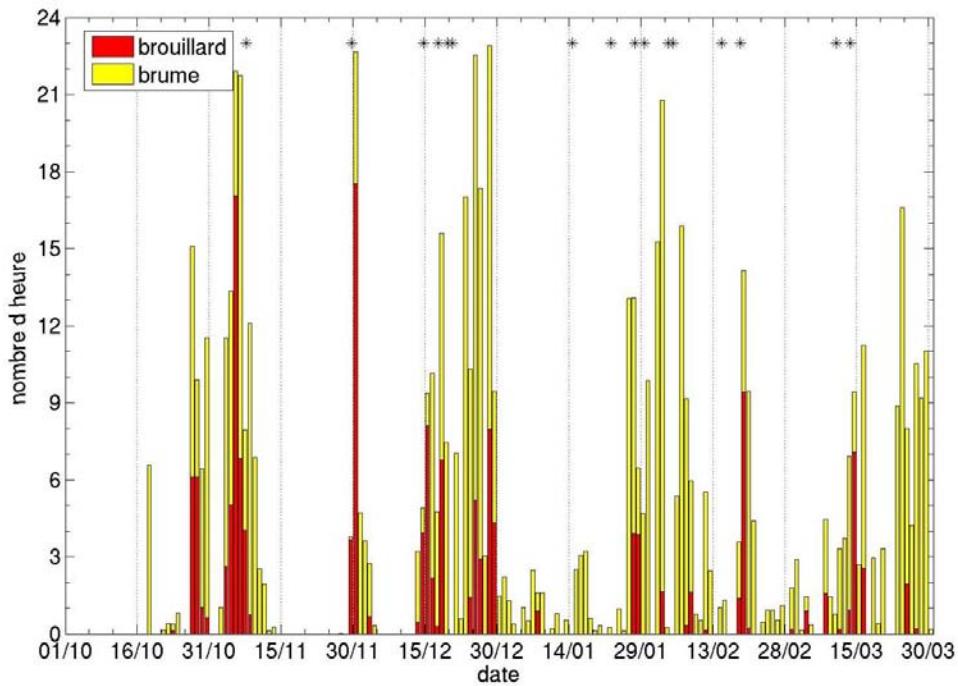


FIGURE 3.5 – *Nombre d'heures de brouillard et de brume documentées pendant la campagne ParisFOG. Les étoiles situées en haut du graphique correspondent aux périodes d'observations intensives.*

Durant la campagne ParisFOG, les mesures microphysiques n'ont pu être totalement effectuées. En effet, tous les instruments microphysiques n'ont fonctionné correctement que lors de quatre POIs : la POI 10 réalisée lors de la nuit du 27 au 28 Janvier 2007, la POI 13 dans la nuit du 18 au 19 Février 2007, la POI 14 dans la matinée du 08 Mars 2007 et la POI 15 dans la nuit 13 au 14 Mars 2007. Une deuxième campagne de mesures a donc été réalisée sur le site de Météo-France à Toulouse. Cette campagne ToulouseFOG a permis ainsi de compléter les données microphysiques obtenues lors de la campagne ParisFOG.

3.3 La campagne de mesures ToulouseFOG

La réalisation de la campagne de mesures ToulouseFOG avait pour objectif essentiel de compléter les données microphysiques obtenues lors de la campagne ParisFOG.

3.3.1 Le site d'observation de Météo France

La campagne de mesures ToulouseFOG s'est déroulée sur le site instrumenté de Météo-France situé à l'Ouest de la ville de Toulouse. Elle a duré 6 mois, d'Octobre 2007 à Mars 2008. Le site expérimental est présenté sur la Figure 3.6. Il est constitué essentiellement de prairies, de bâtiments et se situe à proximité d'une rocade 2 X 2 voies.

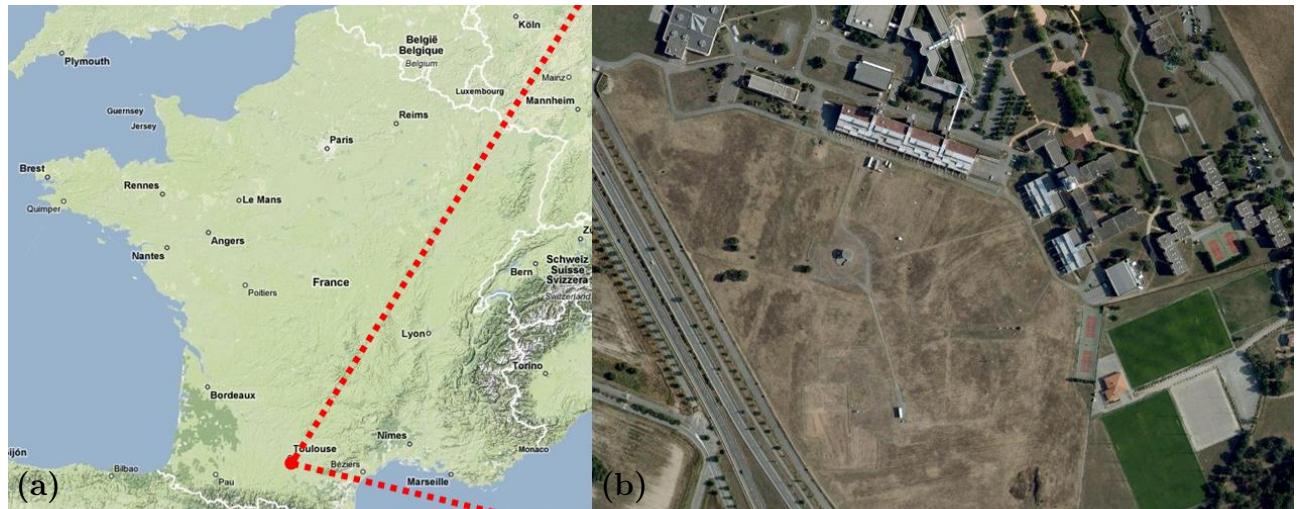


FIGURE 3.6 – (a) Localisation du dispositif expérimental de la campagne de mesures ToulouseFOG, (b) Zoom sur le site de Météo-France à Toulouse.

3.3.2 L'instrumentation de la campagne ToulouseFOG

Comme pour la campagne ParisFOG, un dispositif a été mis en place pour documenter l'ensemble des processus liés au cycle de vie du brouillard sur une longue période et en mode routine. Le Tableau 3.5 présente les différents instruments déployés ainsi que leur mode de fonctionnement. Contrairement à ParisFOG, les instruments ont été déployés sur une seule zone d'observation, correspondant à la zone expérimentale du CNRM. Le ballon captif n'a pu être mis en place à cause de contraintes liées au contrôle aérien. Des radiosondages ont cependant été réalisés en mode POI pour documenter la structure verticale de l'atmosphère. Aucune analyse chimique n'a été effectuée au cours de cette campagne. Un aperçu des instruments fonctionnant en routine est donné sur la Figure 3.7.

TABLE 3.5 – *Instruments déployés sur le site du CNRM pendant la campagne Toulouse-FOG.*

Paramètres	Fonctionnement
COUCHE LIMITE DE SURFACE	
- Température et humidité à 50 cm, 1, 2, 5, 10 (mât) et 30 m (sommet de la tour d'observation du CNRM)	Routine
- Anémomètres sonique (turbulence) à 5 m	Routine
- Abri météo classique (pression à 2 m, température à 2 m, humidité, précipitation, vent)	Routine
SURFACE ET SOL	
- Température et contenu en eau à 0, -10, -20, -30 et -50 cm	Routine
- Bilan d'énergie en surface par Eddy correlation	Routine
RADIATIF	
- Flux radiatifs courte et longue longueur d'onde descendant à 2 et 30 m	Routine
PROFIL ATMOSPHERIQUE	
- Radiosondages ToulouseFog	POI
TELEDETECTION	
- Télémètre CT25K et vaissala	Routine
- SODAR	Routine
- Radar UHF	Routine
MICROPHYSIQUE	
- Visibilité météorologique	Routine
- 2 granulomètres gouttelettes PALLAS 0,4 - 40 μm	Routine
- 1 granulomètre gouttelettes FSSP 2 - 40 μm	POI
- Aethalomètre (coef. d'absorption)	Routine
- Néphélomètre (coef. de diffusion)	Routine
- Granulomètre aérosol SMPS 0,01 - 0,5 μm	Routine
- Granulomètre aérosol GRIMM 0,25 - 32 μm	Routine

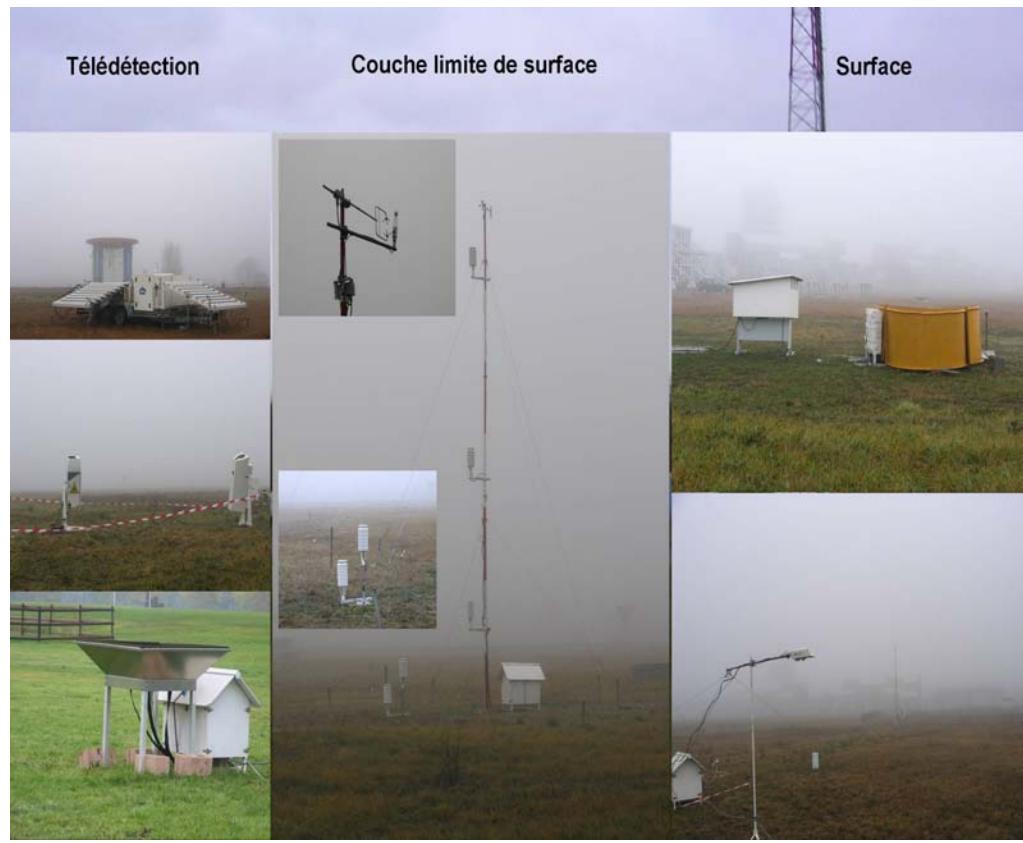


FIGURE 3.7 – *Instruments fonctionnant en routine lors de la campagne de mesures ToulouseFOG. A gauche, les instruments de télédétection active avec de haut en bas : Radar UHF, télémètres et sodar. Au milieu, le mât de 10 m. A droite, les mesures en surface avec de haut en bas : la fosse de mesures de température et de contenu en eau dans le sol et les mesures radiatifs.*

Les instruments micromorphologiques

Comme pour la campagne ParisFOG, plusieurs instruments ont été installés pour documenter les propriétés micromorphologiques de l'aérosol et des gouttelettes de brouillard. Les instruments micromorphologiques sont identiques à ceux déployés lors de la campagne ParisFOG. Pour la granulométrie des gouttelettes, deux OPC (Modèle Pallas Welas 2000) ont fonctionné en routine pendant la campagne. Dans un premier temps, ces deux instruments ont fonctionné en mode inter-comparaison afin de valider les mesures puis ont fonctionné à deux niveaux différents (à 2 et 15 mètres). De plus, un FSSP 100 (Forward Scattering Spectrometer Probe) qui mesure le spectre de particules entre 2 et 50 μm a été déployé lors de 2 événements : dans la nuit du 28-29 Janvier 2008 et dans la matinée du 07 Février 2008. Le Tableau 3.6 répertorie les instruments micromorphologiques utilisés ainsi que leur caractéristiques de fonctionnement. La Figure 3.8 illustre le dispositif expérimental des instruments micromorphologiques.

TABLE 3.6 – *Instruments microphysiques sur le site du CNRM pendant la campagne ToulouseFOG.*

Nom des instruments microphysiques	Mesures	Fréquence d'échantillonnage
SMPS (aérosols)	10 nm - 0.5 μm	10 minutes
GRIMM (aérosols)	0.25 μm - 32 μm	1 minutes
2 PALLAS Welas	0.4 μm - 40 μm	5 minutes
(Gouttelettes + aérosols humides)		5 minutes
FSSP (Gouttelettes)	2 μm - 50 μm	5 minutes
Aethalomètre	Coefficient d'absorption des aérosols	1 minutes
Néphélomètre	Coefficient de diffusion des aérosols	1 minutes

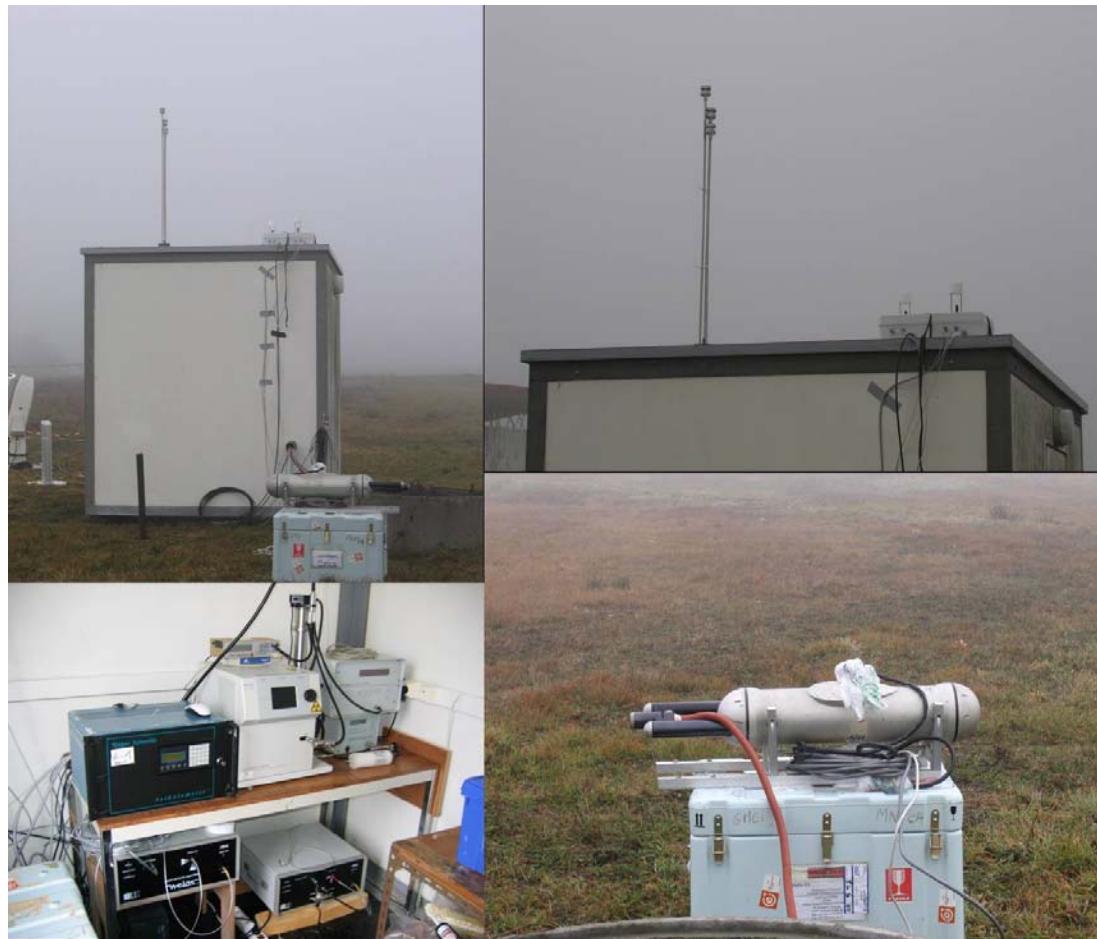


FIGURE 3.8 – *Instruments microphysiques lors de la campagne de mesures ToulouseFOG. En haut à gauche, l'abri contenant l'ensemble des instruments microphysique. En haut à droite, les têtes de prélèvements situé sur le toit de l'abri. En bas à gauche, intérieur de l'abri. En bas à droite, zoom sur l'instrument FSSP.*

3.3.3 Les données

Plus de 230 heures de brouillard et plus de 316 heures de brume ont pu être documentées pendant la campagne ToulouseFOG. Les épisodes de brouillard ont été plus nombreux au mois de décembre (avec 18 événements) et au mois de janvier (avec 14 événements). En novembre et février, les épisodes ont été moins nombreux avec une prédominance de brumes (Figures 3.9 et 3.10).

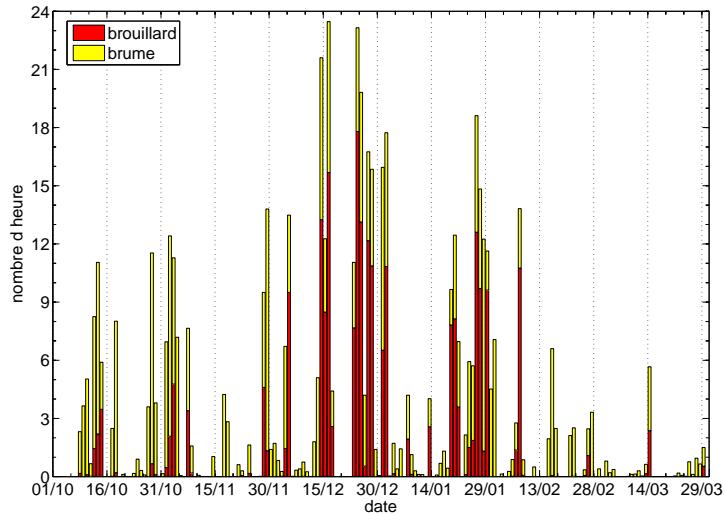


FIGURE 3.9 – Répartition mensuelle du nombre d'heures de brouillard et de brume documentées pendant la campagne de mesures ToulouseFOG.

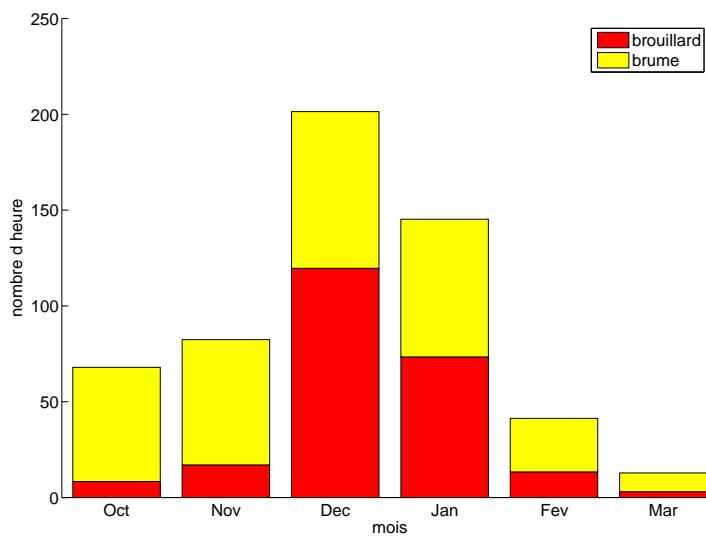


FIGURE 3.10 – Nombre d'heures de brouillard et de brume documentées pendant la campagne de mesures ToulouseFOG.

Les périodes de brouillard les plus longues ont eu lieu au mois de décembre (plus de 131 heures de brouillard observé) et au mois de janvier (plus de 63 heures de brouillard observé) (Figure 3.10). Pendant les autres mois, les épisodes ont été moins longs et moins denses.

Comme pour la campagne de mesures ParisFOG, une classification des événements selon la méthode décrite par Tardif et Rasmussen (2007) est présentée dans le Tableau 3.7. Quarante-deux événements de brouillard ont pu être documentés. Le type radiatif est majoritaire avec plus de 133 heures (réparties sur 25 événements). Le second type de brouillard concerne les cas d'affaissement de stratus avec plus de 86 heures documentés (sur 12 événements) et qui se sont produits essentiellement pendant le mois de décembre. Les autres types de brouillard sont largement minoritaires.

Date (année/mois/jour)	Heure de Formation (UTC)	Durée (min)	Visibilité Minimale (en m)	Type de Brouillard
NOVEMBRE				
2007/11/02	20 h 40	280	370	Radiatif
2007/11/03	02 h 30	250	170	Stratus
2007/11/07	03 h 50	30	370	Radiatif
+2007/11/07	05 h 20	150	120	Radiatif
2007/11/28	19 h 10	270	160	Stratus
+2007/11/29	06 h 30	50	140	Radiatif
DECEMBRE				
2007/12/04	18 h 50	40	220	Radiatif
+2007/12/04	22 h 10	30	190	Radiatif
2007/12/05	04 h 20	440	130	Radiatif
+2007/12/05	16 h 10	100	230	Stratus
2007/12/14	05 h 50	380	100	Stratus
+2007/12/14	17 h 30	1030	110	Stratus
2007/12/16	07 h 50	1180	100	Radiatif
2007/12/23	07 h 40	120	220	Stratus
2007/12/23	18 h 30	1130	70	Radiatif
2007/12/24	20 h 20	960	160	Stratus
2007/12/25	21 h 20	40	310	Divers
2007/12/26	23 h 50	280	320	Stratus
+2007/12/27	06 h 00	310	350	Stratus
2007/12/27	21 h 00	720	280	Stratus
2007/12/28	19 h 50	230	140	Radiatif
2007/12/31	05 h 00	130	170	Radiatif
+2007/12/31	08 h 00	190	220	Stratus
2007/12/31	23 h 20	580	280	Stratus
JANVIER				
2008/01/01	19 h 30	180	70	Radiatif
2008/01/07	19 h 50	110	150	Divers
2008/01/13	05 h 50	120	220	Advectif
2008/01/19	03 h 50	60	180	Radiatif
+2008/01/19	05 h 40	130	140	Radiatif
2008/01/19	20 h 00	590	100	Radiatif
2008/01/20	06 h 50	40	680	Radiatif
2008/01/20	22 h 20	340	120	Radiatif
2008/01/25	22 h 00	770	130	Radiatif
2008/01/26	20 h 40	710	120	Radiatif
2008/01/27	09 h 30	40	320	Advectif
2008/01/27	23 h 40	80	350	Radiatif
2008/01/28	02 h 00	50	340	Radiatif
2008/01/29	00 h 00	590	160	Radiatif
FEVRIER				
2008/02/06	22 h 10	780	110	Radiatif
2008/02/26	05 h 20	30	230	Divers
MARS				
2008/03/14	02 h 30	30	270	Radiatif
+2008/03/14	03 h 40	120	230	Radiatif

TABLE 3.7 – Chronologie des évènements documentés au cours de la campagne de mesures ToulouseFOG.

3.4 Description microphysique de la campagne Paris-FOG

Comme indiqué précédemment, en raison de problèmes survenus en début de campagne, seules les données microphysiques obtenues durant les trois mois de Janvier à Mars 2007 seront décrits. Les évolutions de la concentration en nombre de particules d'aérosols de diamètre inférieur à $0.5 \mu\text{m}$ mesurées par le SMPS et de particules de diamètre supérieur à $0.4 \mu\text{m}$ mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) seront illustrées dans cette description. Nous rappelons que les particules mesurées par l'OPC sont qualifiées de grosses particules dans la suite de la description.

3.4.1 Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de particules d'aérosols de Janvier à Mars 2007

Durant la campagne de mesures ParisFOG, les propriétés des aérosols (taille, concentration et composition chimique) ont été mesurées sur le site du Sirta pendant trois mois de Janvier à Mars 2007. Les propriétés granulométriques sont mesurées par un SMPS qui mesurent des tailles comprises entre 10 nm et 500 nm (Tableau 3.3).

Les Figures 3.11 à 3.13 présentent l'évolution mensuelle de la visibilité horizontale (a), l'évolution de la concentration totale en nombre de particules d'aérosols (b) et l'évolution de la concentration en nombre de particules d'aérosols en fonction du diamètre (c). La concentration moyenne en nombre de particules mesurée par le SMPS sur les trois mois d'étude représente $7\,600 \text{ cm}^{-3}$.

L'évolution de la visibilité permet de mettre en évidence 11 épisodes de brouillard lors de la période d'étude de Janvier à Mars 2007 (Tableau 3.4). Huit POIs ont été réalisées au cours de ces 3 mois (zones grisées sur les Figures 3.11 à 3.13). La plupart des événements de brouillard se sont formés en cours de nuit. Les épisodes de brume (visibilité comprise entre 5000 et 1000 mètres) ont été beaucoup plus nombreux que les épisodes de brouillard surtout pendant les mois de Janvier et Février 2007 et ont été en général d'une durée très courte (inférieure à quelques heures pour la plupart). Au cours de ces épisodes, la visibilité horizontale a subi de fortes variations. Sur ces trois mois, la concentration totale en nombre de particules de tailles inférieures à 500 nm a varié de 100 à $50\,000 \text{ cm}^{-3}$. Le mois de Mars a enregistré moins de particules que les mois de Janvier et Février. Les épisodes de brouillard se sont formés généralement dans une atmosphère où la concentration totale en particules d'aérosols fut supérieure à la concentration moyenne (c'est à dire supérieure à $7\,600 \text{ cm}^{-3}$).

Nous observons également, au moment où la visibilité devient inférieure à 1000 m pour les épisodes de brouillard, que la concentration totale en nombre de particules d'aérosols subit une forte diminution. Par exemple, la concentration totale diminue de 20 000 à environ $9000 \text{ part.cm}^{-3}$ pour les périodes du 18-19 Février 2007 et du 13-14 Mars 2007. Cette observation est également valable pour les épisodes de brume comme par exemple l'épisode du 05-06 Février 2007 où la concentration totale diminue de 30 000 à $9000 \text{ part.cm}^{-3}$. Il semble donc y avoir une interaction significative entre le brouillard (ou brume) et la concentration totale en nombre de particules d'aérosols.

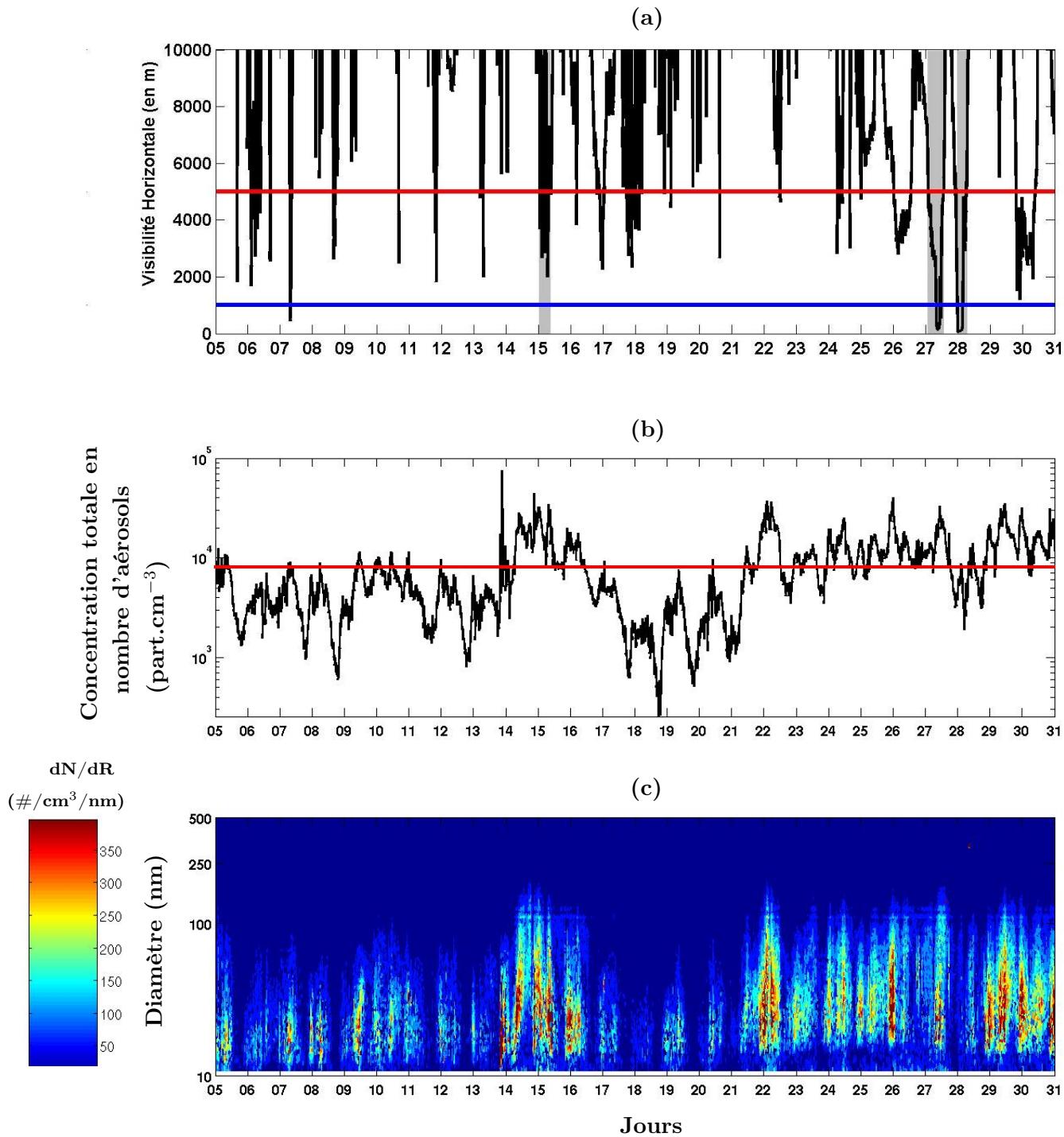


FIGURE 3.11 – ParisFOG, mois de Janvier 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale, le trait rouge matérialise la visibilité horizontale de 5000 mètres en-dessous de laquelle on est en situation de brume. Le trait bleu représente la limite météorologique de 1000 mètres en-dessous de laquelle les événements de brouillard sont identifiés. Les zones grisées verticales représentent les dates des POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre d'aérosols mesurée par le SMPS, le trait rouge représente la concentration moyenne en aérosols. (c) Evolution de la concentration en nombre d'aérosols mesurée par le SMPS en fonction du diamètre.

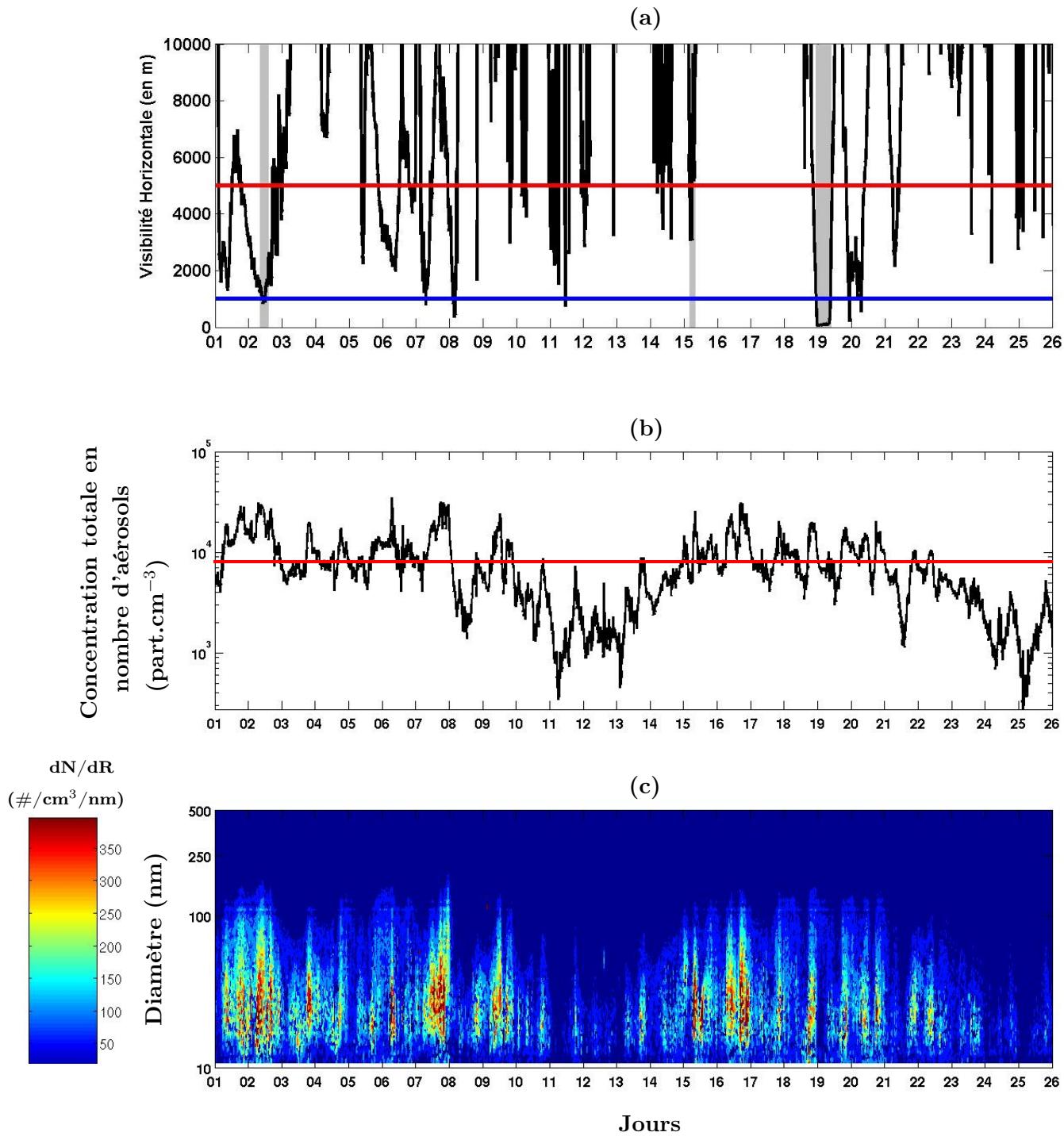
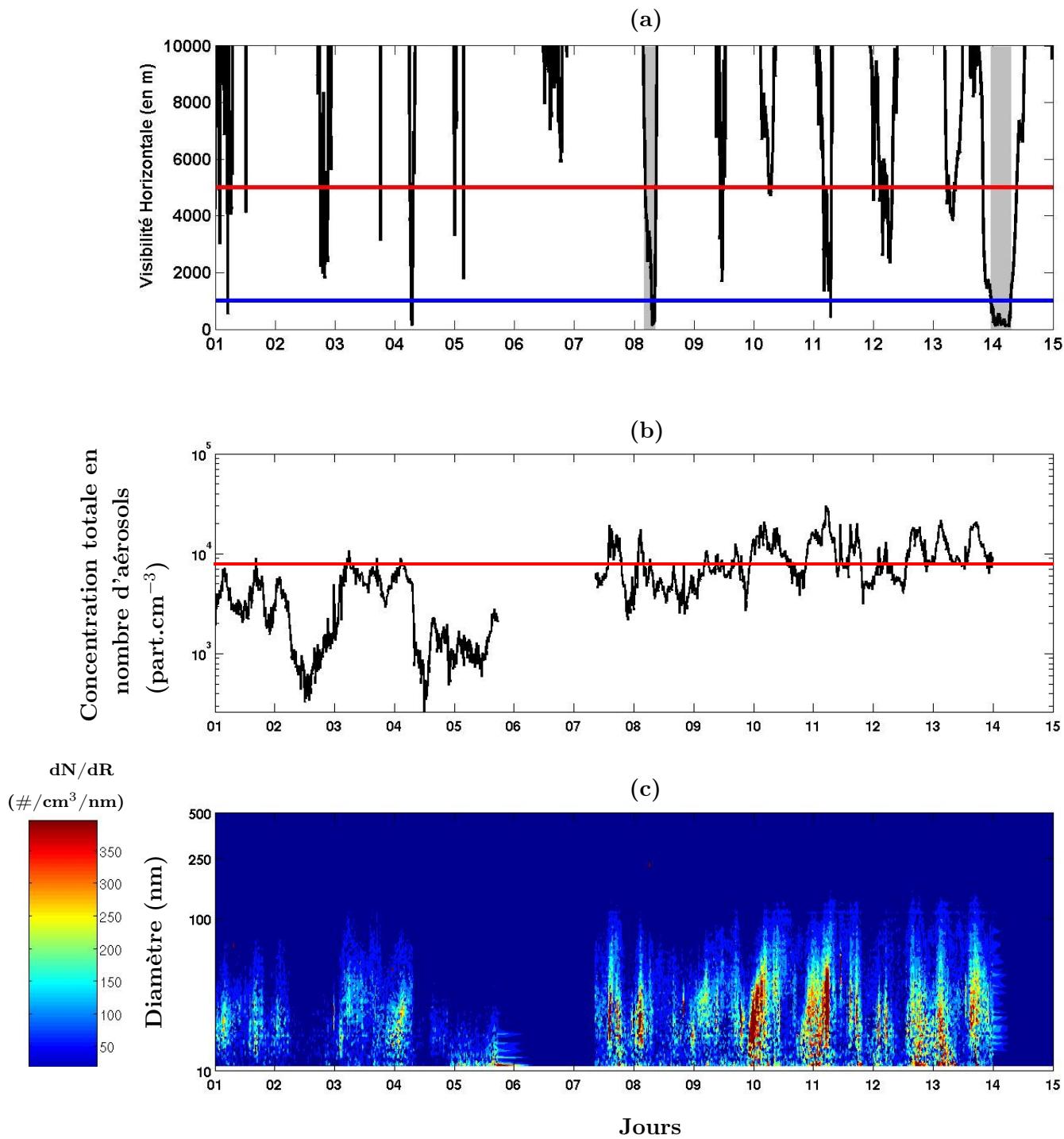


FIGURE 3.12 – *ParisFOG*, mois de Février 2007 : *idem Figure 3.11*.

FIGURE 3.13 – ParisFOG, mois de Mars 2007 : *idem Figure 3.11.*

Les Figures 3.11c, 3.12c et 3.13c montrent également que la grande majorité des aérosols sont constitués de particules submicroniques ultra-fines (c'est à dire ayant une taille inférieure à 100 nm) tout au long de la campagne de mesures. A l'intérieur de zones urbaines et péri-urbaines représentatives de notre zone d'étude, les particules ultra-fines inférieures à 100 nm proviennent majoritairement de sources locales en étant soit directement émises par les véhicules soit formées par nucléation (principalement à partir de l'oxydation du dioxyde de soufre) suivi d'un grossissement par condensation, à partir des produits de composés organiques volatils (COV) (cf. Chapitre 2.1.2).

Pour chaque épisode de brouillard, la concentration en nombre de particules ayant une taille supérieure à 100 nm est restée généralement faible. Les cas d'étude réalisés lors de la campagne étant peu nombreux, il est difficile de tirer des conclusions générales rigoureuses uniquement à l'aide de ces observations. L'étude des spectres granulométriques des aérosols avant, pendant et après un évènement de brouillard sera effectuée en détail à l'aide des données de la campagne de mesures ToulouseFOG dans la partie 3.6.

3.4.2 Variabilité journalière de la concentration en nombre de particules d'aérosols

La Figure 3.14 illustre le cycle diurne de la concentration totale en nombre de particules d'aérosols. Cette variabilité de la concentration est visible tous les jours (Figures 3.11b, 3.12b et 3.13b) mais est représentée ici à titre d'illustration par la période du 06 au 13 Janvier 2007. Cette période a été choisie car le nombre d'épisodes de brume et de brouillard est faible et ces épisodes ont eu une durée très courte (Figures 3.11a). Les données provenant du SMPS ont été moyennées toutes les heures.

Les plus fortes concentrations sont mesurées dans la matinée et en fin d'après-midi. Par exemple, pour la journée du 10 Janvier 2007, elles évoluent de 4000 à 9000 part.cm⁻³ dans la matinée et de 5000 à 10 000 part.cm⁻³ en fin d'après-midi. Ces évolutions sont relativement bien représentées pour les 8 journées montrées dans la figure 3.14 mais avec des concentrations différentes. Ces augmentations de la concentration de particules submicroniques sont probablement dues aux émissions provenant du trafic routier ou de la formation de nouvelles particules à partir de gaz précurseurs (cf. Chapitre 2.1.2) mais difficilement vérifiables à partir des analyses chimiques effectuées. De plus, ces fortes augmentations de concentration s'expliquent également le soir par une diminution de l'épaisseur de la couche limite atmosphérique. Ainsi, la dilution verticale des aérosols par diffusion turbulente diminue et ceux-ci se concentrent alors dans les couches de l'atmosphère proches de la surface. Au contraire, de 12:00 UTC jusqu'à la fin de l'après-midi, la concentration totale en particules d'aérosols diminue. L'augmentation de la diffusion turbulente conduit à une épaisseur de couche limite plus importante durant l'après-midi et implique que les aérosols se mélangent sur une couche atmosphérique plus importante. Cette dilution des aérosols dans l'atmosphère provoque alors une réduction importante de la concentration en nombre de particules enregistrés en surface par le SMPS durant l'après-midi. Ces observations sont identiques à celles effectuées lors de la campagne de mesures Capitoul (Gomes *et al.*, 2008) (cf. Chapitre 2.1.1). Les faibles concentrations en aérosols durant la nuit (comme par exemple pour la nuit du 12 Janvier 2007 à partir de 00:00 UTC sur la Figure 3.14) peuvent être expliquées par la diminution des émissions

en surface. Par conséquent, il y a une forte variabilité de la concentration en nombre de particules entre le jour et la nuit. Il paraît alors nécessaire de bien connaître non seulement le type d'environnement (pollué, rural ou non-pollué) dans lequel un brouillard peut se former mais également la variabilité journalière de l'aérosol. Si un brouillard se forme en début de nuit ou en fin de nuit, les concentrations en particules seront différentes (10 000 part.cm⁻³ en début de nuit, 4000 part.cm⁻³ en fin de nuit pour la journée du 10 Janvier 2007 à titre d'exemple) ce qui pourra avoir des conséquences sur le cycle de vie du brouillard.

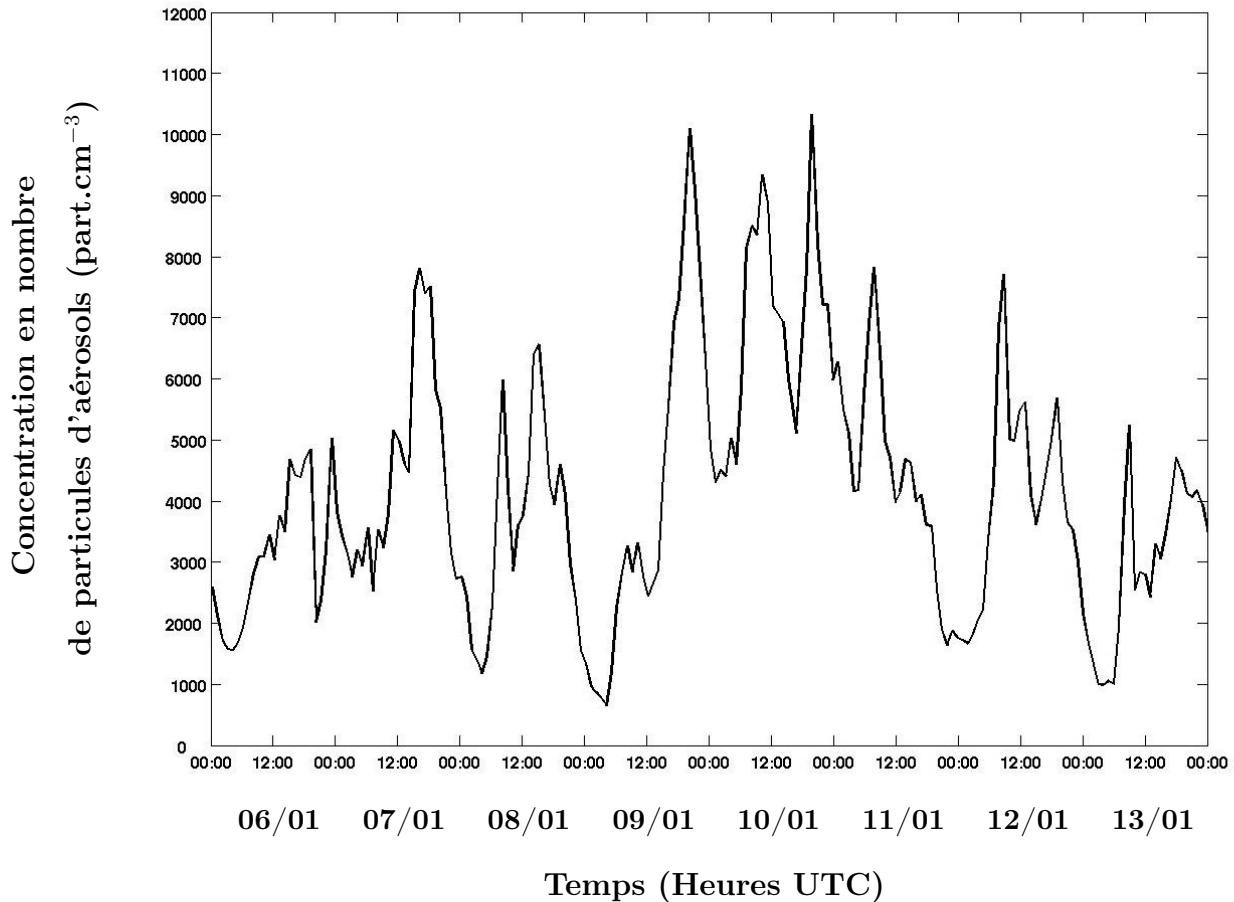


FIGURE 3.14 – *Exemple d'évolution diurne de la concentration totale en nombre de particules d'aérosols mesurée par le SMPS (pour des tailles comprises entre 10 et 500 nm) sur la période du 06 au 13 Janvier 2007 lors de la campagne de mesures ParisFOG. Les données ont été moyennées toutes les heures.*

3.4.3 Variabilité de la composition chimique des aérosols

Les prélèvements sur filtres ont permis d'apporter une information sur la composition chimique des aérosols (Figure 3.3). Ils ont été effectués pendant plusieurs heures (environ 10h d'échantillonnage) avant, pendant et après les épisodes de brouillard. Vingt-huit prélèvements au total ont été réalisés tout au long de la campagne, 5 prélèvements en

Décembre 2006, 7 en Janvier 2007, 11 en Février 2007 et 5 en Mars 2007. La Figure 3.15 présente la répartition d'une partie des analyses chimiques au cours des mois de Janvier (a), de Février (b) et de Mars 2007 (c). Les zones grisées sur la Figure 3.15 représentent les périodes d'échantillonnage, les secteurs ("camemberts") correspondent aux résultats d'analyses chimiques indiquant les proportions des composés chimiques constituant l'aérosol avant, pendant et après certains événements de brouillard.

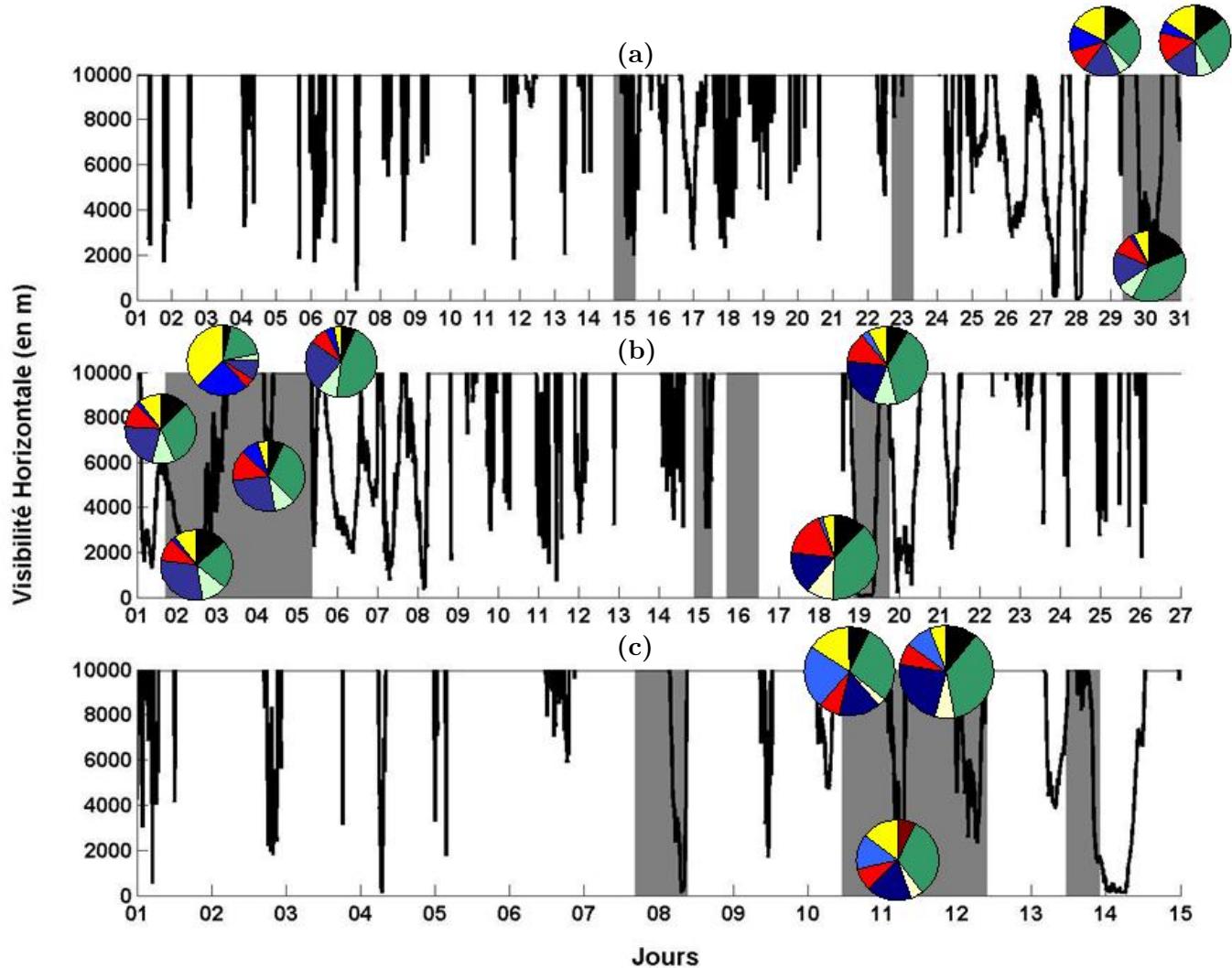


FIGURE 3.15 – Répartition de la composition chimique des aérosols au cours des mois de Janvier (a), Février (b) et Mars (c) 2007 durant la campagne de mesures ParisFOG. Le jeu de couleur utilisé pour représenter la composition chimique analysée est le suivant : La couleur verte indique la proportion de Matière Organique Particulaire (MOP) ; la couleur noire indique la proportion de Black Carbon (BC) ; la couleur jaune indique la proportion de Poussières (Ca^{2+}) ; la couleur bleue indique la proportion de sels marins ; la couleur rouge indique la proportion de sulfate (ion SO_4^{2-}) ; la couleur bleue foncée indique la proportion de nitrate (ion NO_3^-) et la couleur blanche indique la proportion d'ammonium (ion NH_4^+).

Quelque soit la période d'étude concernée, les composés chimiques majoritaires consti-

tuant l'aérosol sont le MOP (Matières Organiques Particulaires). Nous pouvons cependant noter une variabilité non négligeable entre les différents cas pour le nitrate, le sulfate, les poussières, les sels marins, l'ammonium et le BC. A ce stade, il semble difficile et hâtif de tirer des conclusions rigoureuses des interactions entre le brouillard et la composition chimique des aérosols. En effet, de nombreux phénomènes peuvent affecter la composition chimique des aérosols : émissions à la surface, modification de la direction et de l'intensité du vent provoquant un changement de masse d'air conduisant ainsi à des aérosols de compositions chimiques différentes, etc.

Toutefois, ces analyses ont permis de connaître la proportion des éléments chimiques principaux formant l'aérosol sur quelques cas. En plus de la concentration en nombre de particules d'aérosols, elles ont permis d'apporter une information supplémentaire pour qualifier le type d'environnement dans lequel le brouillard peut se former. L'environnement au site du Sirta est qualifié de péri-urbain.

3.4.4 Evolution de la concentration en nombre de grosses particules de Janvier à Mars 2007

Rappelons que les propriétés des particules supérieures à $0.4 \mu m$, appelées grosses particules (aérosols humides et gouttelettes), ont également été mesurées à l'aide d'un OPC (Modèle Pallas Welas 2000) sur le site du Sirta pendant trois mois de Janvier à Mars 2007. Comme indiqué précédemment, les mesures étaient activées lorsque la situation était propice à la formation d'un épisode de brouillard. Ce protocole explique ainsi un échantillonnage discontinu et la forte proportion de données manquantes sur les Figures 3.16, 3.17 et 3.18.

Les Figures 3.16 à 3.18 montrent l'évolution mensuelle de la visibilité horizontale (a), l'évolution de la concentration totale en nombre de grosses particules (b) et de la concentration en nombre de grosses particules en fonction du diamètre (c).

La concentration totale des particules supérieures à $0.4 \mu m$ est bien corrélée avec la visibilité horizontale lors des épisodes de brouillard. Comme signalé précédemment, seuls quatre épisodes de brouillard ont été entièrement échantillonnés par l'OPC (Pallas Wellas 2000) et sont exploitables, la POI 10 effectuée dans la nuit du 27 au 28 Janvier 2007, la POI 13 réalisée dans la nuit du 18 au 19 Février 2007, celle dans la matinée du 08 Mars 2007 (POI 14) et enfin celle de la nuit du 13 au 14 Mars 2007 (POI 15). Les épisodes de brume (caractérisés par une visibilité comprise entre 1000 et 5000 mètres) ont été beaucoup plus nombreux que les épisodes de brouillard notamment pendant le mois de Février. Durant ces épisodes de brume, l'OPC a fonctionné durant de très courtes périodes de temps et n'a pu fournir que quelques données difficilement exploitables. Toutefois, les données recueillies montrent que la concentration en nombre de grosses particules sont plus faibles pendant les périodes de brume que pendant les épisodes de brouillard.

La chute de la visibilité est très fortement liée à l'augmentation de la concentration en grosses particules. Dès que les premières particules mesurées par l'OPC apparaissent en surface, la visibilité chute rapidement. Parmi les quatre POIs définis précédemment, deux enregistrent une concentration totale maximale supérieure à $1000 \text{ part.cm}^{-3}$ (POI 10 et

POI 13), une enregistre une concentration totale maximale supérieure à 500 part.cm⁻³ (POI 14) alors que celle de la POI 15 est de 4000 part.cm⁻³. Ces valeurs maximales de concentration sont observées en début d'évènement de brouillard. Il est important de signaler que la POI 15 correspond à des bancs de brouillard qui ne se sont pas développés et qui ont subi de fortes fluctuations au niveau du sol. Les particules mesurées par l'OPC ont généralement un diamètre inférieur ou égale à 1 μm . Seule la POI 15 présente une concentration de grosses particules de diamètre supérieur à 1 μm plus importante par rapport aux trois autres évènements (Figure 3.18c).

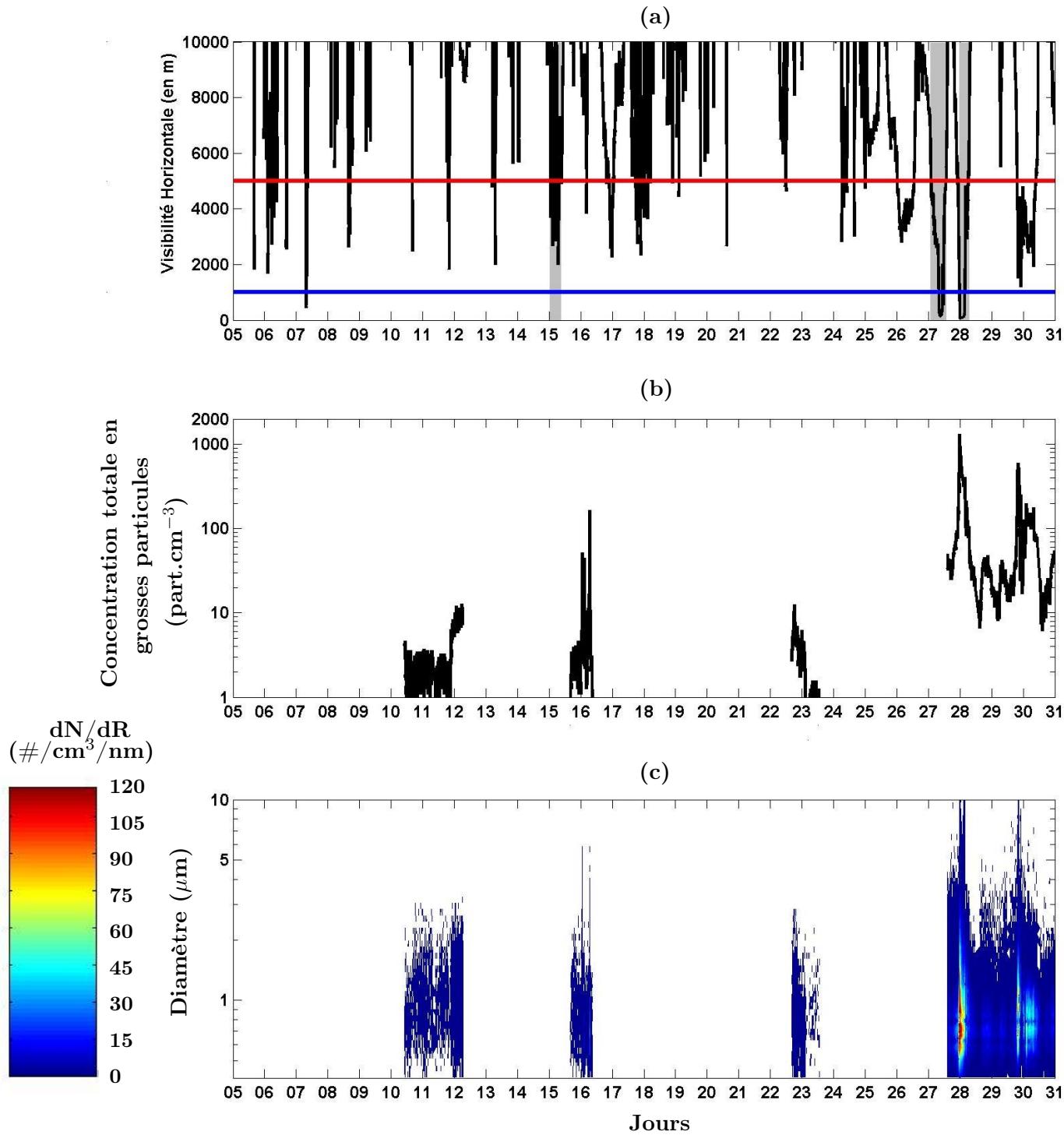


FIGURE 3.16 – *ParisFOG*, mois de Janvier 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale, le trait rouge matérialise la visibilité horizontale de 5000 mètres en-dessous de laquelle on est en situation de brume. Le trait bleu représente la limite météorologique de 1000 mètres en-dessous de laquelle les événements de brouillard sont identifiés. Les zones grisées verticales représentent les dates des POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre de grosses particules mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000). (c) Evolution de la concentration en nombre de grosses particules mesurée par l'OPC en fonction du diamètre.

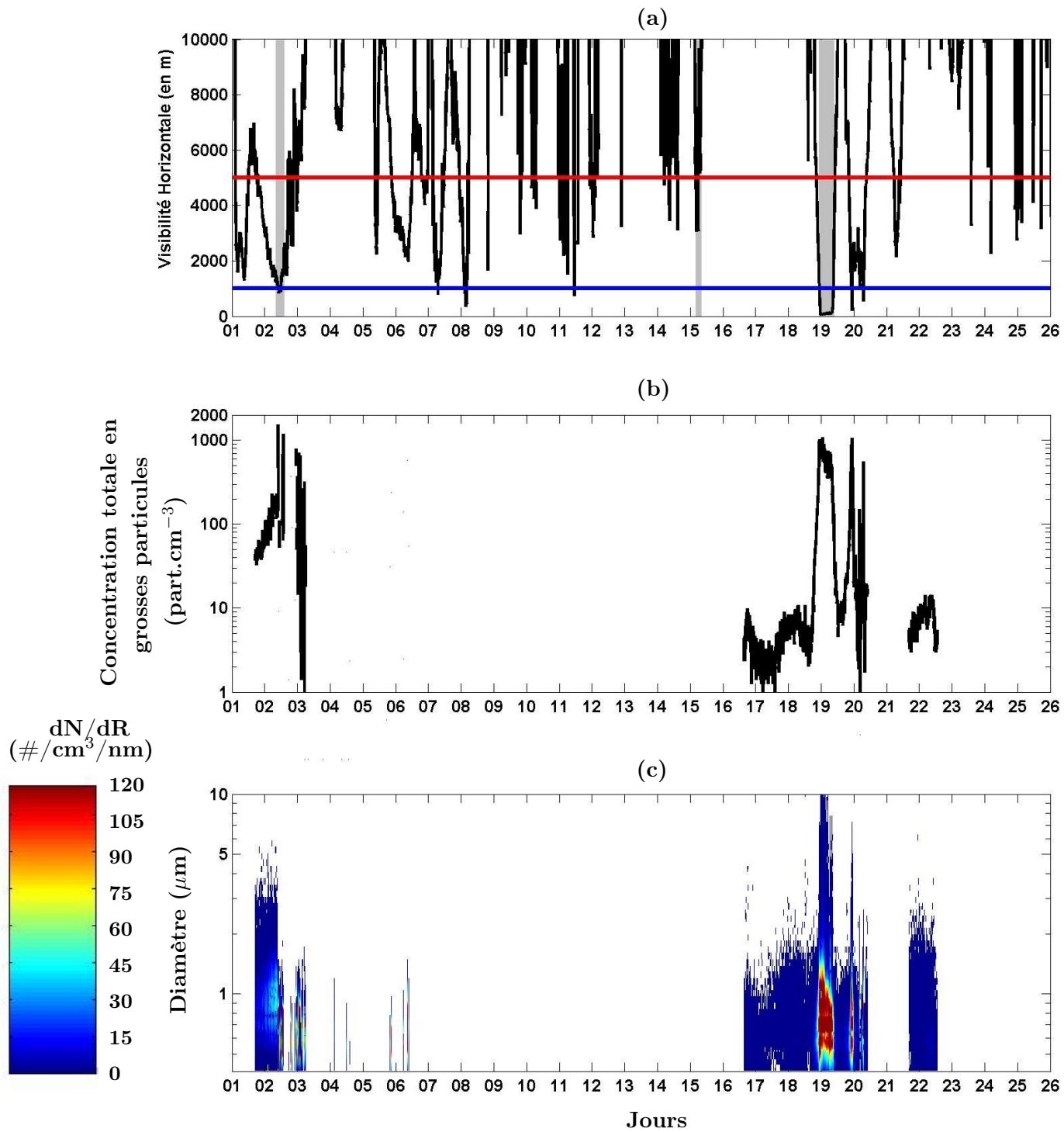


FIGURE 3.17 – ParisFOG, mois de Février 2007 : *idem Figure 3.16.*

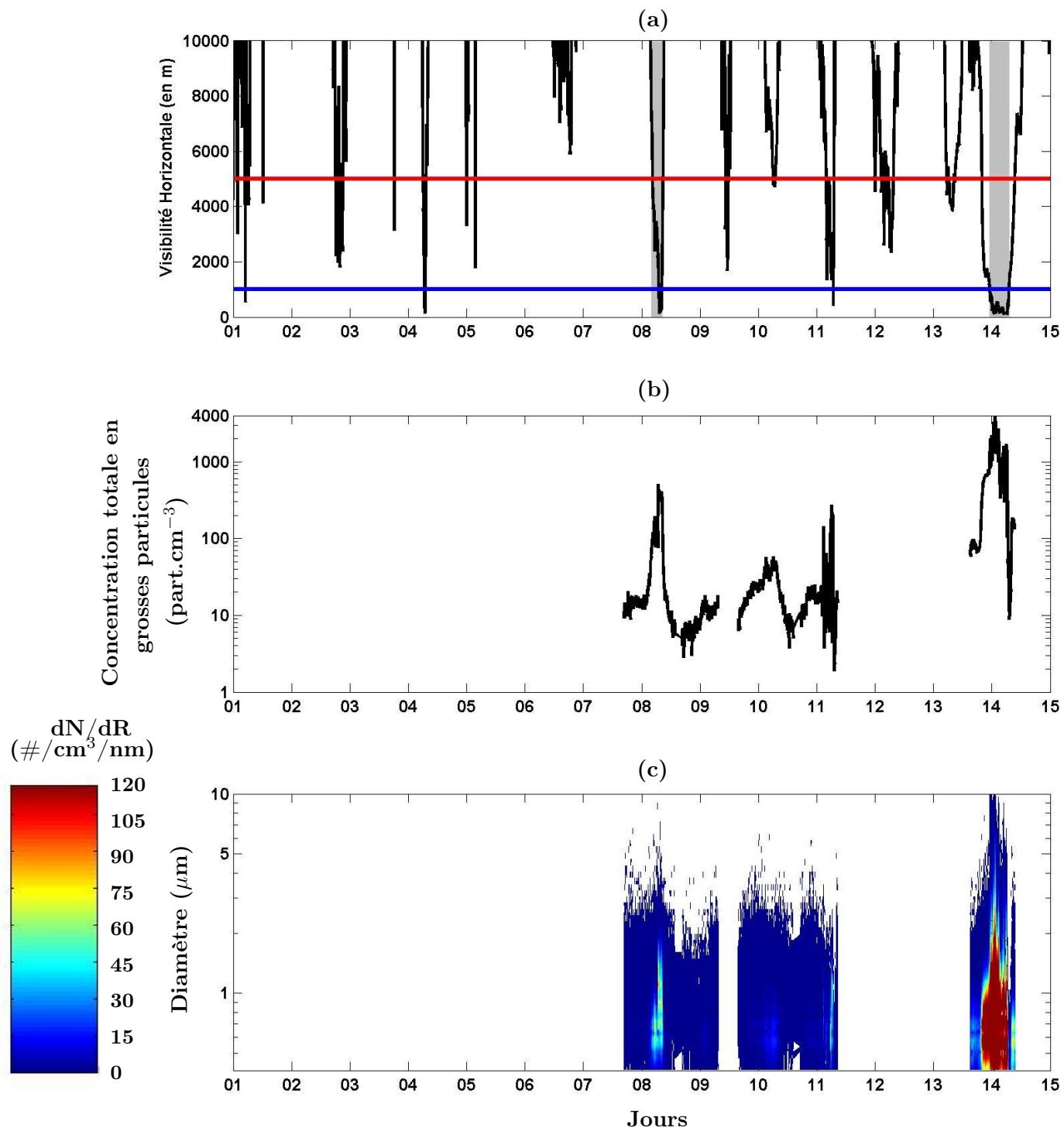


FIGURE 3.18 – ParisFOG, mois de Mars 2007 : idem Figure 3.16.

3.4.5 Evolution du spectre granulométrique des grosses particules

Afin d'aller plus loin dans le dépouillement de ces observations, les tableaux 3.8 à 3.10 présentent les caractéristiques de la distribution lognormale (cf. Chapitre 2.1) des particules de diamètre supérieur à $0.4 \mu\text{m}$ mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) pour les 4 épisodes de brouillard suivant : nuit du 27 au 28 Janvier 2007 (POI 10), nuit du 18 au 19 Février 2007 (POI 13), matinée du 08 Mars 2007 (POI 14) et enfin nuit du 13 au 14 Mars 2007 (POI 15). Ces tableaux montrent successivement la concentration moyenne en nombre de grosses particules N, le rayon modal moyen R et l'écart-type moyen (σ) de la distribution obtenue pendant les phases de formation, de développement et de dissipation en fonction du type de brouillard observé.

Le Tableau 3.8 présente tout d'abord les caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC ainsi que la visibilité horizontale moyenne lors de la phase de formation pour les 4 événements précédents.

Type de Brouillard	Début et Fin (UTC)	Visibilité Moyenne (m)	Mode 1			Mode 2		
			N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ
POI 10 (Divers)	23:30 00:30	150	320	0.4	1.31	590	0.7	1.70
POI 13 (RAD)	22:30 23:30	370	660	0.41	1.42	70	0.8	1.73
POI 14 (ADV)	07:00 08:00	180	340	0.52	1.49	-	-	-
POI 15 (RAD)	23:10 00:10	670	880	0.41	1.49	570	0.7	1.79

TABLE 3.8 – *Phase de formation du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale moyenne pour les 4 événements considérés. Les calculs ont été effectués pour la première heure du brouillard.*

En début de brouillard (pendant la première heure de chaque épisode), les POIs 10, 13 et 15 présentent 2 modes alors que la POI 14 ne présente qu'un seul mode de fines particules. Cette POI 14 correspond à un épisode de brouillard advectif et ne dure que 90 minutes (de 07:00 à 08:30 UTC). Ce brouillard advectif a atteint la surface dans la matinée du 08 Mars 2007 au moment où le trafic routier était très intense. La présence d'un seul mode de particules peut être expliquée par le fait que le milieu dans lequel le brouillard a atteint la surface était très pollué avec une concentration en nombre de particules d'aérosols d'environ $20\,000 \text{ part.cm}^{-3}$ (Figure 3.13b), aussi les particules présentes dans l'atmosphère n'ont pas eu le temps de grossir.

Contrairement à la POI 14, les POI 10, 13 et 15 présentent des caractéristiques similaires entre elles avec la présence de 2 modes. En effet, les paramètres des deux modes sont relativement similaires avec un rayon modal de $0.4 \mu\text{m}$ et un écart-type variant de 1.31 à 1.49 pour le mode 1 et un rayon modal de 0.7-0.8 μm et un écart-type d'environ de 1.7 pour le mode 2. Seule la concentration en nombre de particules varie entre ces 3 événements. Les POIs 13 et 15, qui représentent des épisodes de brouillard radiatif, présentent une concentration plus élevée dans le mode 1 que dans le mode 2 contrairement

à la POI 10 qui correspond à un cas de brouillard dont les processus de formation n'ont pu être clairement identifiés.

Le Tableau 3.9 présente les caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC ainsi que la visibilité horizontale moyenne pendant la phase de développement du brouillard pour les 4 évènements définis précédemment. Les calculs ont été effectués sur toute la durée de la phase de développement qui varie selon l'épisode de brouillard considéré. Les valeurs minimales et maximales (MIN/MAX) de la concentration en nombre de particules, du rayon modal, de l'écart-type σ de la distribution et de la visibilité horizontale sont également données.

Type de Brouillard	Début et Fin (UTC)	Visi. Moy. (m)	Mode 1			Mode 2		
			N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ
POI 10 (Divers)	00:30 02:30	90 (79/105)	210 (200/230)	0.4 (0.4/0.4)	1.30 (1.30/1.30)	250 (200/310)	0.75 (0.75/0.75)	1.69 (1.69/1.69)
POI 13 (RAD)	23:30 07:30	90 (60/180)	430 (275/600)	0.4 (0.35/0.45)	1.33 (1.22/1.39)	80 (10/165)	0.92 (0.5/1.65)	1.66 (1.28/1.84)
POI 14 (ADV)	- -	- -	- -	- -	- -	- -	- -	- -
POI 15 (RAD)	00:10 06:10	260 (60/800)	470 (465/1780)	0.35 (0.32/0.48)	1.38 (1.35/1.61)	900 (130/1200)	1.1 (0.7/1.9)	1.88 (1.50/1.82)

TABLE 3.9 – *Phase de développement du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale moyenne pendant le brouillard pour les 4 évènements considérés. Les calculs ont été effectués pendant toute la phase de développement du brouillard. Les valeurs entre parenthèses sont les valeurs minimales et maximales (MIN/MAX) de la concentration en nombre de particules, du rayon modal et de l'écart-type de la distribution moyennés sur chaque tranche horaire.*

La POI 14 représente un cas de brouillard advectif d'une durée très courte, il paraît donc difficile de parler de phase de développement pour cet évènement. Les 3 autres évènements présentent toujours 2 modes avec la présence du mode fin (mode 1) quasi-identique à celui observé lors de la phase de formation avec un rayon modal de 0.4 μm et un écart-type légèrement plus faible, variant de 1.30 à 1.38. La concentration moyenne en nombre de particules du mode 1 a diminué entre la phase de formation et la phase de développement. Par exemple, pour la POI 15, la concentration a diminué de 880 (Tableau 3.8) à 470 part.cm⁻³ (Tableau 3.9). Les particules présentes dans le mode 1 ont grossi pour être ensuite présentes dans le mode 2. En effet, la concentration moyenne du mode 2 des POIs 13 et 15 (représentant des brouillards radiatifs) a augmenté, avec notamment pour la POI 15, 900 part.cm⁻³ au lieu de 570 part.cm⁻³ lors de la formation. Le rayon modal moyen du mode 2 a légèrement augmenté par rapport à la phase de formation. L'écart-type σ est du même ordre de grandeur que lors de la phase de formation.

La dispersion des valeurs minimales et maximales de concentration en nombre de particules et des rayons modaux montrent que ce sont des paramètres extrêmement variables au cours de la phase de développement au même titre que la visibilité horizontale. Nous pouvons ainsi constater qu'il existe une très forte variabilité de ces paramètres au cours des événements de brouillard. A titre d'exemple, pour le mode 2 lors de la POI 15, la concentration en nombre de particules peut varier de 130 à 1200 part.cm⁻³ (Tableau 3.9). Cette variabilité sera importante à considérer lors de l'étude de modélisation. Cependant, il semble difficile de lier les variations de la visibilité horizontale avec les variations de la concentration en nombre et du rayon modal (mode 1 et mode 2) des particules mesurées par l'OPC uniquement à partir de mesures moyennées et quelque soit les phases du brouillard.

Enfin, le Tableau 3.10 présente les caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC ainsi que la visibilité horizontale moyenne lors de la phase de dissipation pour les 4 événements.

Type de Brouillard	Début et Fin (UTC)	Visibilité Moyenne (m)	Mode 1			Mode 2		
			N (#.cm ⁻³)	R (μ m)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (μ m)	σ
POI 10 (Divers)	02:50 03:50	320	180	0.45	1.37	145	0.8	1.78
POI 13 (RAD)	08:00 09:00	410	170	0.33	1.26	-	-	-
POI 14 (ADV)	07:30 08:30	600	320	0.49	1.52	-	-	-
POI 15 (RAD)	06:40 07:40	1200	130	0.3	1.38	10	0.63	1.5

TABLE 3.10 – *Phase de dissipation du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale moyenne lors de la phase de dissipation pour les 4 événements considérés. Les calculs ont été effectués pour la dernière heure du brouillard.*

Lors de la dissipation du brouillard, les POIs 13 et 14 ne présentent qu'un seul mode. Rappelons que la POI 14 correspond à un événement de brouillard advectif apparaissant très rapidement difficilement exploitable. Les 4 POIs présentent toujours un mode 1 inférieur à 0.5 μ m. Les rayons modaux des POIs 13 et 15 sont plus faibles (0.3 μ m) que ceux des POIs 10 et 14 (0.5 μ m). Les concentrations moyennes des particules des deux modes ont fortement diminué entre la phase de développement et la phase de dissipation. Cette diminution peut être expliquée par l'apparition du rayonnement solaire accélérant l'évaporation des gouttelettes et/ou le processus de sédimentation. La première explication n'est évidemment pas possible pour la POI 10 car la dissipation a eu lieu durant la nuit. Cet événement de brouillard difficilement identifiable a pu être dissipé par des forçages synoptiques (augmentation de l'intensité du vent, présence de nébulosité au-dessus de la couche limite...).

Cette description microphysique est seulement basée sur les 4 POIs exploitables obtenues lors de la campagne de mesures ParisFOG. Il est important de souligner la difficulté d'analyser du point de vue microphysique la distribution des grosses particules mesurées par l'OPC tout au long du brouillard. La similarité principale entre les 4 POIs analysées est la présence systématique d'un mode de rayon inférieur à $0.5 \mu m$. Les caractéristiques (concentration en nombre N, rayon R, écart-type σ) d'un second mode varie selon les cas de brouillard et selon les phases du brouillard (formation, développement et dissipation). De plus, le faible nombre de POIs et la faible quantité d'heures de mesures exploitables empêchent de tirer des conclusions générales sur le comportement de ces grosses particules pendant les évènements de brouillard notamment radiatif. Seules des hypothèses peuvent être avancées pour apporter un début d'explication aux différences observées.

Compte tenu des faibles mesures microphysiques obtenues lors de la campagne ParisFOG, la campagne de mesures ToulouseFOG avait pour objectif principale de compléter ces mesures et d'analyser un plus grand nombre de cas de brouillards notamment radiatifs pouvant ainsi confirmer ou contredire les explications effectuées précédemment.

3.5 Description microphysique de la campagne ToulouseFOG

Rappelons que les données microphysiques ont été obtenues durant six mois, d'Octobre 2007 à Mars 2008. Les évolutions de la concentration en particules d'aérosols et en grosses particules (aérosols humides et gouttelettes) seront illustrées dans cette description. Contrairement à la campagne ParisFOG, le SMPS et les deux OPC (Pallas welas 2000) ont fonctionné en routine tout au long de la campagne. Les mesures microphysiques ont été effectuées en continu et les données sont alors plus nombreuses que celles obtenues pendant la campagne ParisFOG. En plus, un FSSP 100 (Forward Scattering Spectrometer Probe modèle 100) a permis de documenter plus précisément 2 épisodes se produisant dans la nuit du 28-29 Janvier 2008 et dans la matinée du 07 Février 2008.

3.5.1 Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de particules d'aérosols d'Octobre 2007 à Mars 2008

Les Figures 3.19 à 3.24 illustrent l'évolution mensuelle de la visibilité horizontale (graphique du haut) permettant de visualiser les périodes d'observations intensives réalisées au cours de la campagne ToulouseFOG. Ces figures illustrent également l'évolution mensuelle de la concentration totale en nombre de particules d'aérosols (graphique du milieu) et de la concentration en nombre de particules d'aérosols en fonction du diamètre (graphique du bas).

Sur ces six mois de mesures, les concentrations en nombre de particules sont en général plus élevées que celles observées pendant la campagne ParisFOG. Les mois d'Octobre et de Novembre 2007 enregistrent des concentrations de particules d'aérosols plus importantes par rapport aux autres mois. La concentration moyenne sur les six mois d'échantillonnage est de 12 400 part.cm⁻³ soit 1.6 fois plus importante que celle obtenue pendant la campagne ParisFOG (7600 part.cm⁻³). Ceci montre que l'environnement de la campagne de mesures ToulouseFOG est plus pollué que celui de ParisFOG (sachant que les deux campagnes de mesures ont été réalisées durant la saison d'hiver).

Les épisodes de brume sont plus nombreux que les épisodes de brouillard. Cependant, en comparaison avec la campagne ParisFOG, le nombre d'épisodes de brume est plus faible. La visibilité horizontale fluctue considérablement lors de ces épisodes de brume. La concentration totale en nombre de particules d'aérosols diminue au moment de chaque épisode de brume ou brouillard. A titre d'exemple, la concentration totale diminue de 80 000 à 10 000 part.cm⁻³ pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008. Ceci confirme une réelle interaction entre une couche de brouillard (ou brume) et la concentration totale de particules et confirme ainsi les observations faites lors de ParisFOG.

Sur l'ensemble de la campagne, la concentration en nombre de particules varie entre environ 1000 à 100 000 part.cm⁻³. Ces fortes différences de concentration en comparaison avec les valeurs de concentrations obtenues pendant ParisFOG sont dues au type d'environnement dans lequel les mesures ont été effectuées. Lors de ToulouseFOG, ces mesures ont été réalisées sur le site de Météo-France, très proche de l'agglomération toulousaine mais également à proximité d'une rocade (quelques centaines de mètres environ) sur la-

quelle le trafic routier est dense le matin et le soir. L'environnement atmosphérique dans lequel la campagne a été réalisée correspond donc à un milieu contenant de fortes concentrations de particules directement affectées par des sources locales.

Ceci est confirmé en examinant la taille des aérosols. En effet, les Figures 3.19c à 3.24c montrent clairement que les particules submicroniques ultra-fines (inférieurs à 100 nm) sont prépondérantes et justifient que l'on quantifie cet environnement de fortement pollué (urbain). Comme pour la campagne ParisFOG, le cycle diurne a été également mis en évidence confirmé par l'étude effectuée par Gomes *et al.* (2008). Ce cycle diurne sera mis en évidence lors de l'étude des spectres granulométriques présentée par la suite dans la partie 3.6.1.

Nous constatons à l'aide de cette description microphysique mensuelle que la concentration en nombre de particules d'aérosols de tailles supérieures à 100 nm augmente systématiquement et reste élevée pendant le brouillard pour ensuite diminuer après l'épisode comme observée pendant ParisFOG. Cette augmentation de la concentration est bien identifiée lors des épisodes de brouillards radiatifs successifs qui se sont produits du 26 au 30 Janvier 2008 contrairement à la période du 22 au 24 Janvier 2008 en situation hors brouillard pendant laquelle la grande majorité des particules avait une taille essentiellement inférieure à 100 nm. Cependant, certaines périodes présentent de fortes concentrations en particules d'aérosols sans formation de brouillard. Afin d'affiner ces observations, une étude des spectres granulométriques des aérosols avant, pendant et après un évènement du brouillard semble donc nécessaire et sera effectuée dans la partie 3.6.

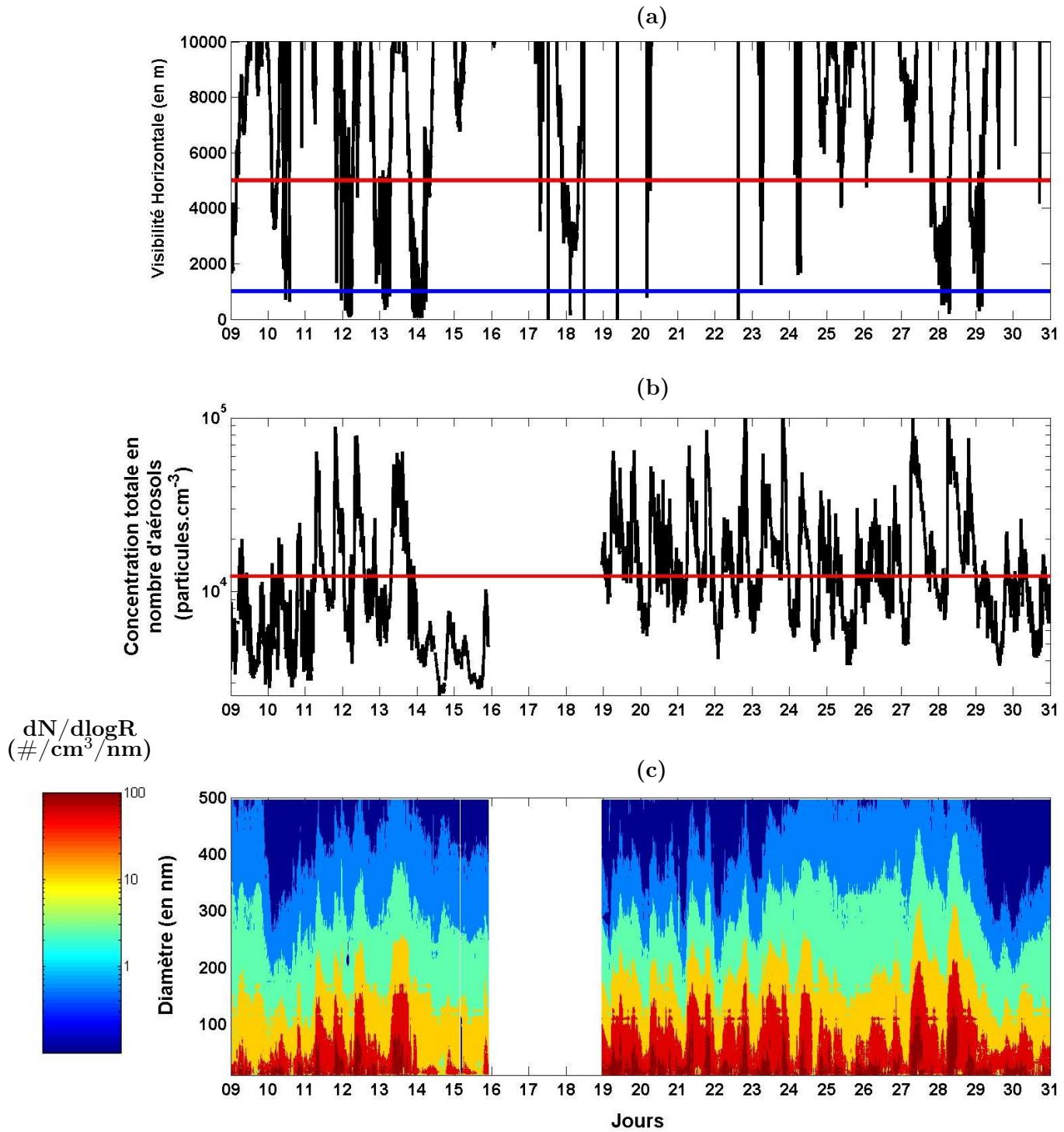
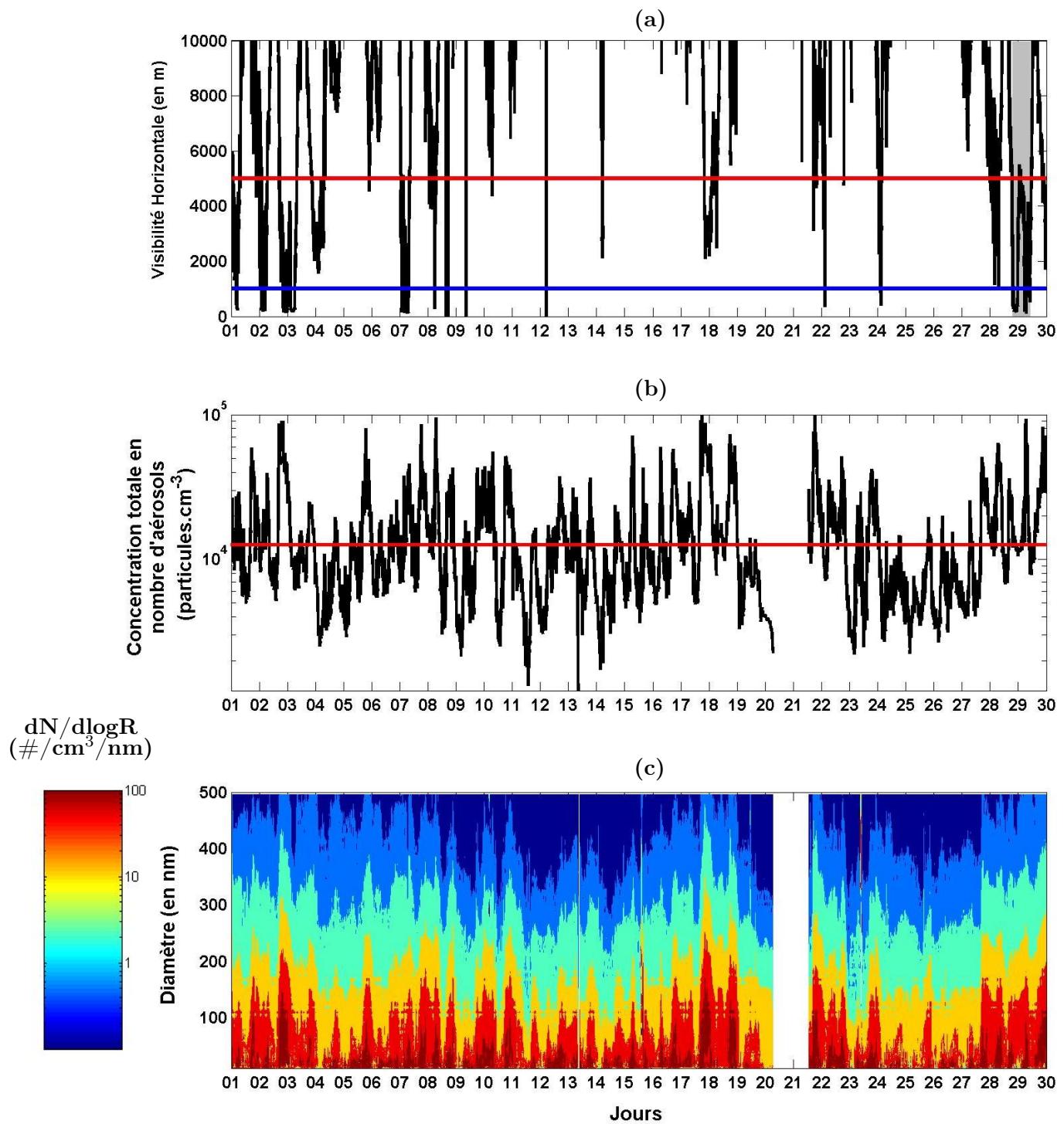


FIGURE 3.19 – *ToulouseFOG*, mois d'Octobre 2007 : (a) Evolution de la visibilité horizontale. Le trait rouge matérialise la visibilité horizontale en-dessous de laquelle on est en situation de brume. Le trait bleu représente la limite météorologique en-dessous de laquelle le brouillard est identifié. Les zones grisées verticales représentent les POIs réalisées. (b) Evolution de la concentration totale en nombre d'aérosols mesurée par le SMPS, le trait rouge représente la concentration moyenne en aérosols. (c) Evolution de la concentration en nombre d'aérosols en fonction du diamètre.

FIGURE 3.20 – *ToulouseFOG*, mois de Novembre 2007 : *idem Figure 3.19*.

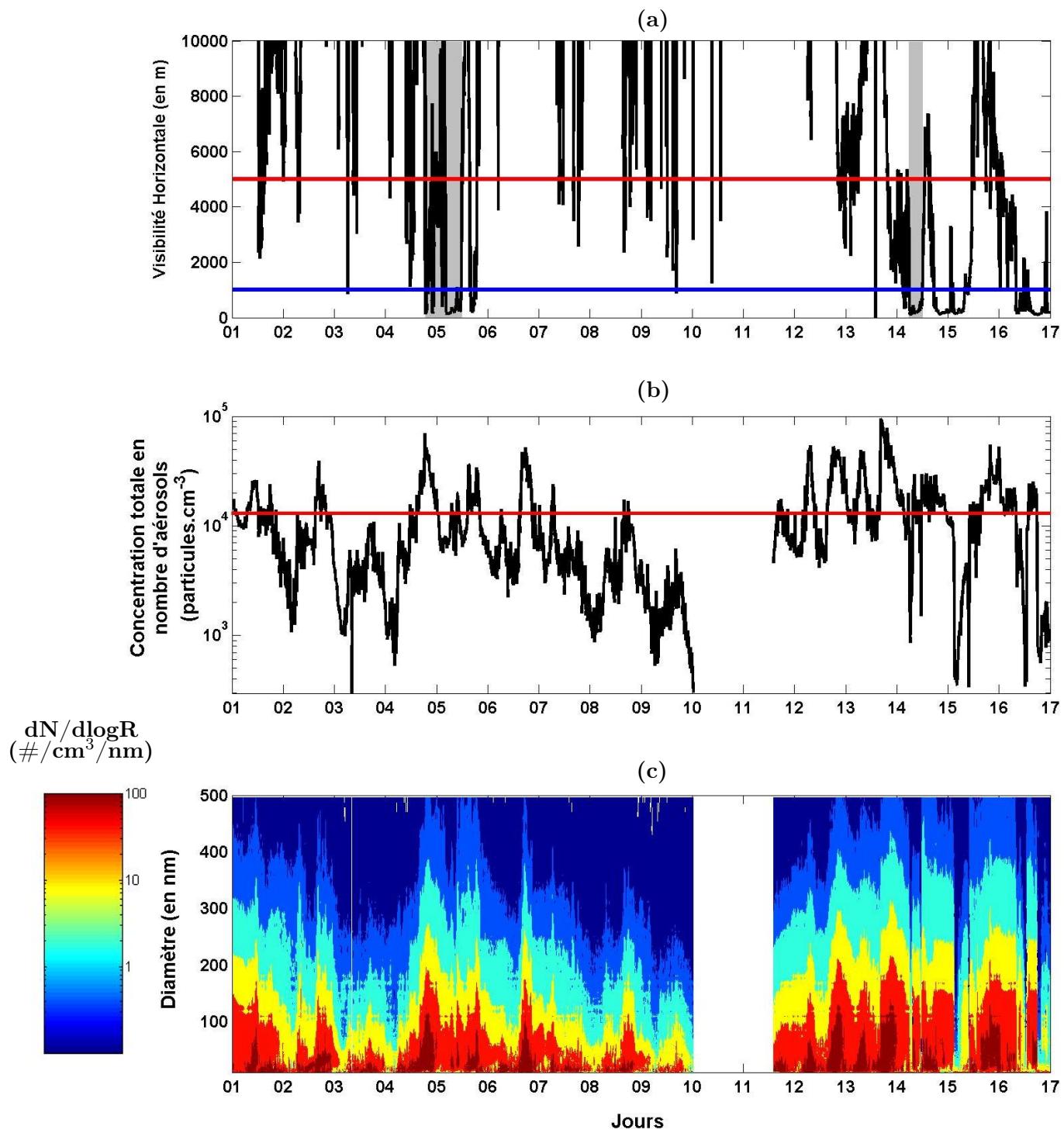
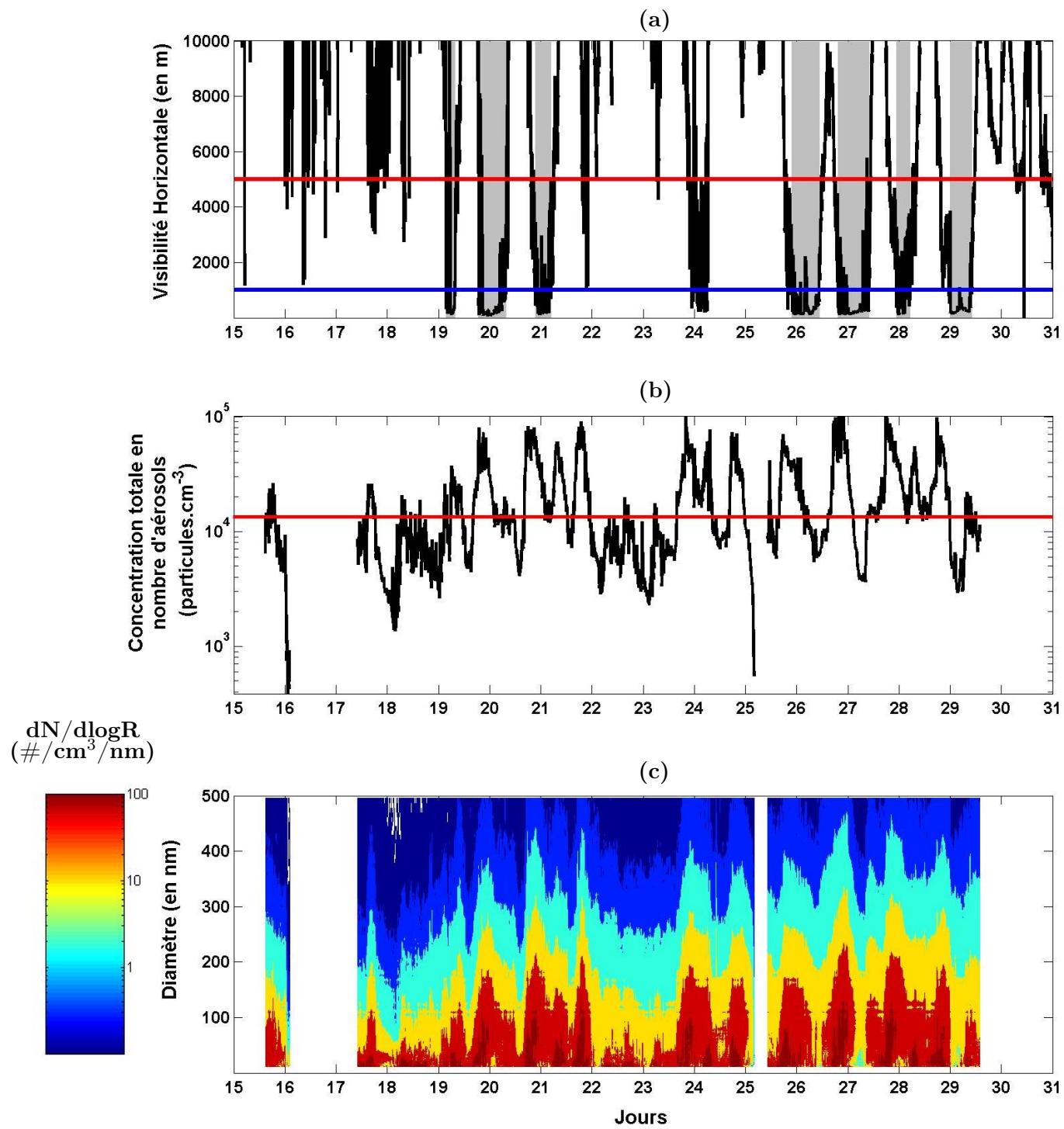


FIGURE 3.21 – *ToulouseFOG*, mois de Décembre 2007 : *idem Figure 3.19.*

FIGURE 3.22 – *ToulouseFOG, mois de Janvier 2008 : idem Figure 3.19.*

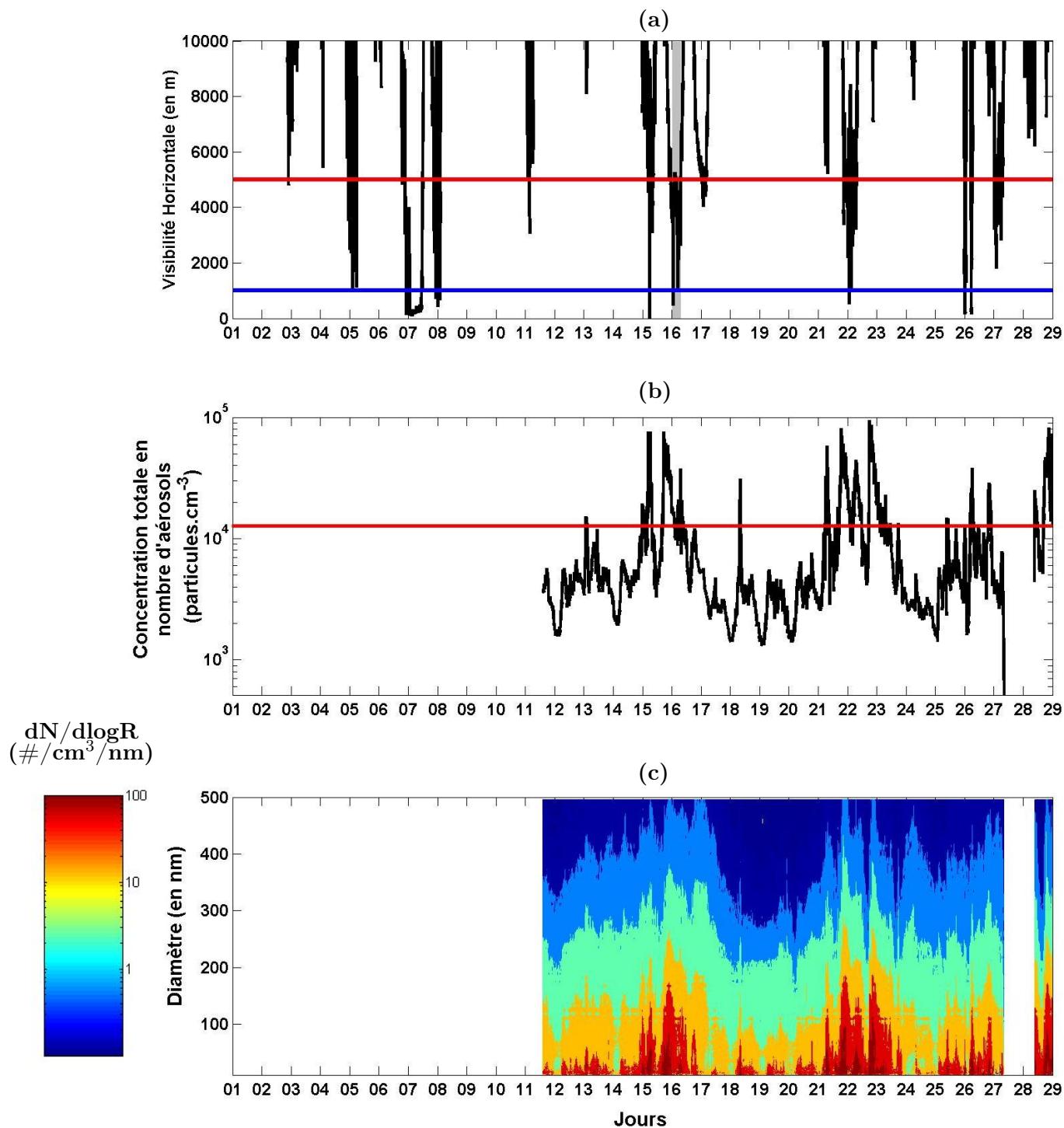
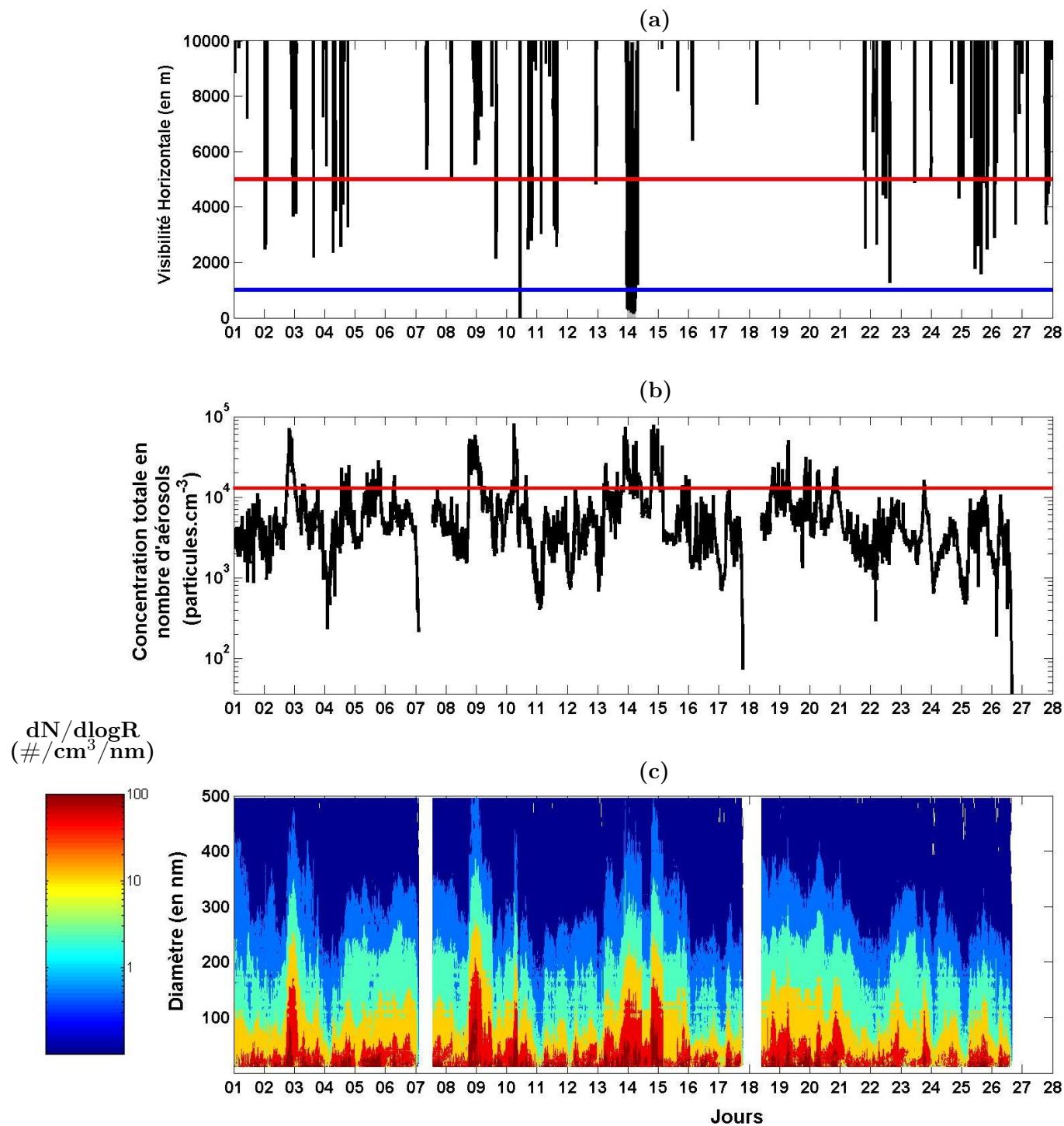


FIGURE 3.23 – *ToulouseFOG, mois de Février 2008 : idem Figure 3.19.*

FIGURE 3.24 – *ToulouseFOG*, mois de Mars 2008 : *idem Figure 3.19.*

3.5.2 Variabilité mensuelle de la concentration en nombre de grosses particules d'Octobre 2007 à Mars 2008

Lors de la campagne de mesures ToulouseFOG, la concentration et la taille des grosses particules (de diamètre supérieur à $0.4 \mu\text{m}$) ont été mesurées pendant les six mois d'échantillonnage à l'aide de deux OPC (Pallas welas 2000) sur le site de Météo-France. Le FSSP a quant à lui fonctionné lors de deux événements de brouillard : pendant la nuit du 29 Janvier 2008 et dans la matinée du 07 Février 2008. Le nombre de brouillards échantillonnés par les 2 OPC est plus élevé que pendant la campagne ParisFOG. Nous ne présentons ici que les mesures effectuées à 2 mètres par l'un des 2 OPC. En effet, les mesures obtenues par les deux OPC qui fonctionnaient en mode inter-comparaison fournissaient des résultats identiques.

Les Figures 3.25 à 3.30 montrent l'évolution mensuelle de la visibilité horizontale (a), l'évolution de la concentration en nombre de grosses particules (b) et de la concentration en nombre de grosses particules en fonction du diamètre (c).

Comme pour la campagne de mesures ParisFOG, l'évolution de la concentration en nombre total de particules supérieures à $0.4 \mu\text{m}$ est très bien corrélée avec celle de la visibilité horizontale. Les données de l'OPC recueillies pendant les campagnes ParisFOG et ToulouseFOG sont relativement similaires. En effet, la chute de la visibilité est très fortement liée à l'augmentation de la concentration en particules de tailles plus importantes. Etant donné le nombre plus important d'épisodes de brouillard observé pendant ToulouseFOG, ceci permet d'affirmer les conclusions faites pendant ParisFOG. Il est important de souligner que certains cas se distinguent, comme les épisodes survenus au mois de Janvier, par un nombre de particules plus important. Par exemple, lors des épisodes de brouillard survenus lors des nuits du 20 au 21 Janvier 2007 ou du 26 au 27 Janvier 2007, l'OPC a enregistré des concentrations en nombre de grosses particules atteignant $3000 \text{ part.cm}^{-3}$. De plus, ces deux épisodes ont vu une concentration plus importante pour des particules de tailles supérieures à $1 \mu\text{m}$ de diamètre et pour quelques particules ayant une taille proche de $10 \mu\text{m}$.

Nous allons, dans la suite de cette description, nous intéresser à plusieurs types d'épisodes de brouillard (Tableau 3.7) en essayant de comprendre la différence de concentration maximale en nombre de grosses particules. Les 2 épisodes de brouillard d'advection observés au cours de la campagne ne seront pas étudiés. Aucunes mesures microphysiques n'ont été obtenues pour l'épisode du 13 Janvier 2008 et l'épisode du 27 Janvier 2008 fut trop court (40 minutes) pour pouvoir être étudié (Tableau 3.7). Nous étudions essentiellement des cas de brouillard radiatif (noté RAD dans la suite) et deux cas d'affaissement de stratus (noté CBL) se produisant le 28 Novembre 2007 et le 14 Décembre 2007.

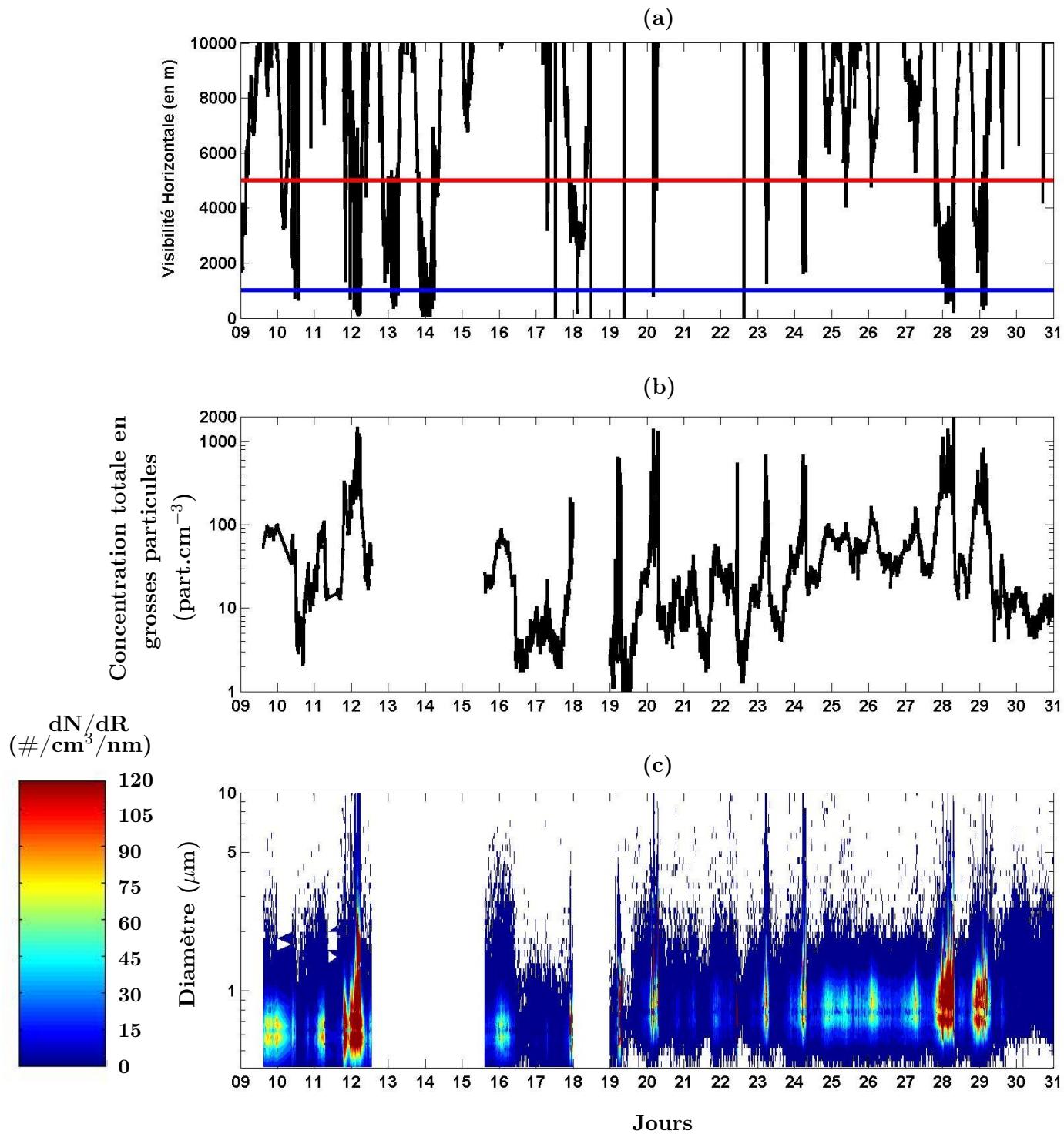


FIGURE 3.25 – *ToulouseFOG, mois d'Octobre 2007* : (a) *Evolution de la visibilité horizontale*. Le trait rouge matérialise la visibilité horizontale en-dessous de laquelle on est en situation de la brume. Le trait bleu représente la limite météorologique en-dessous de laquelle le brouillard est identifié. Les zones grisées verticales représentent les POIs réalisées. (b) *Evolution de la concentration totale en nombre de grosses particules*. (c) *Evolution de la concentration en nombre de grosses particules en fonction du diamètre*.

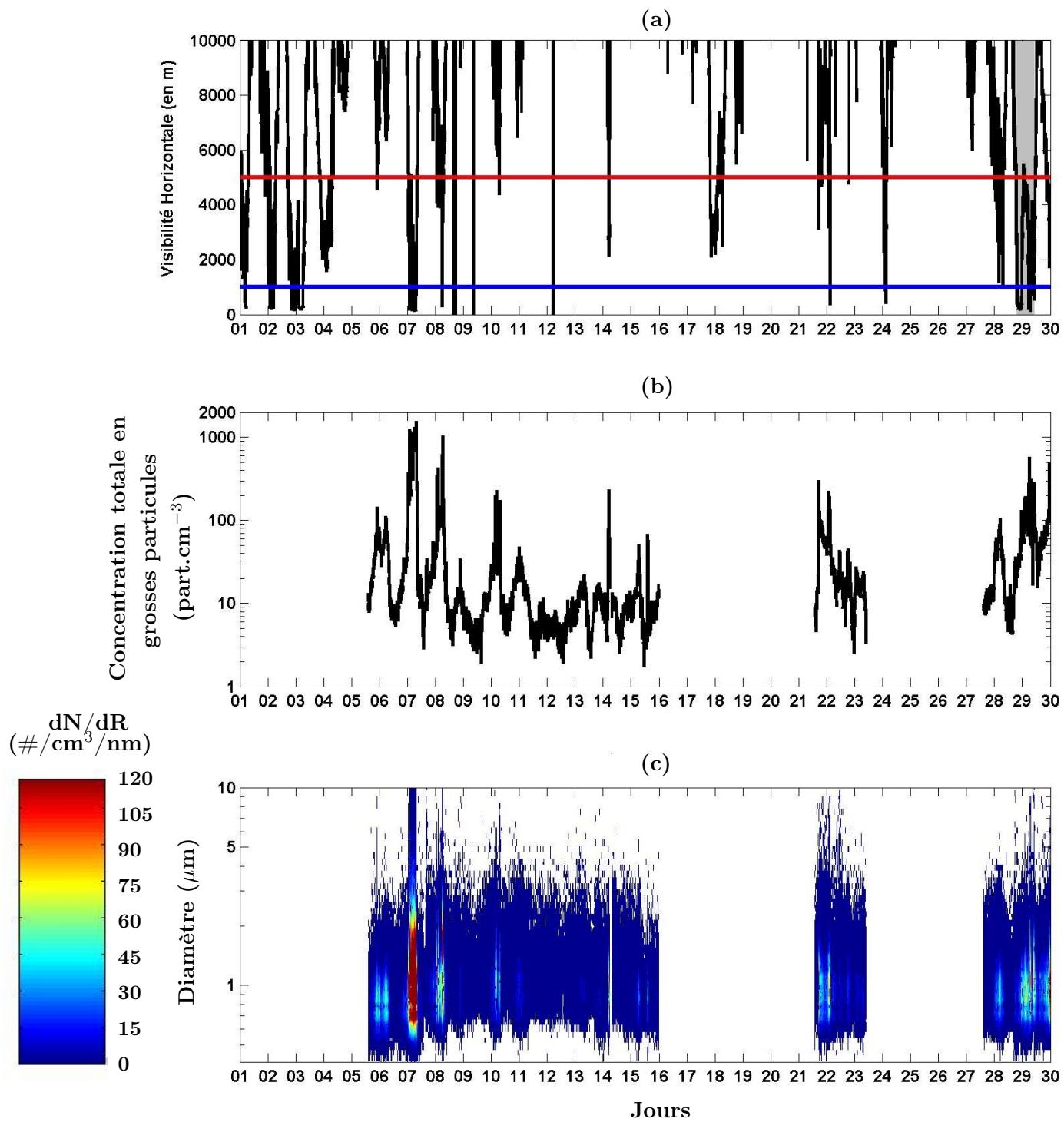
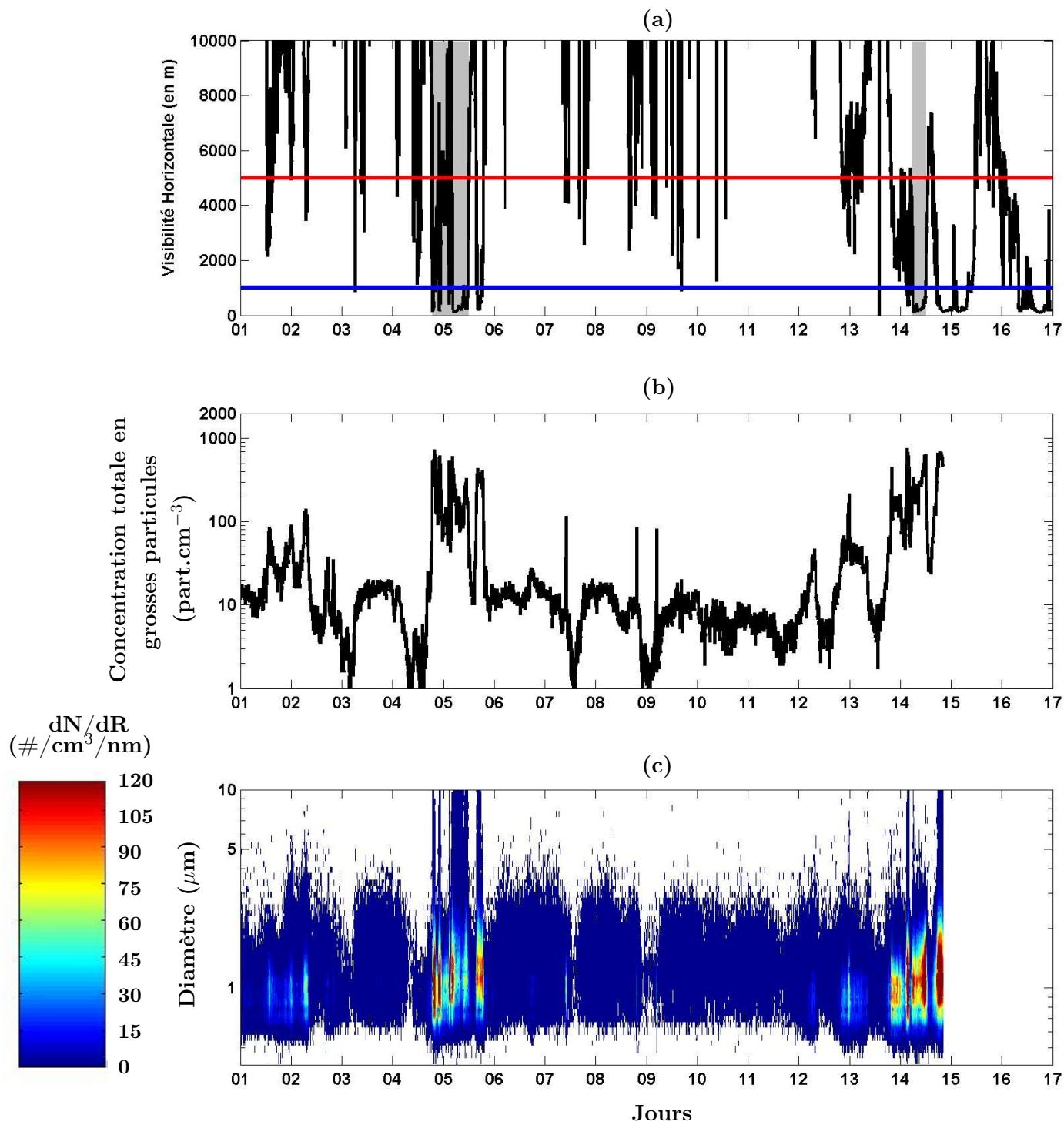


FIGURE 3.26 – *ToulouseFOG*, mois de Novembre 2007 : *idem Figure 3.25*.

FIGURE 3.27 – *ToulouseFOG*, mois de Décembre 2007 : *idem Figure 3.25*.

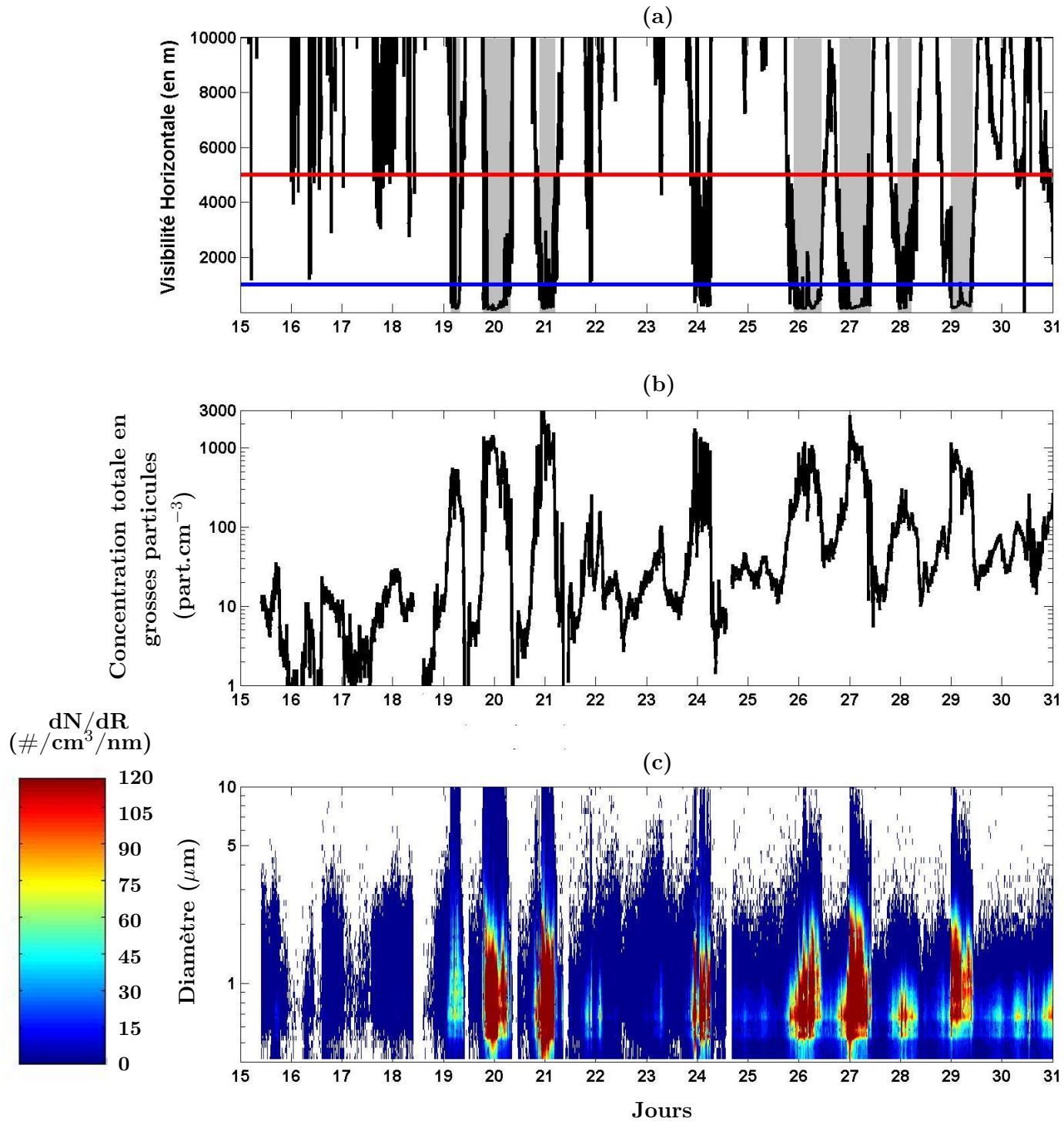
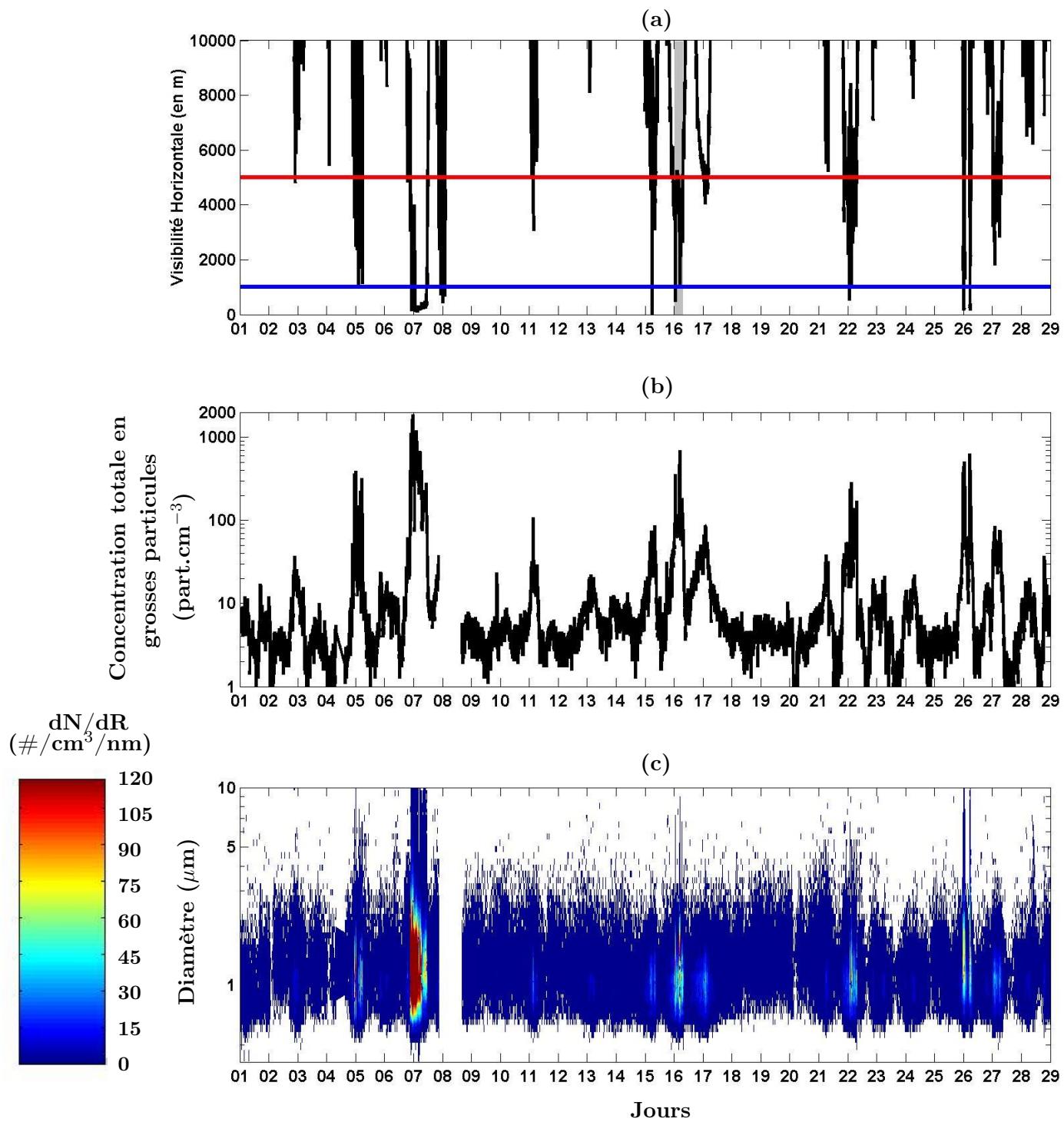


FIGURE 3.28 – *ToulouseFOG, mois de Janvier 2008 : idem Figure 3.25.*

FIGURE 3.29 – *ToulouseFOG, mois de Février 2008 : idem Figure 3.25.*

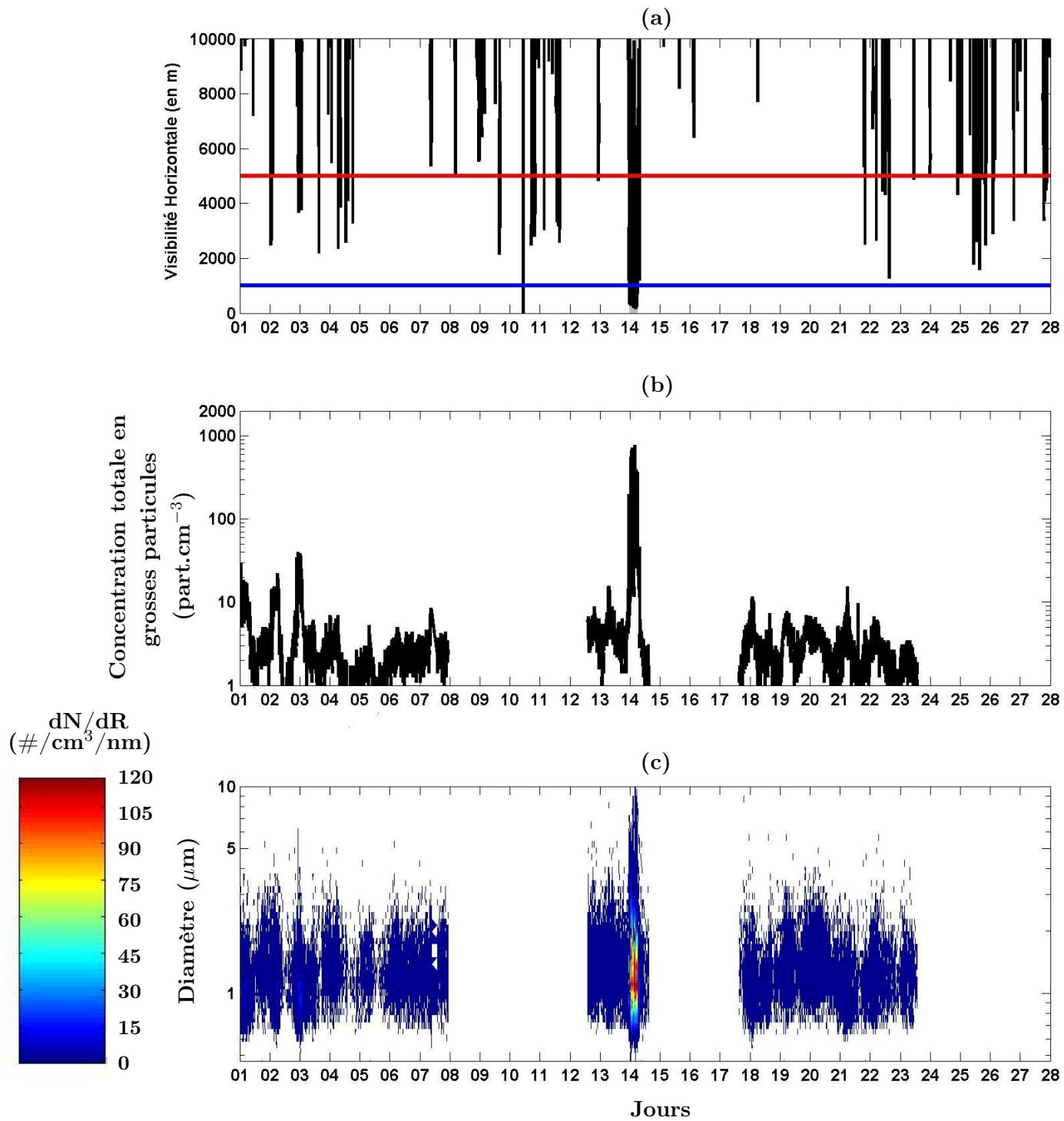


FIGURE 3.30 – *ToulouseFOG*, mois de Mars 2008 : *idem Figure 3.25.*

3.5.3 Evolution du spectre granulométrique des grosses particules

Le Tableau 3.11 présente les caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et la visibilité horizontale lors de la phase de formation pour plusieurs événements de brouillard se produisant pendant la campagne ToulouseFOG.

Type de Brouillard	Début et Fin (UTC)	Visibilité Moyenne (m)	Mode 1			Mode 2		
			N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ
28 Nov. 2007 (CBL)	19:10 20:10	480	20	0.45	1.27	10	0.61	1.48
05 Déc. 2007 (RAD)	04:20 05:20	160	300	0.65	1.40	40	1.7	2.03
14 Déc. 2007 (CBL)	05:50 06:50	185	190	0.5	1.30	80	0.8	1.34
19-20 Janv. 2008 (RAD)	20:00 21:00	990	450	0.47	1.46	440	1.1	2.1
20-21 Janv. 2008 (RAD)	22:20 23:20	560	2040	0.47	1.43	615	1.05	1.93
26-27 Janv. 2008 (RAD)	20:40 21:40	800	110	0.37	1.25	-	-	-
Nuit 29 Janv. 2008 (RAD)	00:00 01:00	200	184	0.4	1.3	600	0.7	1.45

TABLE 3.11 – *Phase de formation du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale pour différents types de brouillard. Les calculs ont été effectués pour la première heure du brouillard.*

Cinq événements de brouillard radiatif sont considérés. L'heure de formation est différente selon le cas de brouillard considéré. La principale différence entre ces 5 épisodes est l'absence d'un second mode de particules pour l'épisode du 26-27 Janvier 2008 qui présente un mode unique présentant un rayon modal moyen R de $0.37 \mu\text{m}$ et un écart-type σ moyen de 1.25 pour le mode 1. Cette absence peut être expliquée par le fait que le taux de refroidissement est plus faible lors de cet épisode (environ de $-0.5^\circ\text{C.h}^{-1}$) contrairement aux autres cas qui présentent des taux de refroidissement supérieurs à -1°C.h^{-1} . Il est important de noter également qu'au moment de la formation de cet épisode de brouillard du 26-27 Janvier 2008, la concentration en nombre de particules d'aérosols fut très importante, atteignant plus de $100\ 000 \text{ part.cm}^{-3}$ contrairement aux autres épisodes (Figure 3.22b). L'événement du 20-21 Janvier 2008 enregistre également une très forte concentration de particules dans le mode 1 avec $2040 \text{ part.cm}^{-3}$. Cette forte différence de concentration par rapport aux autres événements pourrait être due à des émissions locales persistantes se produisant tardivement dans la soirée du 20 Janvier 2008.

Toutefois, des similitudes entre les 5 épisodes de brouillard radiatif sont perceptibles. Le premier mode est constamment présent pour les 5 événements avec un rayon modal moyen inférieur à $0.5 \mu\text{m}$. Le mode 2 quant à lui est centré sur un rayon modal moyen de $1 \mu\text{m}$ et présente dès la phase de formation une forte concentration en nombre de

grosses particules. Par exemple, les épisodes du 20-21 Janvier 2008 et du 29 Janvier 2008 possèdent environ 600 part.cm^{-3} . Le rayon modal moyen du mode 2 pour l'épisode de la nuit du 29 Janvier 2008 est plus faible avec $0.7 \mu\text{m}$ par rapport aux autres évènements alors qu'il est de $1.7 \mu\text{m}$ pour l'épisode du 05 Décembre 2007.

Contrairement aux brouillards radiatifs, les 2 épisodes de brouillard dus aux affaissements de stratus présentent des concentrations plus faibles pour les deux modes de particules. Le rayon modal moyen R du premier mode est relativement identique alors que celui du second mode est légèrement plus petit. L'épisode du 28 Novembre 2007 présente des valeurs faibles en concentration.

Le Tableau 3.12 présente les caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules et la visibilité horizontale lors de la phase de développement pour les différents types de brouillards considérés précédemment. Les calculs ont été effectués sur toute la durée de la phase de développement qui varie selon l'épisode de brouillard considéré. De plus, les valeurs minimales et maximales (MIN/MAX) de la concentration en nombre de particules, du rayon modal, de l'écart-type σ de la distribution et de la visibilité horizontale sont représentées.

Type de Brouillard	Début et Fin (UTC)	Visi. Moy. (m)	Mode 1			Mode 2		
			N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ
28 Nov. 2007 (CBL)	20:10 22:10	190 (160/250)	25 (14/31)	0.45 (0.45/0.46)	1.25 (1.20/1.26)	10 (6/17)	0.6 (0.5/0.7)	1.44 (1.41/1.43)
05 Déc. 2007 (RAD)	05:20 10:20	300 (130/1100)	135 (90/160)	0.65 (0.55/0.65)	1.42 (1.33/1.45)	30 (15/60)	1.75 (0.90/2.2)	2.11 (1.5/2.33)
14 Déc. 2007 (CBL)	06:50 10:50	230 (110/470)	180 (90/240)	0.55 (0.5/0.6)	1.33 (1.28/1.35)	110 (90/160)	0.75 (0.71/0.75)	1.38 (1.37/1.43)
19-20 Janv. 2008 (RAD)	21:00 05:00	200 (60/2400)	590 (170/500)	0.46 (0.38/0.50)	1.44 (1.28/1.44)	210 (110/670)	0.85 (0.55/1.6)	1.58 (1.53/2.19)
20-21 Janv. 2008 (RAD)	23:30 02:30	400 (110/300)	1160 (1310/543)	0.45 (0.4/0.45)	1.39 (1.30/1.39)	290 (230/890)	0.9 (0.55/1.05)	1.88 (1.52/2.03)
26-27 Janv. 2008 (RAD)	22:00 07:00	320 (100/3000)	390 (80/590)	0.4 (0.35/0.46)	1.31 (1.13/1.39)	520 (100/1260)	0.75 (0.7/0.9)	1.48 (1.33/1.55)
Nuit 29 Janv. 2008 (RAD)	01:00 09:00	300 (170/1100)	70 (40/280)	0.39 (0.36/0.45)	1.26 (1.21/1.36)	450 (170/580)	0.65 (0.55/0.8)	1.48 (1.40/1.47)

TABLE 3.12 – *Phase de développement du brouillard : caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale pendant le brouillard pour différents types de brouillard. Les valeurs entre parenthèses représentent les valeurs minimales et maximales (MIN/MAX) de la concentration en nombre de particules, du rayon modal et de l'écart-type de la distribution moyennés sur chaque heure durant la phase de développement.*

Pendant la phase de développement, les 5 épisodes de brouillard radiatifs possèdent cette fois-ci 2 modes de particules. Les caractéristiques du mode 1 sont quasi-identiques à celles observées lors de la phase de formation. En effet, ce mode présente toujours un rayon modal moyen inférieur à $0.5 \mu m$. De plus, l'épisode du 20-21 Janvier 2008 enregistre encore une concentration moyenne élevée en nombre de particules. Toutefois, la concentration a diminué pour atteindre la valeur de $1160 \text{ part.cm}^{-3}$. Les épisodes se produisant dans la nuit du 05 Décembre 2007 et dans la nuit du 29 Janvier 2008 présentent également une diminution de la concentration moyenne en nombre dans le mode 1. Ceci peut indiquer la mise en place du processus d'activation et affirmer l'hypothèse faite lors de la description microphysique de la campagne de mesures ParisFOG.

En ce qui concerne le mode 2, la concentration moyenne et le rayon modal moyen ont diminué entre les phases de formation et de développement sauf pour l'épisode du 26-27 Janvier 2008. L'épisode du 05 Décembre 2007 enregistre un second mode avec un rayon modal plus élevé. En complément des remarques faites précédemment lors de la campagne ParisFOG, il est possible d'affirmer à ce stade de la description que la concentration en nombre de particules et les rayons modaux sont des paramètres extrêmement variables lors de la phase de développement du brouillard. Comme indiqué précédemment, il est difficile de lier les variations de la visibilité horizontale avec celles de la concentration en nombre de grosses particules à partir de valeurs moyennées.

Les deux épisodes d'affaissement de stratus présentent des propriétés quasi-identiques à celles observées pendant la phase de formation. Seules les concentrations ont augmenté essentiellement dans le premier mode. Il n'y a pas de fortes distinctions entre les brouillards radiatifs et ceux dus aux affaissements de stratus même si l'épisode du 28 Novembre 2007 présente toujours de très faibles valeurs en concentration pour les deux modes.

Enfin, le Tableau 3.13 présente les caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules ainsi que la visibilité horizontale lors de la phase de dissipation du brouillard pour les mêmes événements que précédemment.

Tous les épisodes présentent 2 modes de particules lors de la phase de dissipation. Le mode 1 présente encore un rayon modal moyen d'une valeur proche de $0.5 \mu m$ et varie très faiblement entre les phases de développement et de dissipation. La concentration moyenne en nombre de particules a diminué entre ces deux phases sauf pour les épisodes du 05 Décembre 2007 et du 29 Janvier 2008. Par exemple, la concentration moyenne a diminué de 590 à 225 part.cm^{-3} pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008. Au contraire, la concentration moyenne a augmenté de 300 à 800 part.cm^{-3} pour l'épisode du 29 Janvier 2008. Cette augmentation peut être expliquée par la présence d'émissions locales à proximité du site à cause de l'heure tardive de la dissipation du brouillard. La même remarque peut être faite pour le cas d'affaissement de stratus du 14 Décembre 2007. La concentration moyenne présente dans le mode 2 a également diminué par rapport à la phase de développement. Cette diminution de la concentration moyenne du mode 2 également observée lors de la description faite pendant la campagne ParisFOG peut être interprétée de la même manière. En effet, l'apparition du rayonnement solaire accélère l'évaporation des gouttelettes et/ou le processus de sédimentation peuvent engendrer cette diminution de la concentration en nombre de ces grosses particules. Le rayon modal moyen et l'écart-type σ du mode 2 varient fortement selon les 4 épisodes considérés et ont légèrement augmenté par rapport aux valeurs moyennes obtenues lors de la phase de développement. Comme pour

Type de Brouillard	Début et Fin (UTC)	Visibilité Moyenne (m)	Mode 1			Mode 2		
			N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (μm)	σ
28 Nov. 2007 (CBL)	22:10 23:10	180	40	0.45	1.26	10	0.65	1.43
05 Déc. 2007 (RAD)	11:20	280	190	0.7	1.45	40	1.73	1.93
14 Déc. 2007 (CBL)	10:50 11:50	440	470	0.6	1.37	10	1.3	3.00
19-20 Janv. 2008 (RAD)	04:50 05:50	940	225	0.43	1.36	105	1.01	2
20-21 Janv. 2008 (RAD)	03:00 04:00	520	850	0.47	1.42	155	1.05	2.1
26-27 Janv. 2008 (RAD)	07:10 08:10	470	170	0.39	1.26	225	0.79	1.1
Nuit 29 Janv. 2008 (RAD)	08:50 09:50	800	260	0.48	1.37	90	0.66	1.5

TABLE 3.13 – *Phase de dissipation : caractéristiques de la distribution lognormale des grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) et visibilité horizontale pour différents types de brouillard. Les calculs ont été effectués pour la dernière heure du brouillard.*

la phase de développement, il n'y a pas de fortes distinctions entre les brouillards radiatifs et ceux dus aux affaissements de stratus.

La Figure 3.31(a) montre la répartition de la concentration totale (mode 1 + mode 2) en nombre de grosses particules (mesurée par l'OPC) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols (mesurée par le SMPS) obtenues seulement pendant les brouillards de type radiatifs (noir) et les brouillards dus aux affaissements de stratus (rouge) (cf. Tableau 3.7). Les données ont été moyennées toutes les heures. Une grande partie des épisodes de brouillard est apparue dans un environnement ayant une concentration en nombre de particules supérieure à 10000 part.cm⁻³. Nous constatons, tout d'abord, que l'OPC a enregistré, lors des épisodes de brouillard créés par affaissements de stratus, des concentrations en nombre de grosses particules plus variables que celles enregistrées pendant des épisodes de brouillard radiatif. En effet, les concentrations varient de 20 à 600 part.cm⁻³ dans les cas d'affaissement de stratus alors qu'elles varient de 100 à 400 part.cm⁻³ pour les brouillards radiatifs. Ensuite, nous remarquons également lors de brouillards radiatifs qu'une grande majorité des concentrations de grosses particules se trouvent pour des concentrations en aérosols importantes supérieures à 30000 part.cm⁻³. Les concentrations en grosses particules obtenues lors d'affaissement de stratus se répartissent entre des concentrations en aérosols de 2000 à 20000 part.cm⁻³.

La Figure 3.31(b) illustre la répartition de la concentration totale de grosses particules (mesurée par l'OPC) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols (mesurée par le SMPS) en fonction des différentes phases du brouillard : phase de formation (noir), phase de développement (bleu) et phase de dissipation (rouge). Cette figure ne met en évidence aucune influence de la concentration en nombre de particules d'aérosols

sur le nombre de particules de diamètre supérieur à $0.4 \mu m$ en fonction du cycle de vie du brouillard. Chaque phase du brouillard enregistre des concentrations en nombre de grosses particules très variables confirmant les remarques précédentes. Les concentrations en particules supérieures à $0.4 \mu m$ sont systématiquement supérieures à 100 cm^{-3} lors de la phase de dissipation quelque soit la concentration en nombre d'aérosols.

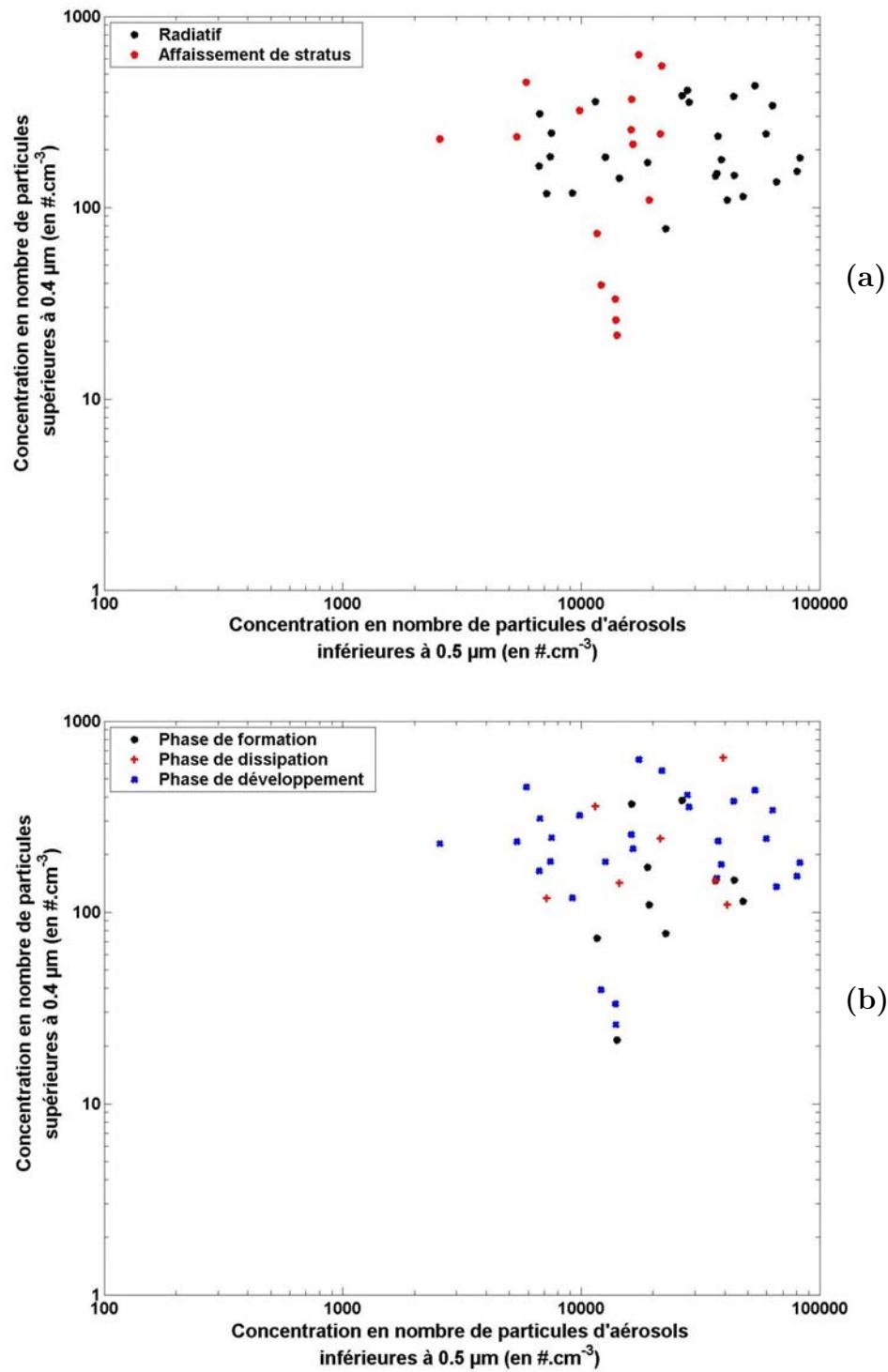


FIGURE 3.31 – Répartition de la concentration totale en nombre de grosses particules supérieures à 0.4 μm mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols inférieures à 0.5 μm mesurée par le SMPS selon le type de brouillard (a) et les phases du brouillard (b). Les données ont été moyennées toutes les heures dans le brouillard.

Comparaison avec la littérature

Cette description microphysique des mesures obtenues par l'OPC (Pallas welas 2000) apporte une description générale de certaines différences de concentration en nombre de grosses particules. Toutefois, elle a permis d'obtenir des valeurs des paramètres de la distribution lognormale (Tableau 3.11 à 3.13) de façon précise selon les phases du brouillard. Le brouillard peut avoir un effet de lessivage des aérosols après la phase de dissipation pouvant conduire à des propriétés différentes (concentrations en nombre, taille) des particules d'aérosols observées après la phase de dissipation. Seinfeld et Pandis (1998) révèlent que le brouillard accélère par 5 à 20 fois le dépôt des espèces majeures constituant l'aérosol comparé aux périodes sans brouillard (Waldman et Hoffmann, 1987). L'influence des brouillards sur le flux de dépôt humide a été étudiée dans quelques zones des États-Unis, notamment en Californie. Dans cette zone, à cause du faible taux de précipitations annuelles, les brouillards constituent la cause principale du dépôt des aérosols. De plus, Seinfeld et Pandis (1998) montrent également que la collecte des aérosols par les gouttelettes varie selon la distribution des aérosols pour un diamètre de gouttelette donnée. En effet, en fonction du rayon moyen et de l'écart-type des aérosols, le lessivage est plus ou moins efficace. Plus l'écart-type (σ) de la distribution est important, plus l'efficacité de la collecte de l'aérosol par la gouttelette sera grande. En ce qui concerne le rayon de la particule, le lessivage sera plus efficace pour les aérosols contenus dans le mode 1 ($< 0.05 \mu m$) et pour les aérosols supermicroniques ($> 0.5 \mu m$). Beaucoup de facteurs (dynamiques, radiatifs, facteurs de grande échelle...) peuvent également intervenir et agir sur la couche de brouillard et changer ses propriétés microphysiques. Les épisodes de brouillard dus aux affaissements de stratus enregistrent une variabilité plus importante de concentrations en nombre de gouttelettes que les brouillards radiatifs.

Récapitulatif

Les analyses effectuées montrent également que le spectre granulométrique des particules supérieures à $0.4 \mu m$ est composé de 2 populations : le mode 1 est systématiquement présent et, en général, enregistre les plus fortes concentrations quelque soit l'épisode de brouillard considéré et quelque soit le type de brouillard. Le rayon modal moyen évolue très faiblement pendant le cycle de vie du brouillard et est toujours inférieur à $0.5 \mu m$. La concentration moyenne du mode 2 varie fortement en fonction des phases du brouillard (formation, développement et dissipation). Le processus d'activation pourrait en être la cause entre les phases de formation et de développement. Il est important de signaler que la concentration de particules supérieures à $0.4 \mu m$ mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) varie fortement lors de la phase de développement du brouillard.

3.5.4 Relation entre particules d'aérosols, grosses particules et visibilité

L'étude précédente a montré que les particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) présentaient généralement 2 modes avec un premier mode marqué par les plus fortes concentrations et un second présentant de fortes variations de concentration. Il est bien connu que la taille et la concentration en grosses particules (aérosols humides + gouttelettes) influencent fortement la visibilité (Gultepe *et al.*, 2006). Nous allons donc essayer de montrer en se basant sur les données observées les différentes corrélations existantes entre la concentration en nombre de grosses particules, la concentration en nombre de particules d'aérosols et la visibilité. Dans la suite de ce paragraphe, les données présentées ont été moyennées toutes les heures. Nous rappelons que "grosses particules" qualifient les particules de diamètre supérieur à $0.4 \mu\text{m}$ mesurées par l'OPC.

Relation entre la concentration en nombre de particules d'aérosols et la concentration en nombre de grosses particules

La Figure 3.32 montre la répartition de la concentration totale (mode 1 + mode 2) en nombre de grosses particules mesurée par l'OPC en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols mesurée par le SMPS obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG. Ainsi, chaque point noir représente une concentration en nombre de grosses particules moyennée sur 1 heure correspondant à la concentration en nombre de particules d'aérosols mesurée au même instant. La courbe verte représente une moyenne glissante de la concentration de grosses particules en fonction de la concentration d'aérosols. Premièrement, en comparant la Figure 3.32 aux Figures 3.31a et Figures 3.31b, nous constatons que la grande majorité des faibles concentrations de grosses particules ($< \text{à } 10 \text{ part.cm}^{-3}$) mesurées par l'OPC s'effectue hors des épisodes de brouillard. Deuxièmement, nous remarquons clairement que la concentration en nombre de grosses particules augmente avec l'augmentation de la concentration en nombre de particules d'aérosols. Cette croissance du nombre de grosses particules n'est pas linéaire et semble présenter une saturation lorsque la concentration en aérosols augmente (supérieure à $30000 \text{ part.cm}^{-3}$). De plus, pour une concentration d'aérosols donnée, la concentration en nombre de grosses particules présente une très grande variabilité. Elle est d'environ deux ordres de grandeurs quand la concentration en particules d'aérosols devient supérieure à $3000 \text{ part.cm}^{-3}$.

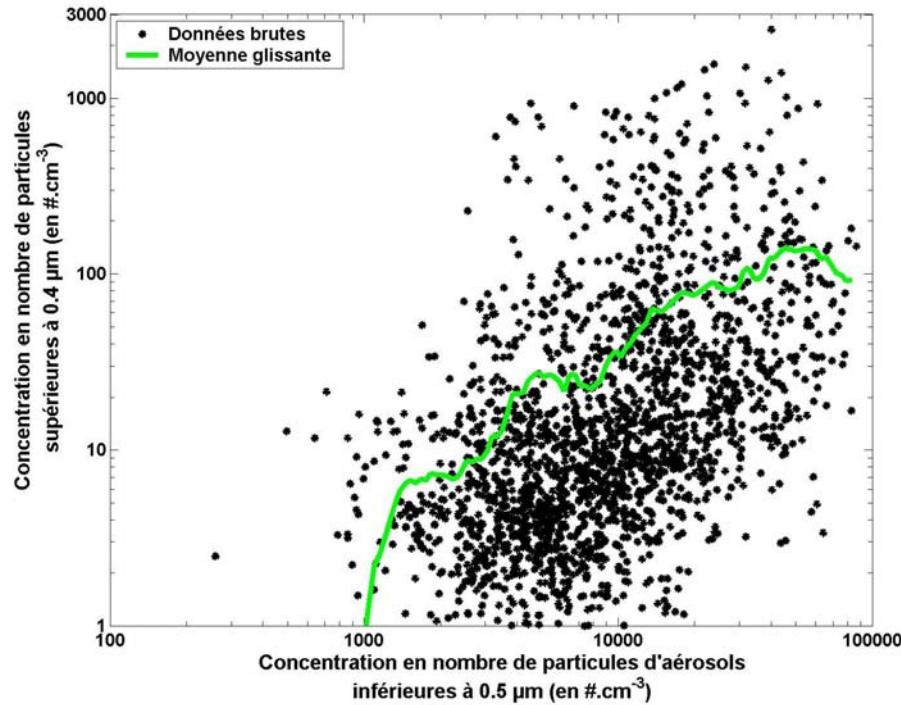


FIGURE 3.32 – Répartition de la concentration totale en nombre de grosses particules (supérieures à $0.4 \mu\text{m}$) mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols (inférieures $0.5 \mu\text{m}$) mesurée par le SMPS obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG.

Relation entre la concentration en nombre de particules d'aérosols, la concentration en nombre de grosses particules et la visibilité horizontale moyenne

A ce stade de l'étude microphysique, il semble indispensable de s'intéresser à la relation entre la concentration en nombre d'aérosols, la concentration en nombre de grosses particules et la visibilité moyenne observée. La Figure 3.33 est identique à la Figure 3.32 mais nous avons discriminé les données en fonction de la visibilité horizontale moyennée sur 1 heure. Nous mettons ainsi en évidence que plus la concentration en nombre de grosses particules augmente plus la visibilité diminue. De plus, nous pouvons déterminer des intervalles de concentrations en nombre de grosses particules selon les valeurs de visibilité caractérisant le type d'évènement :

- visibilité $> 5000 \text{ m}$, hors brouillard, la concentration en nombre de grosses particules est comprise entre 1 et 100 part.cm^{-3} ;
- $1000 \text{ m} < \text{visibilité} < 5000 \text{ m}$, brume, la concentration en nombre de grosses particules est comprise entre 50 et 300 part.cm^{-3} ;
- $\text{visibilité} < 1000 \text{ m}$, brouillard, la concentration en nombre de grosses particules est comprise entre 100 et $1500 \text{ part.cm}^{-3}$;
- $\text{visibilité} < 200 \text{ m}$, brouillard dense, la concentration en nombre de grosses particules est comprise entre 400 et $1500 \text{ part.cm}^{-3}$.

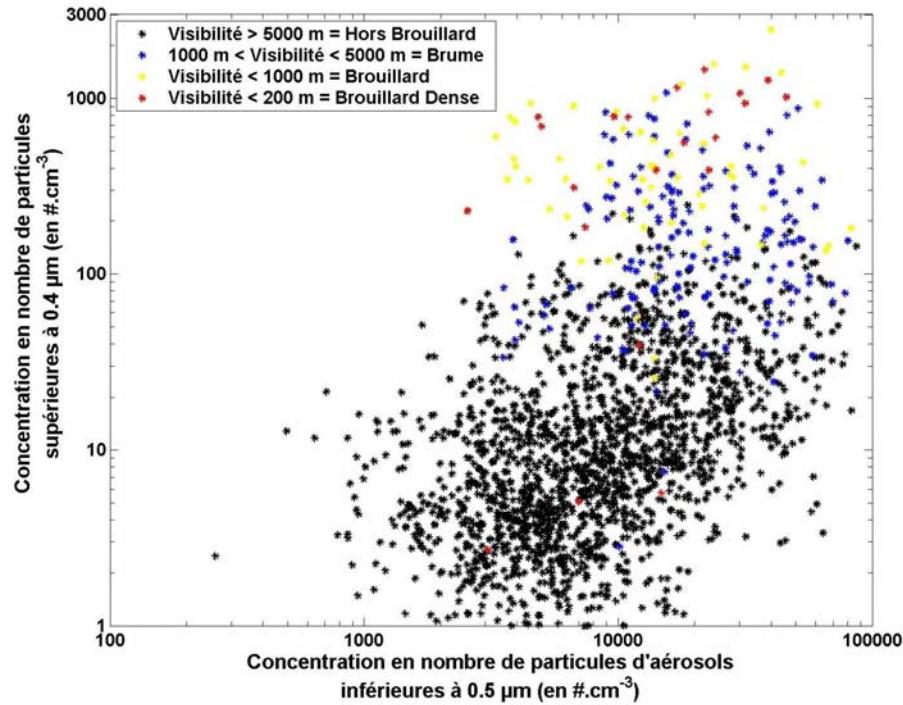


FIGURE 3.33 – Répartition de la concentration en nombre de grosses particules (supérieures à $0.4 \mu\text{m}$) mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols (inférieures à $0.5 \mu\text{m}$) mesurée par le SMPS et de la visibilité horizontale obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG.

Relation entre la concentration en nombre de particules d'aérosols, la concentration et la taille de grosses particules

Compte tenu des remarques précédentes et de l'étude effectuée dans la section 3.5.2 mettant en évidence deux modes de particules mesurées par l'OPC, nous présentons maintenant les données en tenant compte de la taille des grosses particules. Nous avons ainsi discriminé les données de concentrations en nombre de grosses particules de rayon inférieur à $0.9 \mu\text{m}$ représentant le mode 1 (Figure 3.34a) et les concentrations en nombre de grosses particules de rayon supérieur à $0.9 \mu\text{m}$ correspondant au mode 2 (Figure 3.34b).

Les concentrations en nombre de particules de rayon inférieur à $0.9 \mu\text{m}$ ont une très forte variabilité (Figure 3.34a). Elles varient de 1 à plus de $1000 \text{ part.cm}^{-3}$. Les plus fortes valeurs de concentrations se situent pour des concentrations en nombre de particules d'aérosols élevées allant de 20000 à 50000 part.cm^{-3} . La très grande proportion des concentrations en nombre de particules de rayon inférieur à $0.9 \mu\text{m}$ se situe pour des valeurs inférieures à 10 part.cm^{-3} et pour des concentrations en nombre d'aérosols comprises entre 2000 et 10000 part.cm^{-3} . Mais, pour des concentrations en nombre d'aérosols comprises entre 10000 et 40000 part.cm^{-3} environ, les valeurs de concentrations se trouvent principalement entre 10 et 100 part.cm^{-3} . Enfin, une légère diminution de la concentration de particules de rayon inférieur à $0.9 \mu\text{m}$ est visible pour des concentrations

en nombre d'aérosols dépassant 50000 aérosols.cm⁻³.

En ce qui concerne les particules de rayon supérieur à 0.9 μm (Figure 3.34b), la variabilité est moins importante que celle observée pour les particules de rayon inférieur à 0.9 μm . Les données se répartissent en deux blocs. Tout d'abord, un premier ensemble concerne les valeurs de faibles concentrations de particules, inférieures à 10 part.cm⁻³, se situant pour des concentrations d'aérosols allant de 1000 à 30000 part.cm⁻³. Ensuite, le deuxième ensemble concerne les concentrations comprises entre 50 et 500 part.cm⁻³. Le nombre de cas est moins important, puisqu'il correspond à des cas de brouillard se formant pour des concentrations d'aérosols comprises entre 3000 et 40000 part.cm⁻³ (cf. Figure 3.33). On remarque une diminution du nombre de grosses particules après une concentration d'aérosols de 40000 part.cm⁻³. Entre ces deux ensembles, on observe très peu de cas. Ceci met en évidence la très grande variabilité de concentrations de "gouttelettes" que l'on peut rencontrer dans un brouillard. Ce deuxième ensemble présente des valeurs de concentrations de gouttelettes comprises entre 50 et 500 déjà rencontrées dans la littérature (Wendish *et al.*, 1998; Miles *et al.*, 2000).

Par comparaison avec les valeurs de la littérature présentée ci-dessus, les concentrations de particules de la figure 3.34a et les concentrations du mode 1 présentées dans les tableaux 3.11 à 3.13 ne semblent pas correspondre à des gouttelettes mais à des aérosols humides non activés. A ce stade de la description, seules des suppositions peuvent être émises, il apparaît donc indispensable pour notre étude de pouvoir discriminer les gouttelettes des aérosols humides afin de connaître précisément les réelles concentrations en nombre de gouttelettes mesurées par l'OPC. Ce point sera détaillé dans la partie 3.7.2.

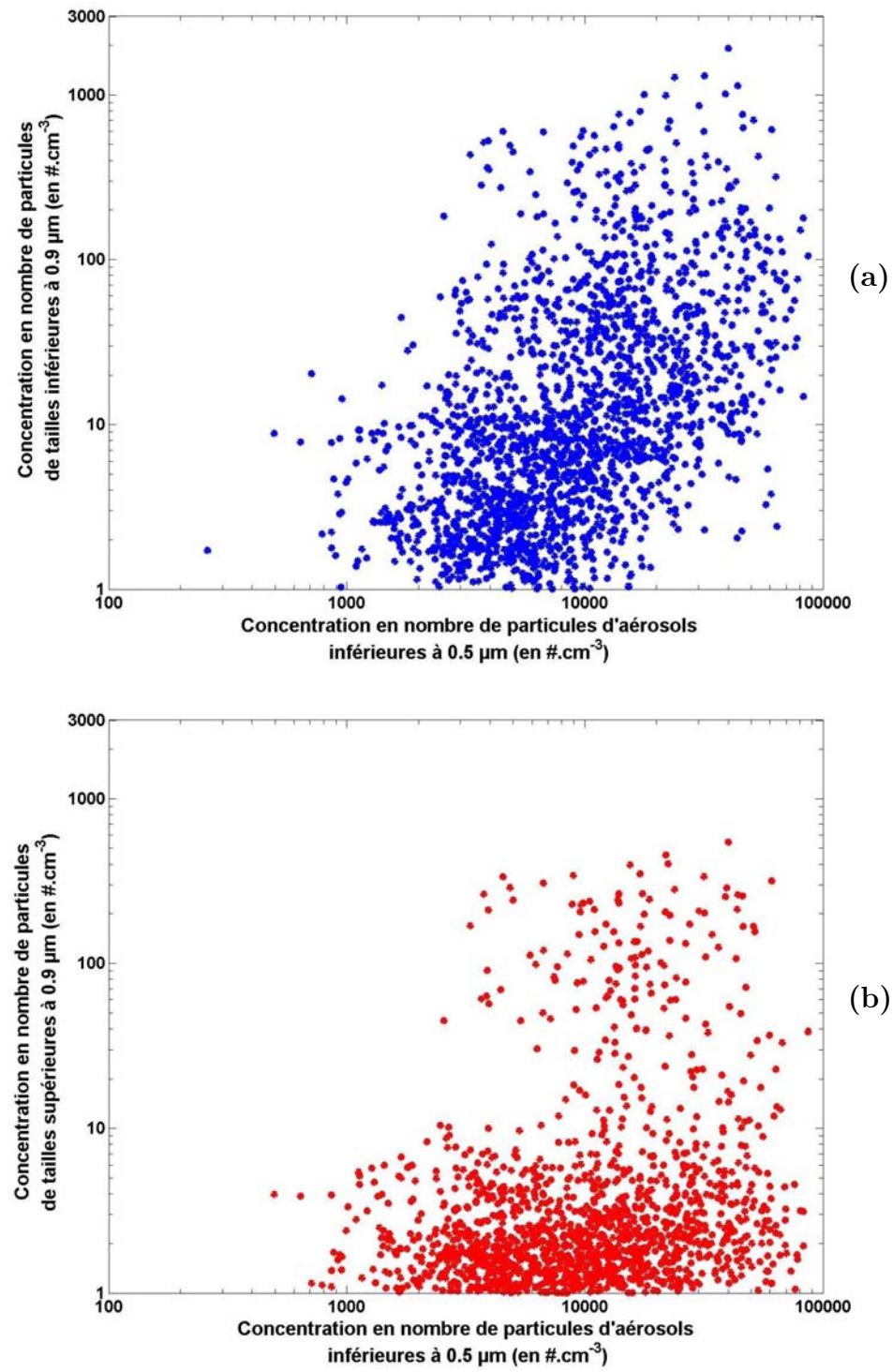


FIGURE 3.34 – Répartition de la concentration en nombre de particules de rayon inférieur à 0.9 μm représentant le mode 1 (a) et de rayon supérieur à 0.9 μm représentant le mode 2 (b) mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la concentration en nombre de particules d'aérosols mesurée par le SMPS obtenues tout au long de la campagne de mesures ToulouseFOG.

Relation entre la concentration en nombre des grosses particules et la visibilité horizontale

Nous nous intéressons désormais à la relation entre la concentration en nombre et la taille des grosses particules mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) et la visibilité horizontale. Ceci nous permet de voir l'impact de la taille des particules mesurées sur la visibilité.

Les Figures 3.35a et 3.35b illustrent la répartition de la concentration en nombre de grosses particules de rayon supérieur (rouge) et de rayon inférieur (bleu) à $0.9 \mu m$ mesurée par l'OPC en fonction de la visibilité. Afin d'étudier les fluctuations de la visibilité, les valeurs de visibilité maximale et minimale ont également été étudiées. Les données sont moyennées toutes les heures.

Tout d'abord, en conditions hors brouillard pour une visibilité supérieure à 5000 m, la visibilité diminue linéairement avec l'augmentation du nombre de particules quelque soit leurs tailles (inférieures ou supérieures à $0.9 \mu m$). Pour des particules de rayon inférieur à $0.9 \mu m$, le nombre de particules est compris entre 1 à 100 cm^{-3} pour une visibilité minimale supérieure à 5000 m. Il varie de 1 à 400 cm^{-3} pour une visibilité maximale supérieure à 5000 m. Au contraire, pour des particules de rayon supérieur à $0.9 \mu m$, le nombre de particules est plus faible, il est compris entre 1 à 10 cm^{-3} pour la visibilité minimale et entre 1 à 30 cm^{-3} pour la visibilité maximale.

Ensuite, en période de brume ($1000 \text{ m} < \text{visibilité} < 5000 \text{ m}$), pour les particules de rayon inférieur à $0.9 \mu m$, le nombre varie de 10 à 400 cm^{-3} pour une visibilité minimale comprise entre 1000 et 5000 m et de 100 à 700 cm^{-3} pour une visibilité maximale comprise entre 1000 et 5000 m. Pour les particules de rayon supérieur à $0.9 \mu m$, la concentration est également plus faible, elle varie de 1 à 30 part.cm^{-3} si la brume est discontinue (avec une visibilité minimale intérieure à 5000 m et une visibilité maximale supérieure à 5000 m) et varie de 2 à 100 cm^{-3} si la brume a persisté durant toute l'heure (avec une visibilité maximale toujours inférieure à 5000 m).

En situation de brouillard, lorsque la visibilité est inférieure à 1000 m ou de brouillard dense pour une visibilité inférieure à 200 m, la dispersion de la concentration en nombre de particules est plus importante. A partir d'une visibilité minimale intérieure à 200 m, les concentrations varient principalement de 100 à $1000 \text{ part.cm}^{-3}$ pour les particules de rayon inférieur à $0.9 \mu m$ alors qu'elles varient de 2 à 500 part.cm^{-3} pour les particules de rayon supérieur à $0.9 \mu m$. Pour une visibilité maximale inférieure à 200 m (Figure 3.35b), le nombre de cas se raréfie, seule une dizaine de cas est observée. La présence de ces concentrations de particules suggèrent que certains épisodes de brouillard dense ont duré suffisamment longtemps pour que la visibilité maximale diminue et franchisse la limite des 200 m. De plus, cela signifie que la visibilité maximale est restée inférieure à 200 m au moins pendant 1 heure du fait que les données sont moyennées sur 1 heure.

Le Tableau 3.14 récapitule les principales observations faites à partir de la Figure 3.35 et permet d'affiner les résultats tirés de la Figure 3.33 en prenant en compte la taille des particules mesurée par l'OPC. A partir du tableau 3.14, nous constatons que, quelque soit la visibilité, le nombre de particules ayant un rayon supérieur à $0.9 \mu m$ est toujours plus faible que celui pour les particules de rayon inférieur à $0.9 \mu m$.

La connaissance de la visibilité maximale et minimale permet d'identifier une plus grande variabilité de concentration en nombre de particules. Cette étude a permis de montrer l'influence de la concentration en nombre de particules mais aussi l'influence de la taille des particules sur la diminution de la visibilité. Par exemple, à l'aide du tableau 3.14, en période de brouillard dense et pour des particules de rayon inférieur à $0.9 \mu\text{m}$, le nombre de particules est plus important (environ 800 cm^{-3}) conduisant à une diminution de la visibilité maximale. Au contraire, pour des particules de rayon supérieur à $0.9 \mu\text{m}$, le nombre de particules est 4 fois plus faible (environ 200 cm^{-3}) par rapport à celui observé pour des particules de rayon inférieur à $0.9 \mu\text{m}$. Toutefois, la visibilité maximale a diminué en-dessous de 200 m. Cette diminution est essentiellement due à la taille des particules.

Tailles des Particules (μm)	Visi. > 5000 Hors. Brouill.		1000 < Visi. < 5000 Brume		Visi. < 1000 Brouillard		Visi. < 200 Brouill. dense	
	Visi. Mini.	Visi. Maxi.	Visi. Mini.	Visi. Maxi.	Visi. Mini.	Visi. Maxi.	Visi. Mini.	Visi. Maxi.
Rayon < 0.9	1-100	1-400	10-400	100-700	100-700	200-900	100-1000	~800
Rayon > 0.9	1-10	1-30	1-30	2-100	2-200	30-300	2-500	~200

TABLE 3.14 – Valeurs de concentrations de grosses particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) de rayon inférieur et supérieure à $0.9 \mu\text{m}$ en fonction des visibilités minimales et maximales moyennées sur 1 heure en situation hors brouillard, de brume, de brouillard et de brouillard dense.

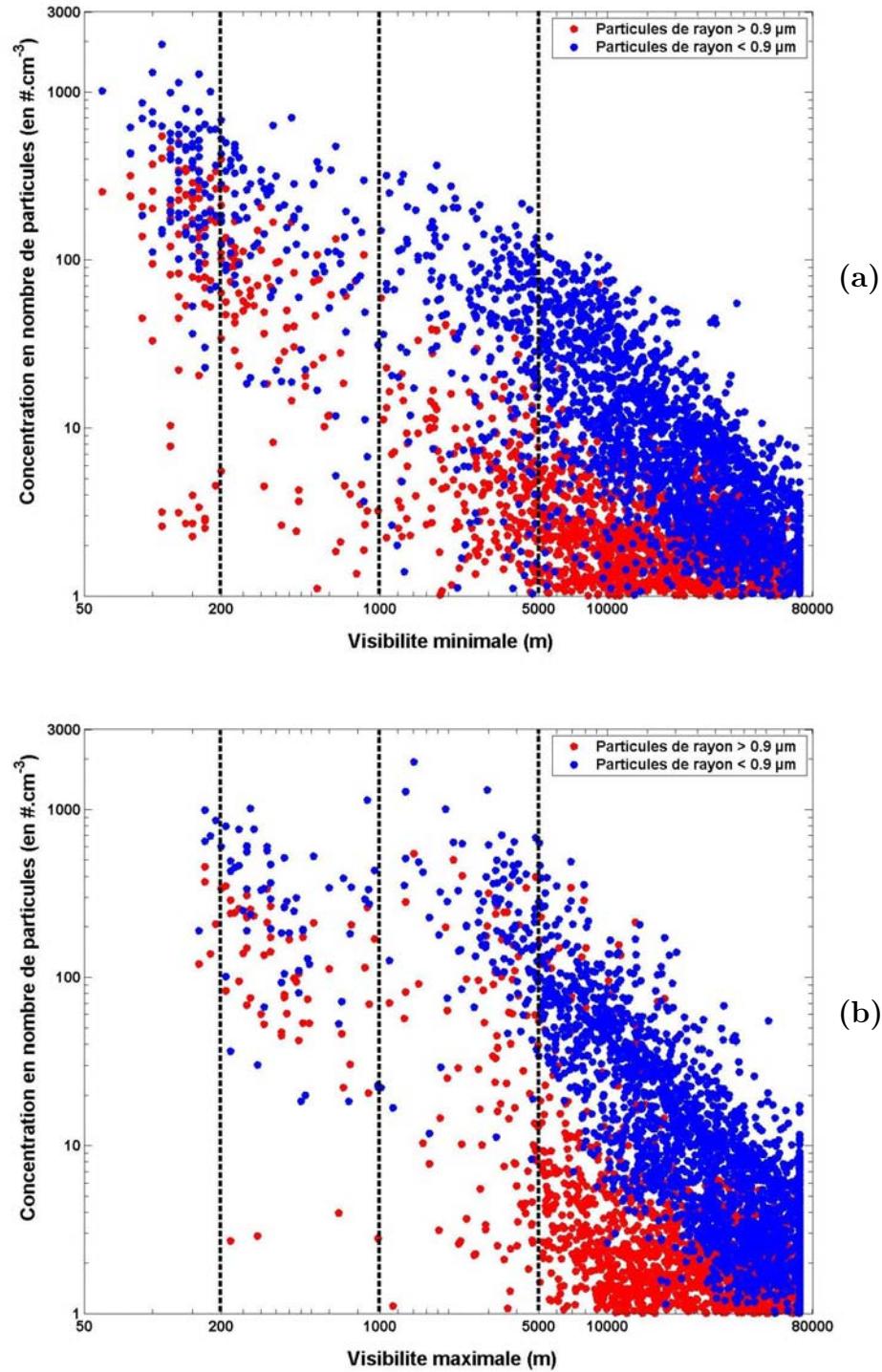


FIGURE 3.35 – Répartition de la concentration en nombre de particules de rayon supérieur et inférieur à $0.9 \mu\text{m}$ mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) en fonction de la visibilité horizontale minimale (a) et maximale (b) moyennée sur 1 heure. Les barres verticales noires correspondent aux limites météorologiques de visibilité caractérisant un brouillard dense (visibilité $< 200 \text{ m}$), un brouillard (visibilité $< 1000 \text{ m}$), une brume ($1000 \text{ m} < \text{visibilité} < 5000 \text{ m}$), hors brouillard (visibilité $> 5000 \text{ m}$).

3.6 Comportement de l'aérosol sur trois cas d'étude

A la suite des observations tirées de l'étude microphysique effectuée précédemment pour les deux campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG, une étude spécifique des spectres granulométriques des aérosols mesurés par le SMPS a été menée sur 3 cas pour mettre en évidence le comportement des aérosols avant, pendant et après un évènement de brouillard.

3.6.1 Caractéristiques de l'aérosol avant les épisodes de brouillard

Les Figures 3.36 à 3.38 montrent l'évolution du spectre granulométrique de l'aérosol de 12:00 UTC (précédent l'évènement) jusqu'à l'apparition du brouillard pour trois épisodes : deux épisodes de ToulouseFOG le 19-20 Janvier 2008 et le 25-26 Janvier 2008 et un épisode de ParisFOG le 18-19 Février 2007. Ces 3 épisodes sont des brouillards radiatifs. Ils se sont formés dans des situations géographiques différentes (à Toulouse et en région Parisienne) et présentent des concentrations totales différentes en nombre de particules d'aérosols. Chaque graphique représente un spectre granulométrique moyenné sur une heure. Ces trois épisodes permettent de compléter les observations et les descriptions microphysiques effectuées pour l'ensemble des cas de brouillard étudiés lors des deux campagnes. Les Tableaux 3.15 à 3.17 montrent des valeurs de concentration en nombre d'aérosols, le rayon modal (attention nous considérons le rayon modal dans la description contrairement aux figures dans lesquelles le diamètre est représenté) et l'écart-type σ de la distribution lognormale des aérosols entre 13:00 et 14:00 UTC, entre 17:00 et 18:00 UTC et 1 heure avant chaque épisode de brouillard définis précédemment.

Cette étude permet de représenter trois principaux comportements de l'aérosol (Figures 3.36 à 3.38) selon le moment de la journée.

Tout d'abord, entre 12:00 et 16:00 UTC, la concentration en nombre de particules est relativement faible, expliquée par une couche limite bien développée (due à la diffusion turbulente) dans laquelle les aérosols émis en surface se diluent sur une épaisseur plus grande. Ceci est confirmé par les résultats du Tableau 3.15 qui montre également les faibles concentrations pour les 2 modes d'aérosols sauf pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008. En effet, le mode 2 présente une concentration plus élevée de $4000 \text{ part.cm}^{-3}$ contrairement aux 2 autres épisodes. Cette forte concentration est expliquée par le fait que la distribution a un écart-type élevé de 2.24 et présente un rayon modal d'une valeur de 22.4 nm plus petite que ceux des deux autres épisodes. Cet évènement ne possède que des particules de tailles plus petites par rapport aux 2 autres épisodes pouvant être expliqué par la présence de sources d'émissions très proches du site d'observation de Météo-France à ce moment-l de la journée (présence de la rocade 2 X 2 voies). Malgré l'épaississement de la couche limite, les sources d'émissions à proximité influencent fortement la concentration en nombre d'aérosols pour l'évènement du 19-20 Janvier 2008.

A partir de 16:00 UTC, la concentration en particules fines submicroniques augmente brutalement due à la diminution de l'épaisseur de la couche limite et aux émissions importantes en provenance du trafic dense à proximité. Ce phénomène est clairement visible pour l'épisode du 25-26 Janvier 2008 (Figure 3.37) durant lequel la concentration nor-

Episode Brouillard	Début et Fin (UTC)	Mode 1			Mode 2		
		N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ
19-20 Janv.	13:00						
2008 (ToulouseFOG)	14:00	810	6.8	1.23	4000	22.4	2.24
25-26 Janv.	13:00						
2008 (ToulouseFOG)	14:00	2800	8.9	1.48	155	48.4	1.84
18-19 Fév.	13:00						
2007 (ParisFOG)	14:00	1700	9.3	1.75	225	45.5	1.80

TABLE 3.15 – *Caractéristiques de la distribution lognormale des aérosols mesurées par le SMPS entre 13:00 et 14:00 UTC.*

malisée augmente de 15 000 part.cm⁻³ à 16:00 UTC à 45000 part.cm⁻³ à 17:00 UTC. En 1 heure, la concentration normalisée en particules a augmenté de 30000 part.cm⁻³. Le Tableau 3.16 montre cette forte augmentation de la concentration en nombre d'aérosols submicroniques dans les deux modes entre le début et la fin de l'après-midi. Seules des émissions locales importantes peuvent expliquer une augmentation aussi rapide en aérosols fins. Cependant, les valeurs de concentrations varient selon les épisodes. En effet, l'épisode du 18-19 Février enregistre des concentrations en nombre d'aérosols plus faibles que les deux autres épisodes. Cette variabilité est expliquée par le fait que les mesures ont été effectuées dans des lieux géographiques différents. Il est important de noter également que l'épisode du 25-26 Janvier 2008 enregistre dans le mode 2 une concentration moyenne plus importante de 33700 part.cm⁻³ et un rayon modal moyen de 27.5 nm plus petit par rapport aux 2 autres événements. Des émissions d'intensité différente pourraient expliquer cette divergence.

Episode Brouillard	Début et Fin (UTC)	Mode 1			Mode 2		
		N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ
19-20 Janv.	17:00						
2008 (ToulouseFOG)	18:00	18600	11.3	1.46	10200	37.2	1.71
25-26 Janv.	17:00						
2008 (ToulouseFOG)	18:00	26000	8	1.38	33700	27.5	2.23
18-19 Fév.	17:00						
2007 (ParisFOG)	18:00	4000	8.7	1.51	7300	42	1.84

TABLE 3.16 – *Idem Tableau 3.15 mais entre 17:00 et 18:00 UTC.*

Entre la fin de l'après-midi et avant la formation du brouillard (pour chacun des épisodes), nous constatons systématiquement que les 2 modes d'aérosol augmentent en taille (Tableau 3.17). Cette augmentation de la taille des particules peut être expliquée soit par les processus de coagulation (collision entre les aérosols), soit par le transfert gaz-particule (nucléation + condensation) qui est prépondérant en milieu pollué. A l'aide des Figures 3.36 à 3.38, nous observe que les concentrations d'aérosols sont les plus élevées dans le mode 2 au cours de la soirée. Ces fortes concentrations du mode 2 peuvent être dues à

la fois à la diminution de l'épaisseur de la couche limite dans la soirée, aux processus de coagulation entre les aérosols (pouvant aussi expliquer la diminution des concentrations du mode 1) et aux émissions locales persistantes. Il est important de bien caractériser ce mode 2 (mode accumulation) du spectre granulométrique de l'aérosol avant la formation du brouillard car c'est principalement le mode activable. Les aérosols contenus dans le mode 1 ont des tailles trop petites et seront négligeables dans la formation des gouttelettes nuageuses.

Episode Brouillard	Début et Fin (UTC)	Mode 1			Mode 2		
		N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ
19-20 Janv.	19:00						
2008 (ToulouseFOG)	20:00	17700	12.8	1.50	24800	38.7	1.67
25-26 Janv.	21:00						
2008 (ToulouseFOG)	22:00	24200	23.4	2.39	14300	46.2	1.54
18-19 Fév.	21:00						
2007 (ParisFOG)	22:00	8600	16.5	1.57	8300	55	1.59

TABLE 3.17 – *Idem Tableau 3.15 mais 1 heure avant la formation de chaque épisode de brouillard considéré.*

Il apparaît clairement, lors de la description de ces 3 évènements de brouillard radiatif, une grande variabilité des caractéristiques des aérosols (notamment en concentration et en taille) à l'échelle de la journée. Cette variabilité montre l'importance de coupler un modèle météorologique et un module d'aérosol afin de bien représenter l'évolution journalière des aérosols. De plus, la connaissance de la concentration en nombre de particules d'aérosols et de la taille paraît indispensable pour connaître l'environnement dans lequel le brouillard peut se former et d'appréhender au mieux l'impact de l'aérosol sur le cycle de vie du brouillard.

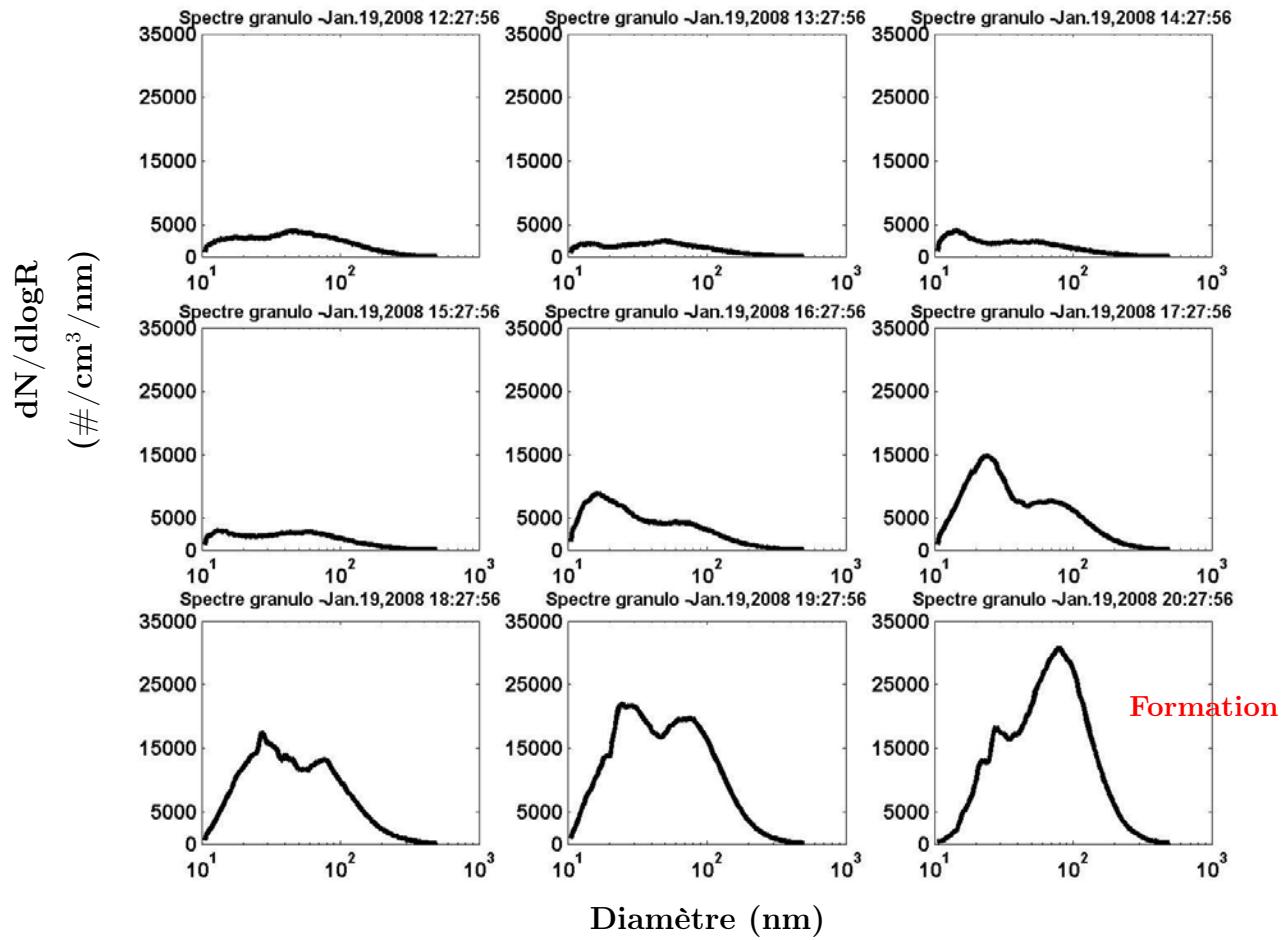


FIGURE 3.36 – Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire avant la formation du brouillard pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.

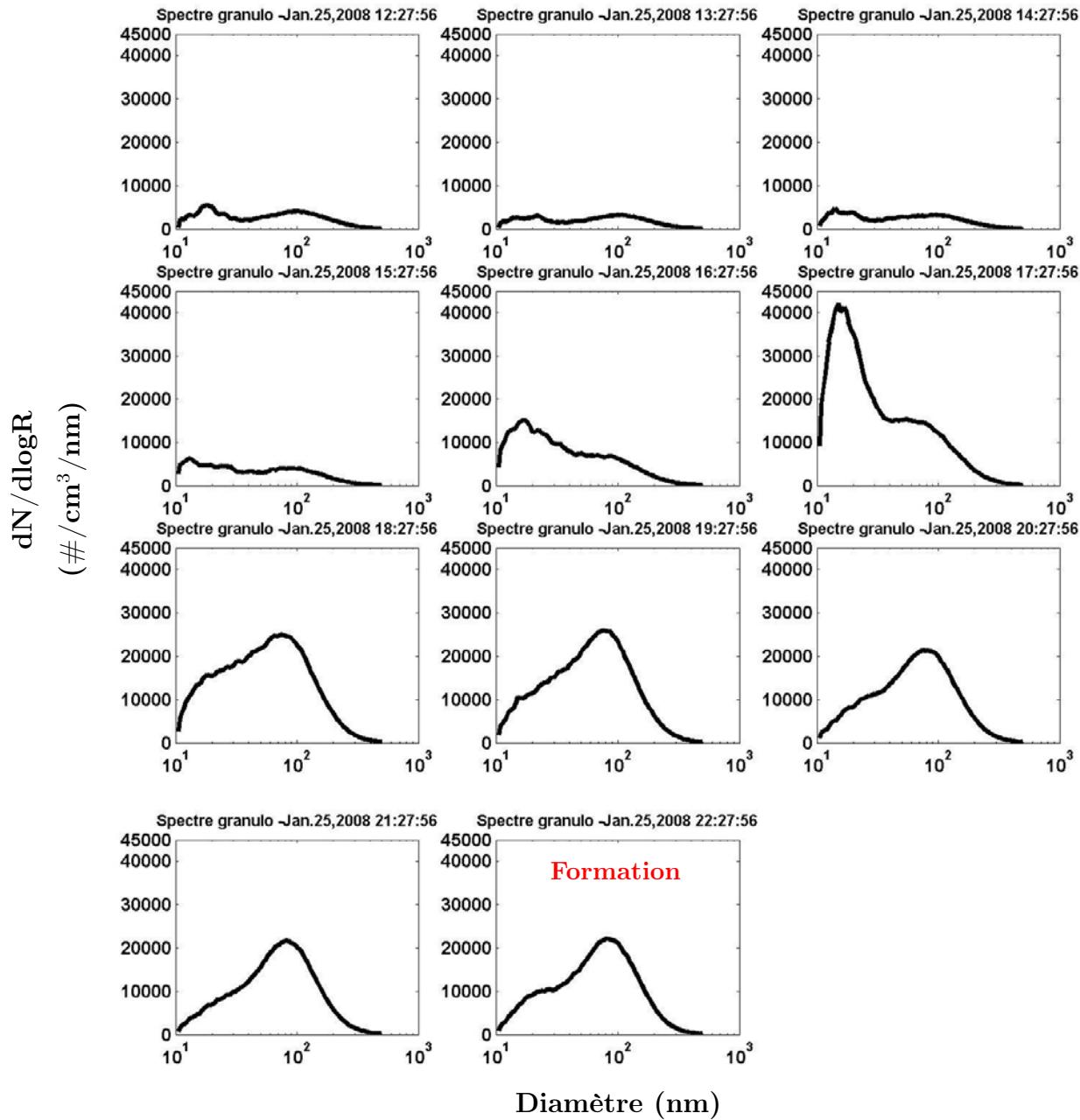


FIGURE 3.37 – Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire avant la formation du brouillard pour l'épisode du 25-26 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.

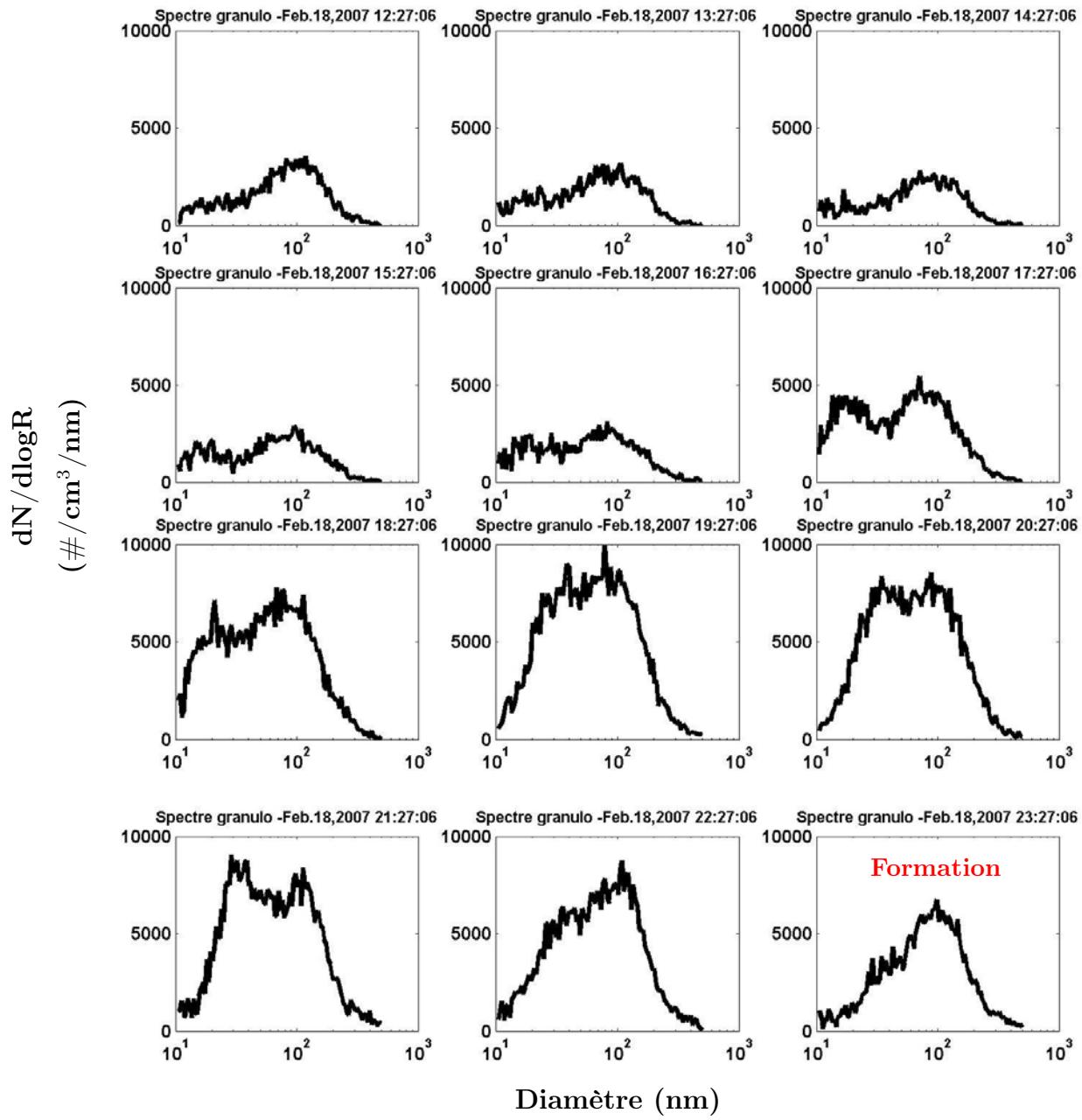


FIGURE 3.38 – *Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire avant la formation du brouillard pour l'épisode du 18-19 Février 2007 observé pendant ParisFOG.*

3.6.2 Caractéristiques de l'aérosol pendant et après les épisodes de brouillard

Les Figures 3.39 à 3.41 présentent l'évolution du spectre granulométrique de l'aérosol mesuré par le SMPS pendant les phases de formation, de développement et après la phase de dissipation du brouillard pour les trois épisodes sélectionnés précédemment. Ces figures sont complétées par les tableaux 3.18, 3.19 et 3.20 qui présentent respectivement, les caractéristiques de la distribution lognormale des aérosols lors de la phase de formation, pendant le brouillard et après la phase de dissipation.

Le comportement des aérosols est identique quelque soit l'évènement du brouillard considéré. Nous constatons systématiquement une diminution des aérosols fins (mode 1) pendant les phases de formation et de développement du brouillard. Les caractéristiques des aérosols avant la formation du brouillard et lors de la phase de formation sont relativement identiques. Seule la concentration du mode 2 de l'épisode du 25-26 Janvier 2008 a fortement augmenté probablement, pour les raisons évoquées précédemment (diminution de l'épaisseur de la couche limite dans la soirée, processus de coagulation entre les aérosols ou encore émissions locales persistantes en début de nuit). Le processus de coagulation peut expliquer la diminution de la concentration en nombre d'aérosols du mode 1 qui ont grossi et se retrouvent dans le mode 2.

Episode Brouillard	Début et Fin (UTC)	Mode 1			Mode 2		
		N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ
19-20 Janv. 2008 (ToulouseFOG)	20:00 21:00						
25-26 Janv. 2008 (ToulouseFOG)	22:00 23:00	12500	13	1.39	39000	39.5	1.66
18-19 Fév. 2007 (ParisFOG)	22:00 23:00	20000	17.5	2.18	14300	48.2	1.61
		7800	18.5	1.82	7400	56.5	1.58

TABLE 3.18 – *Caractéristiques de la distribution lognormale des aérosols mesurées par le SMPS pendant la formation de chaque épisode de brouillard considérés.*

Entre les phases de formation et de développement du brouillard, de fortes différences sont observées. En effet, les concentrations en aérosols des 2 modes diminuent fortement quelque soit l'épisode et le rayon modal du mode 2 augmente légèrement (Tableau 3.18). A titre d'exemple, lors de l'évènement du 19-20 Janvier 2008 représenté sur la Figure 3.39, la concentration du mode 2 diminue brutalement de 25 000 à 23:00 UTC à environ 10000 part.cm⁻³ à 02:00 UTC. Cette diminution de la concentration du mode 2 peut être expliquée par le processus d'activation et/ou du lessivage des particules d'aérosol. Cette diminution de la concentration en nombre d'aérosols du mode 2 se poursuit progressivement lors de la phase de développement (Figure 3.39 à Figure 3.41). Seul l'épisode du 19-20 Janvier 2008 enregistre une concentration relativement identique pour le mode 1 entre la phase de formation et la phase de développement (Tableau 3.19). Cette stabilité de la concentration lors de cet évènement est probablement due à des émissions locales se

produisant durant la soirée pendant laquelle le brouillard s'est formé. De plus, cet épisode s'est formé plus tôt dans la soirée que les 2 autres événements. Tout au long de la phase de développement et quelque soit l'évènement de brouillard, la taille de l'aérosol (mode 1 et mode 2) reste relativement identique, probablement à cause de l'augmentation du mélange turbulent homogénéisant la couche de brouillard.

Episode Brouillard	Début et Fin (UTC)	Mode 1			Mode 2		
		N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ
19-20 Janv. 2008 (ToulouseFOG)	21:00 05:00						
		15000	26.4	2.30	12380	49	1.52
25-26 Janv. 2008 (ToulouseFOG)	23:00 10:00						
		4600	13	1.72	12000	49	1.68
18-19 Fév. 2007 (ParisFOG)	23:30 07:30						
		4600	38	2.42	2700	57.5	1.45

TABLE 3.19 – *Idem Tableau 3.18 mais lors de la phase de développement du brouillard. Les calculs ont été effectués sur toute la phase de développement.*

Après la dissipation du brouillard et quelque soit l'épisode, les concentration en aérosols des 2 modes sont beaucoup plus faibles que celles observées avant et pendant les phases de formation et de développement du brouillard. La couche de brouillard semble agir comme un "nettoyeur" de l'atmosphère conduisant à un fort dépôt des aérosols en surface. Les Figures 3.39 à Figure 3.41 mettent en évidence une légère augmentation de la concentration en nombre d'aérosols fins dans la matinée provenant de sources d'émissions (trafic automobile) proches des sites de mesures notamment pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008. Cette faible augmentation est très peu visible pour les épisodes du 25-26 Janvier 2008 et du 18-19 Février 2007 à cause de l'heure avancée de la dissipation du brouillard dans la matinée.

Episode Brouillard	Début et Fin (UTC)	Mode 1			Mode 2		
		N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ	N (#.cm ⁻³)	R (nm)	σ
19-20 Janv. 2008 (ToulouseFOG)	06:00 07:00						
		7800	19.5	2.55	4500	46.5	1.58
25-26 Janv. 2008 (ToulouseFOG)	11:00 12:00						
		2200	25	2.08	4900	51.4	1.72
18-19 Fév. 2007 (ParisFOG)	09:00 10:00						
		1640	11.3	1.42	5200	45.5	1.86

TABLE 3.20 – *Idem Tableau 3.18 mais après la phase de dissipation du brouillard.*

Cette description microphysique montre clairement une forte interaction entre aérosols et couche de brouillard. Les mesures nous ont permis d'estimer la variabilité des propriétés de l'aérosol, ce qui sera très utile pour des études de sensibilité du brouillard aux aérosols. Toutes ces remarques sont en accord avec des études antérieures, notamment celles effectuées sur la campagne de mesures Pô Valley en atmosphère très fortement polluée

(Tableau 3.1). Par exemple, Fuzzi *et al.* (1998) a montré que le brouillard affecte fortement la concentration et le spectre granulométrique des aérosols contenues dans l'atmosphère.

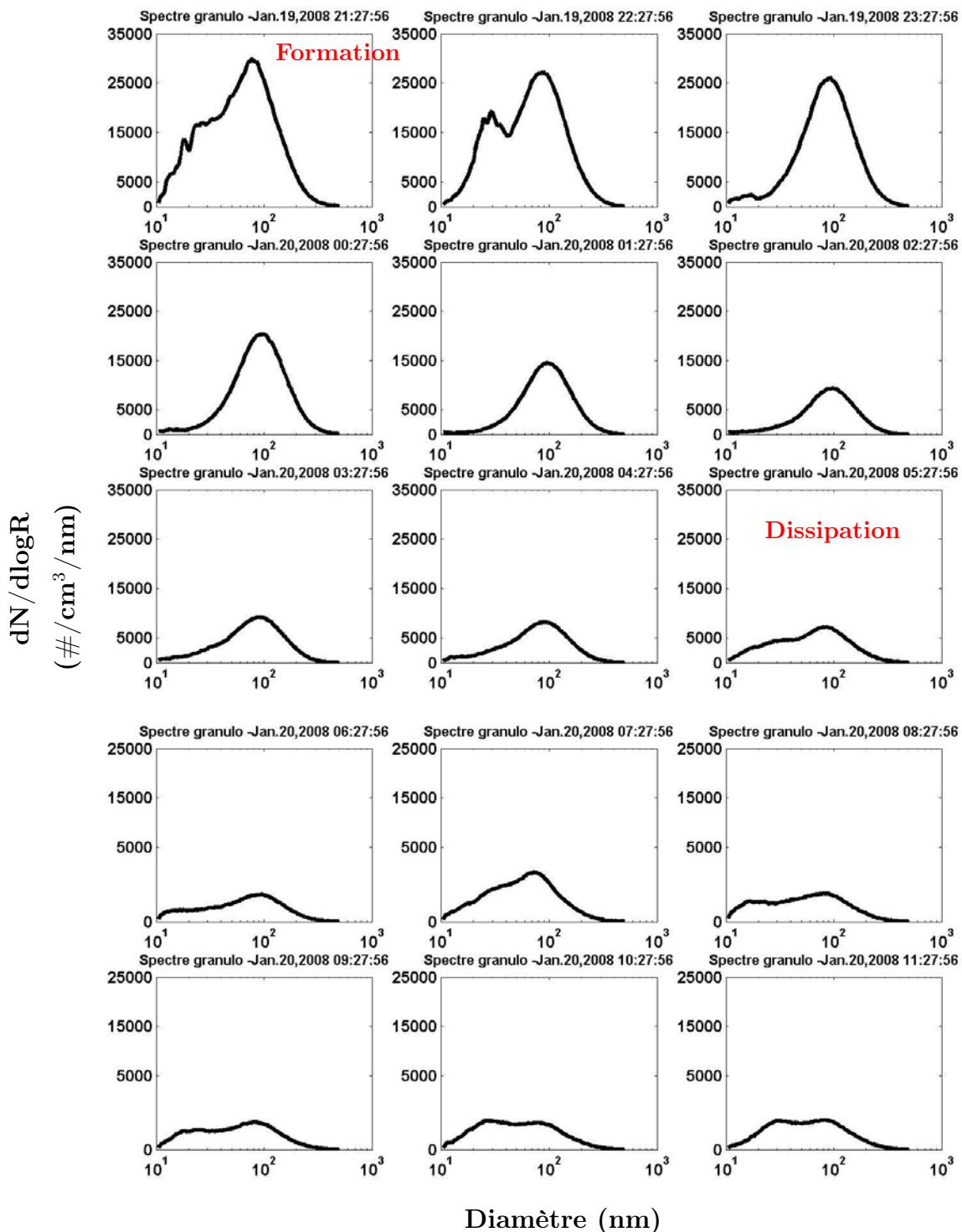


FIGURE 3.39 – Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire pendant et après le brouillard pour l'épisode du 19-20 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.

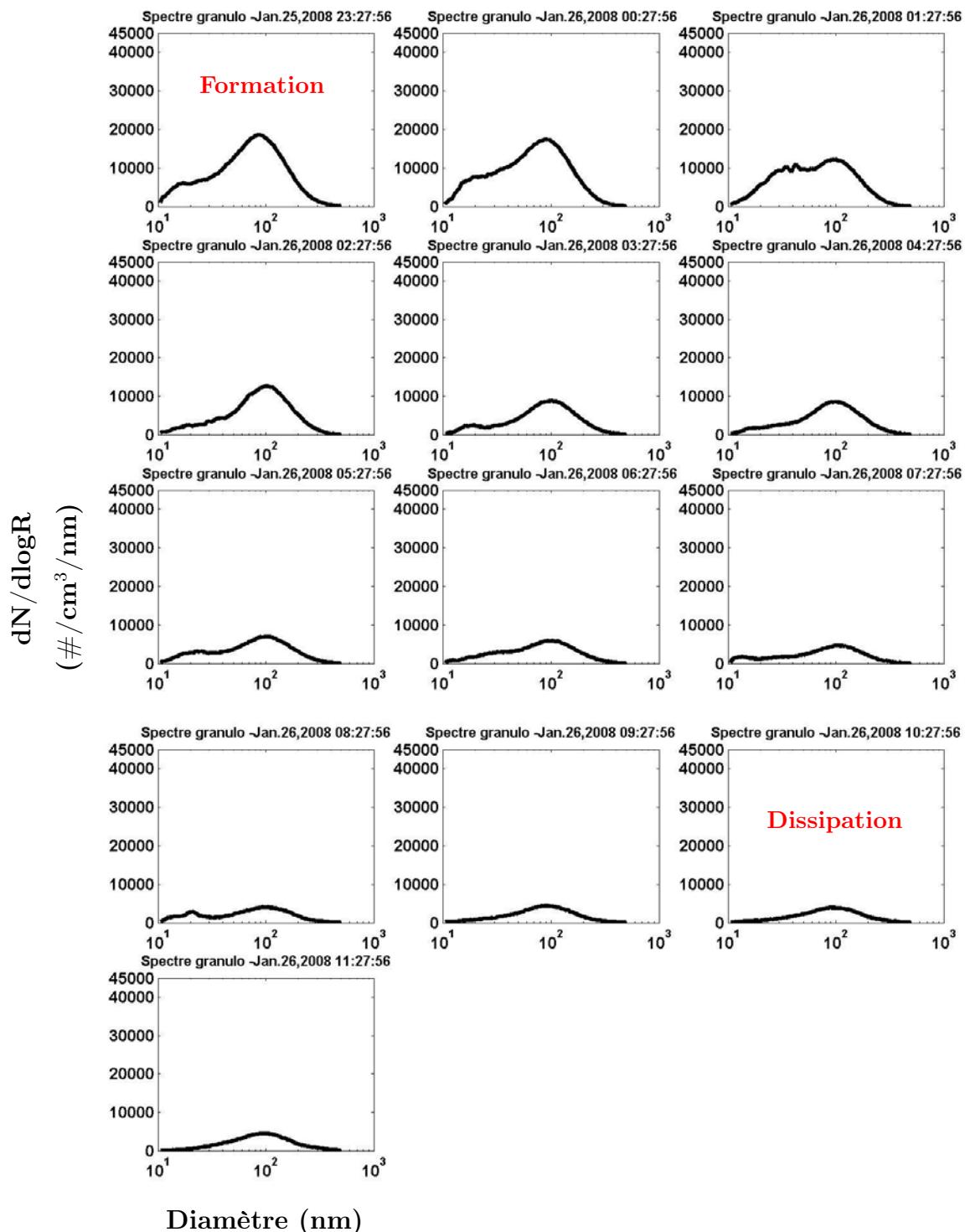


FIGURE 3.40 – *Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire pendant et après le brouillard pour l'épisode du 25-26 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.*

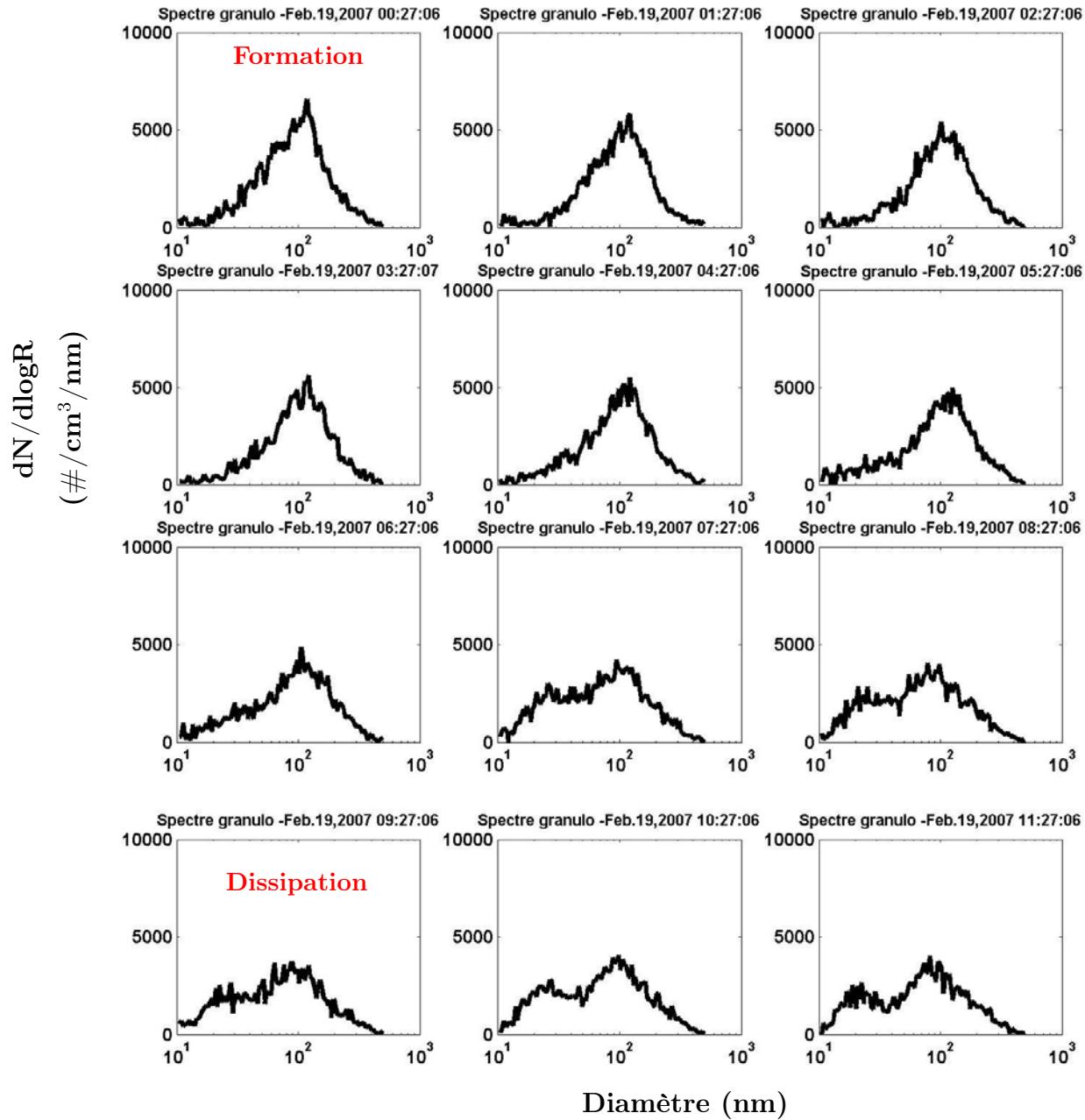


FIGURE 3.41 – Evolution du spectre granulométrique de l'aérosol en moyenne horaire pendant et après le brouillard pour l'épisode du 18-19 Février 2007 observé pendant ParisFOG.

3.7 Apport des mesures obtenues par le Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100) et discrimination entre aérosols humides et gouttelettes nuageuses

3.7.1 Apport des mesures obtenues par le Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100)

La principale différence sur le volet instrumental entre les deux campagnes de mesures présentées précédemment est la présence d'un FSSP 100 lors de la campagne ToulouseFOG. Ce travail a été réalisé avec la collaboration de Laurent Gomes et de Frédéric Burnet (GAME-CNRM/GMEI/MNPCA).

A partir des données obtenues par l'instrument OPC (Pallas welas 2000), des calculs de contenus en eau liquide ont été effectués lors de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG. Ces calculs mettent en évidence de trop faibles valeurs de contenus en eau liquide. Par exemple, une valeur de 0.015 g.kg^{-1} a été obtenue pour les données recueillies par l'instrument à 00 UTC lors de la POI 13. Ceci nous a conduit à installer un Forward Scattering Spectrometer Probe (FSSP 100) lors de la campagne ToulouseFOG afin de mieux prendre en compte les gouttelettes de taille plus importante.

La Figure 3.42 montre l'évolution des spectres granulométriques des aérosols moyennés par heure effectués à partir des mesures faites par le SMPS et l'OPC-GRIMM durant l'épisode de brouillard de la nuit du 28-29 Janvier 2008. Il montre également l'évolution des spectres granulométriques des particules ($> 0.4 \mu\text{m}$) moyennés par heure obtenus par l'OPC (Pallas welas 2000) et moyennés toutes les 30 minutes obtenus par le FSSP. Il est important de rappeler que les mesures faites par le SMPS et l'OPC-GRIMM sont effectuées en conditions sèches alors que l'OPC (Pallas welas 2000) et le FSSP mesurent en conditions ambiantes. Afin de se placer dans les mêmes conditions, la taille des aérosols a donc été multipliée par 2. En effet, pour des humidités proche de 80 %, les aérosols s'hydratent et grossissent à partir de leur humidité relative de déliquescence (cf. Chapitre 2.1.3). Au-delà de 80 % d'humidité relative, le facteur de grossissement augmente fortement et devient supérieur à 2. Pour simplifier et en s'appuyant sur l'étude de Hänel (1976) (modèle Hänel), le facteur de grossissement de 2 semble pertinent compte tenu de la composition chimique analysée de l'aérosol (Chapitre 3.4.3) pour se placer dans les conditions environnementales ambiantes.

La Figure 3.42 met en évidence la bonne cohérence entre les mesures obtenues par le SMPS et les mesures obtenues par l'OPC-GRIMM. La présence de l'OPC-GRIMM permet d'obtenir la fin du spectre granulométrique des aérosols. Cependant, en comparant avec les mesures de l'OPC (Pallas) nous constatons que l'OPC-GRIMM ne mesure pas efficacement les particules de diamètres supérieurs à $1 \mu\text{m}$. En effet, l'OPC-GRIMM semble sous-estimer la concentration de particules en comparaison avec les mesures effectuées par l'OPC (Pallas welas 2000). Ceci est expliqué par le dispositif instrumental. Pour atteindre l'instrument, les particules doivent traverser un tuyau de longueur supérieure à 2 mètres. De ce fait, elles se déposent en grande partie dans le tuyau et n'arrivent pas jusqu'à

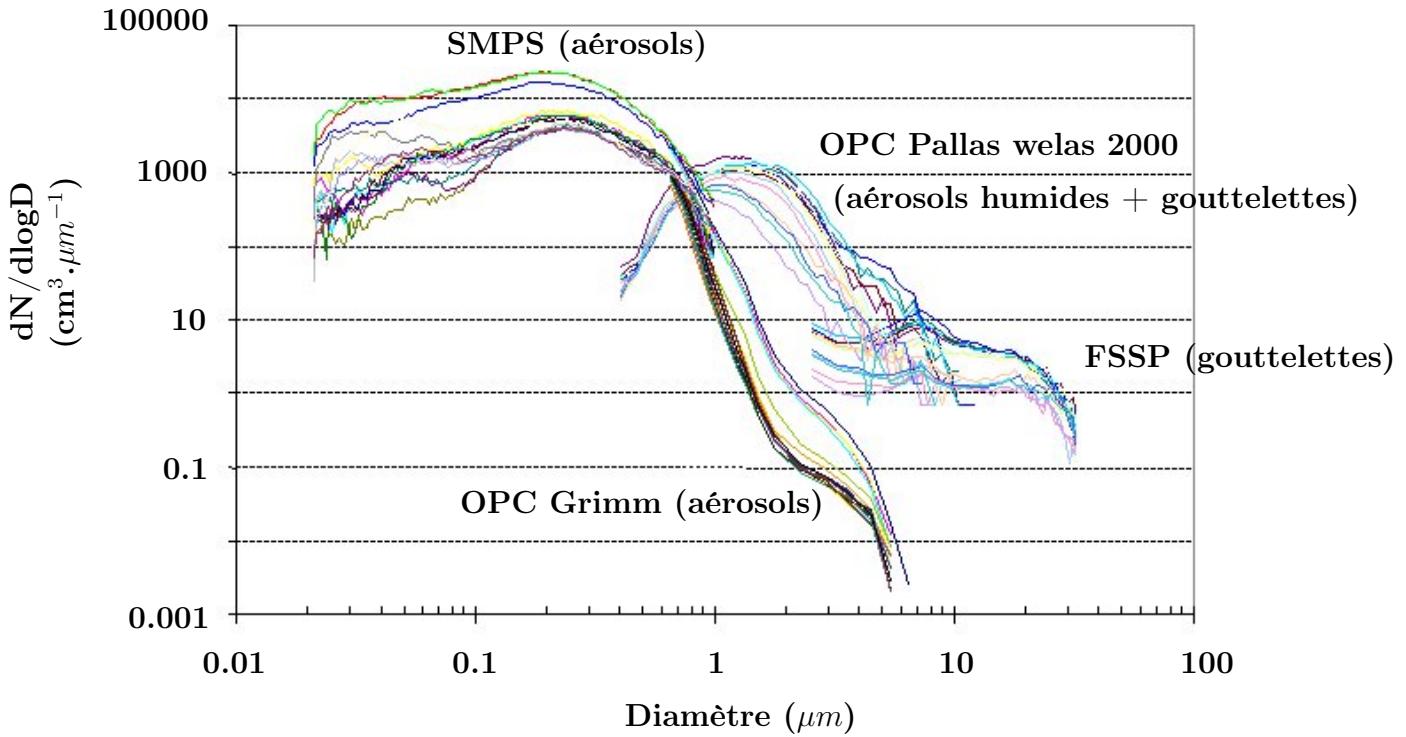


FIGURE 3.42 – *Evolution des spectres granulométriques des particules d'aérosols mesurés par le SMPS et l'OPC-GRIMM, évolution des spectres granulométriques des particules mesurés par l'OPC (Pallas welas 2000) et le FSSP lors de l'épisode du brouillard du 28-29 Janvier 2008 observé pendant ToulouseFOG.*

l'instrument. Inversement, l'OPC (Pallas) semble avoir une faible efficacité de mesures dans les toutes premières classes de particules entre 0.5 et 1 μm si l'on compare avec les mesures obtenues par le SMPS.

Comme nous l'avons vu précédemment, les données obtenues par l'OPC (Pallas welas 2000) mettent clairement en avant un mode centré vers un diamètre de 1 μm (rayon modal de 0.5 μm) avec une forte concentration et un deuxième mode moins marqué vers 3 μm en concentration moins importante mis également en évidence dans l'étude précédente. Un troisième mode est observé par le FSSP vers 7-8 μm et non observé par l'OPC. De plus, le FSSP enregistre aussi des gouttelettes au-delà de 10-15 μm . Les concentrations en gouttelettes sont alors très faibles et se situent entre 1 et 10 $\text{cm}^{-3} \cdot \mu\text{m}^{-1}$. La présence de grosses gouttelettes mesurées par le FSSP et pas vues par le Pallas welas 2000 permettent d'obtenir des contenus en eau liquide légèrement plus réalistes et déjà rencontrés dans un brouillard malgré leur très faibles concentrations (Wendish *et al.*, 1998). Il semblerait qu'il manque également un mode vers 20-25 μm non mesuré ici afin de pouvoir obtenir un contenu en eau liquide plus réaliste (Wendish *et al.*, 1998).

3.7.2 Discrimination entre aérosols humides et gouttelettes nuageuses

Nous avons souligné précédemment dans la partie 3.5.4 que la grande majorité des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) pourrait correspondre à des aérosols humides et non à des gouttelettes. Cette supposition est confirmée par plusieurs travaux mettant également en évidence que les brouillards se formant en milieu très pollué, ce qui est le cas dans notre étude, sont essentiellement constitués de concentrations d'aérosols humides non activés et de gouttelettes nuageuses relativement faibles (Yuskiewicz *et al.*, 1998; Frank *et al.*, 1998; Kokkola *et al.*, 2003). Dans cette section, nous allons essayer de déterminer une méthode permettant de discriminer les aérosols humides des gouttelettes. Ceci nous permettra de connaître les concentrations réelles en nombre de gouttelettes nuageuses mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000).

Calcul du diamètre critique d'activation et détermination de la concentration en nombre de gouttelettes

Selon l'étude microphysique effectuée dans les parties 3.4.5 et 3.5.3, les spectres granulométriques des particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) présentent souvent un mode majoritairement centré sur un rayon de $0.5 \mu m$. Il apparaît donc nécessaire pour notre étude de savoir s'il faut considérer ce mode comme étant des gouttelettes nuageuses ou comme des aérosols humides non activés. Afin de répondre à cette problématique, nous nous baserons sur l'épisode de brouillard se produisant dans la nuit du 18-19 Février 2007 (POI 13) de la campagne de mesures ParisFOG. Suite aux analyses chimiques présentées dans la section 3.4.3, l'aérosol est constitué essentiellement de composés chimiques influençant principalement le terme de Raoult (Terme B, Eq. 2.4). Le terme de Kelvin est constant, aucune des espèces chimiques analysées n'influence la tension de surface de l'aérosol et donc n'influence le terme de Kelvin (Terme A, Eq. 2.3), et vaut 2.11×10^{-9} .

Le diamètre critique d'activation à partir duquel les CCN vont s'activer en gouttelettes nuageuses est obtenu à l'aide de l'équation 3.1. A partir de la théorie de Köhler et de la connaissance de la sursaturation critique S_c (Eq. 2.6), il est possible de déterminer le diamètre critique d'activation des CCN noté D_c . Etant donné l'impossibilité de connaître la sursaturation dans une couche de brouillard, la valeur de la sursaturation critique est donnée par la simulation numérique du cas de référence qui sera présentée dans le Chapitre 5 et prend la valeur moyenne de 0.076 %. Cette valeur de sursaturation est réaliste pour un brouillard radiatif, une étude de sensibilité à la sursaturation sera présentée dans la suite (cf. Tableau 3.21). Ainsi pour une valeur de sursaturation critique de 0.076 %, la valeur du diamètre critique des CCN est de $1.8 \mu m$ (ou de rayon de $0.9 \mu m$). L'équation permettant d'obtenir cette valeur est :

$$D_c = \left(\frac{2A}{3S_c} \right) \quad (3.1)$$

A partir du diamètre critique d'activation D_c (qui correspond à un diamètre humide), nous pouvons connaître précisément la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses à partir des données obtenues par l'OPC (Pallas welas 2000). Les particules mesurées par

l'OPC (Pallas welas 2000) de diamètres inférieurs à $1.8 \mu\text{m}$ correspondent donc à des aérosols humides non activés. Par conséquent, les particules présentes dans le mode 1 centré sur un diamètre de $1 \mu\text{m}$ (rayon de $0.5 \mu\text{m}$) mesuré par l'OPC (Pallas welas 2000) présent tout au long du cycle de vie du brouillard ne représente pas des gouttelettes nuageuses mais des aérosols humides qui ne se sont pas activés.

Toutefois, il est très important de souligner que la sursaturation est un paramètre qui varie tout au long du cycle de vie du brouillard conduisant à des valeurs de diamètre d'activation différentes et donc à des valeurs de concentrations en nombre de gouttelettes nuageuses différentes.

Le tableau 3.21 répertorie la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses moyennées toutes les 10 minutes (obtenue par l'OPC Pallas welas 2000) en fonction de la valeur de la sursaturation critique S_c . Nous pouvons ainsi déterminer précisément la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses selon la sursaturation critique. Toutes les particules mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) ayant une taille supérieure au diamètre critique d'activation sont considérées activées et sont des gouttelettes nuageuses. Toutes les particules ayant une taille inférieure au diamètre critique d'activation sont considérées non activées et restent au stade d'aérosols humides.

Comme indiqué auparavant, les valeurs de sursaturation critique sont difficiles à estimer seulement à partir des observations et peuvent être différentes tout au long du cycle de vie du brouillard. Ainsi, ce tableau permet d'obtenir des "fourchettes" de valeurs de la concentration minimale et maximale en nombre de gouttelettes nuageuses (moyennées sur 10 minutes) pendant le cas d'étude de la POI 13 de la campagne ParisFOG. Ces valeurs de concentration en nombre de gouttelettes seront indispensables pour valider la simulation de référence dans le volet modélisation de notre étude présentée dans le Chapitre 5.

Sursaturation Critique S_c (%)	Diamètre critique d'activation D_c (μm)	Concentration en nombre de gouttelettes N ($\#\cdot\text{cm}^{-3}$) Données OPC (pallas)
0.2	0.7	40/700
0.11	1.3	1/270
0.076	1.8	0/140
0.027	5.2	0/20

TABLE 3.21 – Sensibilité de la sursaturation critique S_c sur le diamètre critique d'activation D_c et sur la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses N . Les concentrations en nombre de gouttelettes sont moyennées sur 10 minutes et sont représentées par leurs valeurs minimales et maximales sur l'ensemble de l'épisode du brouillard de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG.

Comparaison entre la concentration en nombre de CCN et la concentration en nombre de gouttelettes

A partir de la théorie κ -Köhler présentée par Petters et Kreidenweis (2007), le coefficient d'hygroscopicité κ prend la valeur de 0.295 pour la composition chimique de l'aérosol spécifique à notre étude ($\kappa = \sum_i \epsilon_i \kappa_i$ où ϵ est la fraction volumique de chaque espèce chimique i contenu dans l'aérosol sec).

La connaissance du diamètre sec critique d_o à partir duquel les aérosols deviennent des CCN capables de s'activer en gouttelettes nuageuses dépend de la sursaturation critique S_c et de la valeur de κ . La valeur du diamètre sec critique d_o est donnée par :

$$d_o = \left(2 \left(\frac{A}{3} \right)^{\frac{3}{2}} \kappa^{-\frac{1}{2}} S_c^{-1} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (3.2)$$

où A est le terme de Kelvin égal à 2.11×10^{-9} dans notre étude, κ est le coefficient d'hygroscopicité et S_c est la sursaturation critique.

La Figure 3.43 permet de déterminer le diamètre sec des CCN pour différentes valeurs de sursaturation critique et de κ . Pour notre cas d'étude de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG, à l'aide de la Figure 3.43 et de l'équation 3.2, le diamètre critique sec des CCN, noté d_o , susceptibles de s'activer en gouttelettes nuageuses est de $0.2 \mu\text{m}$ pour une valeur de $\kappa=0.295$ et de $S_c=0.076 \%$.

Sursaturation Critique S_c (%)	Diamètre critique des CCN d_o (μm)	Concentration en nombre de CCN N_{CCN} ($\#\cdot\text{cm}^{-3}$) Données SMPS
0.2	0.1	1900/4900
0.11	0.15	900/1900
0.076	0.2	530/1000
0.027	0.4	6/90

TABLE 3.22 – Sensibilité de la sursaturation critique S_c sur le diamètre critique sec et sur la concentration en nombre de CCN. La valeur de κ est de 0.295. Les concentrations en nombre de CCN sont moyennées sur 10 minutes et sont représentées par leurs valeurs minimales et maximales sur l'ensemble de l'épisode du brouillard de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG.

Connaissant cette valeur de diamètre critique sec, il est ainsi possible de déterminer la concentration en nombre de CCN pouvant s'activer en gouttelettes nuageuses à partir des données obtenues par le SMPS.

La théorie utilisée ci-dessus pour discriminer les aérosols humides des gouttelettes nuageuses suppose que chaque CCN forme une gouttelette nuageuse. Mais à partir des données obtenues par le SMPS, nous constatons que la concentration en nombre de CCN est en permanence supérieure à la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses obtenue par l'OPC (Pallas welas 2000) quelque soit la sursaturation critique. En effet,

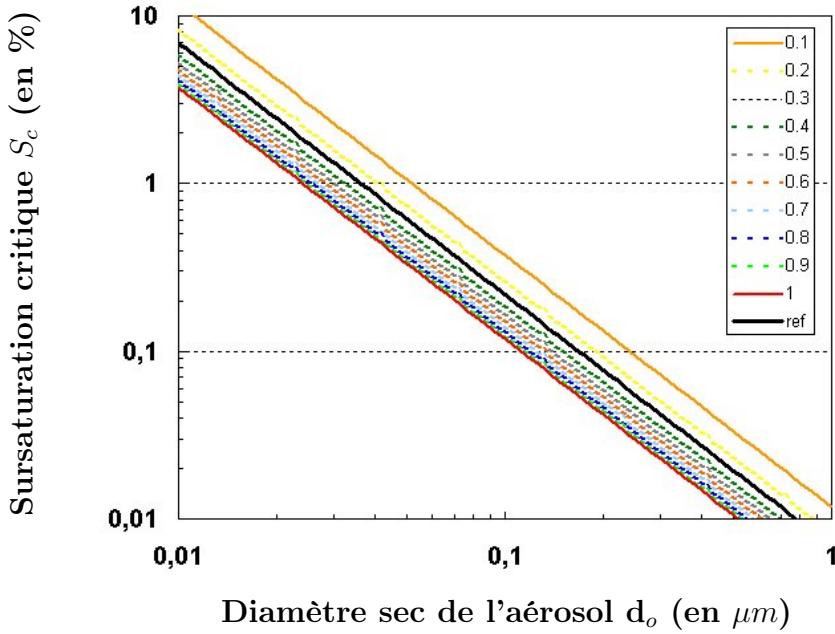


FIGURE 3.43 – *Diamètre secs des CCN susceptibles de s’activer en fonction de la sursaturation critique de la masse d’air pour différentes valeurs de κ . Le trait noir représente notre cas d’étude avec un $\kappa=0.295$. La figure est basée sur l’étude de Petters et Kreidenweis (2007).*

en comparant les tableaux 3.21 et 3.22, les concentrations en nombre de CCN obtenues à partir des données SMPS sont 5 à 7 fois supérieures aux concentrations en nombre de gouttelettes mesurées par l’OPC selon la sursaturation critique.

La raison principale pour expliquer cette forte différence provient de la difficulté à pouvoir comparer précisément le nombre de CCN avec le nombre de gouttelettes nuageuses pendant le cycle de vie du brouillard. En effet, l’activation des CCN se produit essentiellement au sommet du brouillard à l’endroit où le taux de refroidissement (et donc la sursaturation) est le plus élevé. Il apparaît donc impossible, du point de vue expérimental, de pouvoir mesurer le nombre de gouttelettes créées à une altitude aussi importante. Les instruments microphysiques qui sont généralement installés en surface permettent d’avoir uniquement des mesures de concentrations (et de tailles) de gouttelettes qui ont été à l’origine créées au sommet du brouillard. Entre le sommet du brouillard et la surface, plusieurs processus tels que les processus dynamiques (notamment le mélange turbulent) et les processus microphysiques (notamment la coalescence et la sédimentation) pouvant alors modifier les concentrations de gouttelettes. Placer des instruments mesurant les caractéristiques des aérosols (SMPS) et celles des gouttelettes (Pallas welas 2000) à l’endroit où l’activation des CCN a lieu serait alors idéal. Ceci conduit donc à pouvoir suivre l’activation du point de vu instrumental au sommet du brouillard tout au long du cycle de vie afin de comparer de manière pertinente le nombre de CCN activés avec le nombre de gouttelettes mais serait difficilement irréalisable. L’idée originale serait de pouvoir placer des instruments de mesures microphysiques à différentes altitudes à l’aide d’un ballon

captif ou sur un mât de mesures par exemple mais poserait des problèmes d'organisation et/ou de dispositifs expérimentaux comme le poids des instruments, le coût financier, la sécurité aérienne, la qualité des mesures, la fluctuation du ballon captif...

A la suite des remarques précédentes, la comparaison entre le nombre de CCN et le nombre de gouttelettes nuageuses ne peut alors s'effectuer qu'au moment de la formation. La phase de formation du brouillard est une phase relativement rapide pendant laquelle le brouillard peut très vite se développer verticalement et le sommet atteindre une altitude importante. Cependant, la formation du brouillard se produit, dans le cas de brouillard radiatif, en surface à l'endroit où les instruments sont installés. Il semble alors pertinent de pouvoir faire la comparaison à ce moment là du cycle de vie du brouillard. Mais comme le montre les tableaux 3.21 et 3.22, pour une faible valeur de la sursaturation comme par exemple de 0.027 %, la concentration en nombre de CCN activés reste 5 fois supérieure à la concentration en nombre de gouttelettes mesurée par l'OPC (en discriminant les aérosols humides des gouttelettes selon la méthode expliquée ci-dessus). Cette différence pourrait provenir de l'incertitude des instruments de mesures utilisés. En effet, soit le SMPS surestime le nombre de CCN, soit l'OPC (Pallas welas 2000) sous estime le nombre de gouttelettes nuageuses. Il est important de noter également qu'une valeur surestimée de la sursaturation fournie par l'étude de modélisation engendrerait des valeurs différentes de diamètre critique sec d_o et de diamètre critique d'activation D_c influençant ainsi le nombre de CCN et le nombre de gouttelettes. Mais pour toutes les valeurs de sursaturation étudiées, il existe une différence importante (5 à 7 fois) entre le nombre de CCN et le nombre de gouttelettes observés.

Cette discussion met en évidence les incertitudes liées aux mesures granulométriques effectuées par le SMPS et l'OPC (Pallas welas 2000). Toutefois, ces instruments constituent lors des campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG réalisées dans ce travail les seuls moyens d'observation microphysiques mis à notre disposition pour étudier finement les aérosols et les gouttelettes nuageuses. Cependant, des instruments supplémentaires comme un PVM (Particulate Volume Monitor) par exemple qui mesure directement le contenu en eau liquide pourrait permettre de valider considérablement les données obtenues par l'OPC (Pallas welas 2000).

Nous avons présenté ici un exemple afin de discriminer les aérosols humides des gouttelettes nuageuses. Il est important de souligner que cette discrimination dépend fortement de la sursaturation critique (et donc du taux de refroidissement) rencontrée dans le brouillard (au sommet) et provient ici de la simulation du cas d'étude de la POI 13 de la campagne ParisFOG qui sera présentée dans le Chapitre 5. Il est très difficile de connaître la valeur observée de la sursaturation dans un brouillard. En effet, aucun dispositif instrumental ne permet de réaliser cette mesure dans un brouillard (notamment au sommet du brouillard). La sursaturation critique est un paramètre qui varie en permanence dans le temps. Selon la valeur de sursaturation critique, les valeurs du diamètre sec critique de l'aérosol et diamètre d'activation des CCN peuvent alors varier tout au long du cycle du brouillard. Cependant, le tableau 3.21 permet d'obtenir une "fourchette" de valeurs de la concentration en nombre de gouttelettes pendant l'épisode du 18-19 Février 2007 survenue au cours de la campagne de mesures ParisFOG. Cet épisode correspond au cas

étudié dans le volet modélisation dans notre étude.

Il est difficile également d'admettre l'absence de gouttelettes nuageuses supérieures à $10 \mu m$ au sein d'une couche de brouillard. L'existence de ces gouttelettes est importante pour l'étude du contenu en eau liquide mais leur concentration resterait faible. La présence d'un instrument de type PVM-100 qui mesure directement le contenu eau liquide sans prendre en compte les spectres granulométriques des gouttelettes pourrait indiquer la présence ou non de ces gouttelettes. Pour la suite de l'étude, nous nous intéresserons principalement à la concentration en gouttelettes nuageuses, résultat direct de l'activation des aérosols.

3.8 Résumé

Ce chapitre a traité le volet observation de notre étude. Deux campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG ont été réalisées au cours des hivers 2006-2007 et 2007-2008 respectivement. Les sites d'observation sur lesquels les mesures ont été effectuées ainsi que les différents instruments utilisés en particulier microphysiques ont été répertoriés. Un bilan de la banque de données recueillies des deux campagnes a été réalisé.

Compte tenu de la thématique de cette thèse, notre étude s'est focalisée essentiellement sur les données microphysiques. Plus de 9 mois de données microphysiques (aérosols et gouttelettes nuageuses) ont été recueillies, traitées et présentées. Le Tableau 3.23 présente les principaux résultats du volet observation de notre étude. Ainsi, les caractéristiques de l'aérosol (taille et concentration) mesurées par le SMPS ont été analysées avant, pendant et après certains épisodes de brouillard sélectionnés au cours des deux campagnes de mesures. La variabilité journalière des propriétés de l'aérosol a été montrée. Ceci nous a conduit à affirmer que la grande majorité des cas de brouillard observés au cours des deux campagnes se forment systématiquement dans des milieux relativement pollués dans la soirée. Plusieurs processus dynamiques comme la sédimentation ou l'activation des aérosols ont été mis en évidence selon le cycle de vie du brouillard.

Les propriétés des gouttelettes nuageuses (taille et concentration) ont également été mesurées par un OPC (Pallas welas 2000), analysées en fonction du cycle de vie (formation, développement et dissipation) de certains épisodes de brouillards radiatifs. L'OPC met en évidence systématiquement un mode de particules non activées centré sur un rayon de $0.5 \mu m$. Un deuxième mode centré sur un rayon de $1.5 \mu m$ a également été mis en évidence correspondant à des gouttelettes nuageuses. Plusieurs processus comme par exemple la sédimentation des gouttelettes intervenant dans la couche de brouillard ont été mis en avant au cours du cycle de vie du brouillard. Une forte variabilité en concentration de particules mesurée par l'OPC (Pallas welas 2000) a été observée.

Un complément d'information à l'aide d'un autre instrument mesurant les gouttelettes nuageuses FSSP 100 nous a permis de compléter les mesures obtenues par l'OPC. Une étude supplémentaire a été nécessaire afin de discriminer les aérosols humides des gouttelettes nuageuses. Cette discrimination a été indispensable pour déterminer précisément les concentrations en nombre de gouttelettes déjà rencontrées dans des études précédentes (Wendish *et al.*, 1998; Miles *et al.*, 2000). Les valeurs de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses dépendent fortement de la sursaturation critique. Celle-ci influence le diamètre sec critique à partir duquel les CCN sont susceptibles de s'activer en gouttelettes nuageuses. Elle influence également le diamètre critique d'activation à partir duquel les CCN deviennent des gouttelettes nuageuses. La concentration en nombre de gouttelettes nuageuses de notre cas d'étude représentant l'épisode de brouillard survenu dans la nuit du 18-19 Février 2007 peut varier de 0 à plusieurs centaines de gouttelettes.cm⁻³ en fonction de la sursaturation critique (et donc du taux de refroidissement) rencontrée au sommet du brouillard. Plusieurs processus comme par exemple la sédimentation des gouttelettes intervenant dans la couche de brouillard ont été également mis en avant au cours du cycle de vie du brouillard. Ces processus peuvent fortement influencer les mesures de concentration en gouttelettes nuageuses effectuées en surface.

TABLE 3.23 – Principaux résultats du volet observation de l'étude obtenus à partir des campagnes de mesures *ParisFOG et Toulouse-FOG* sur les brouillards radiatifs. (1) Données obtenues par SMPS (particules de diamètre $< 0.5 \mu\text{m}$) ; (2) Données obtenues par OPC (modèle *Pallas welas 2000*) (particules humides + gouttelettes de diamètre $> 0.4 \mu\text{m}$).

	AVANT	PHASE DE FORMATION	PHASE DE DEVELOPPEMENT	PHASE DE DISSIPATION
	<p>En début d'après-midi :</p> <ul style="list-style-type: none"> Concentration faible pour les deux modes d'aérosol due à l'augmentation de l'épaisseur de la couche limite Présence d'émissions locales selon le cas d'étude pouvant augmenter la concentration <p>En fin d'après-midi :</p> <ul style="list-style-type: none"> Fort concentration des aérosols ultra-fins due à l'abaissement de la couche limite et aux émissions locales provenant essentiellement du trafic routier <p>Avant la phase de formation :</p> <ul style="list-style-type: none"> Augmentation de la taille à cause des processus de coagulation et du transfert gaz-particules Concentration forte dans le mode 2 due aux processus de coagulation, du transfert gaz-particules et des émissions locales <p>⇒ FORTE VARIABILITÉ DE LA CONCENTRATION ET DE LA TAILLE EN AÉROSOLS</p>	<p>AÉROSOLS¹</p> <ul style="list-style-type: none"> Diminution de la concentration des aérosols fins Augmentation de la concentration des aérosols du mode 2 Emissions locales persistantes <p>⇒ PROCESSUS DE COAGULATION</p>	<ul style="list-style-type: none"> Fort diminution de la concentration des aérosols du mode 2 Augmentation de la taille des aérosols (mode 2 notamment) Emissions locales persistantes selon le cas d'étude <p>⇒ PROCESSUS D'ACTIVATION</p> <p>⇒ PROCESSUS DE SEDIMENTATION</p>	<ul style="list-style-type: none"> Fort diminution de la concentration en nombre d'aérosols (mode 1 et mode 2) <p>⇒ COUCHE DE BROUILLARD = "NETTOYEUR" DE L'ATMOSPHÈRE</p>
		<p>GOUTTELETTES²</p> <ul style="list-style-type: none"> 1 ou 2 modes de gouttelettes Rayon $1 < 0.5 \mu\text{m}$ Rayon $2 < 1 \mu\text{m}$ Concentration élevée dans le mode 1 et dans le mode 2 selon les cas d'étude Variabilité de la concentration du mode 2 selon la sursaturation de la masse d'air <p>⇒ MODE 1 : AÉROSOLS HUMIDES NON-ACTIVES</p> <p>⇒ MODE 2 :</p> <p>GOUTTELETTES</p> <p>⇒ PROCESSUS D'ACTIVATION</p> <p>⇒ IMPORTANCE DU TAUX DE REFROIDISSEMENT</p>	<p>2 modes de gouttelettes</p> <ul style="list-style-type: none"> Rayon $1 < 0.5 \mu\text{m}$ Rayon $2 < 1 \mu\text{m}$ Diminution de la concentration du mode 1 Variabilité de la concentration du mode 2 selon la sursaturation de la masse d'air <p>⇒ MODE 1 : AÉROSOLS HUMIDES NON-ACTIVES</p> <p>⇒ MODE 2 :</p> <p>GOUTTELETTES</p> <p>⇒ PROCESSUS D'ACTIVATION</p> <p>⇒ PROCESSUS DE SEDIMENTATION</p>	<p>1 ou 2 modes de gouttelettes</p> <ul style="list-style-type: none"> Rayon $1 < 0.5 \mu\text{m}$ Rayon $2 < 1 \mu\text{m}$ Fort diminution de la concentration du mode 2 Diminution plus ou moins importante de la concentration du mode 1 <p>⇒ MODE 1 : AÉROSOLS HUMIDES NON-ACTIVES</p> <p>⇒ MODE 2 :</p> <p>GOUTTELETTES</p> <p>⇒ EFFET RADIATIF (PROCESSUS D'EVAPORATION)</p> <p>⇒ PROCESSUS DE SEDIMENTATION</p>

Chapitre 4

Configuration du modèle Meso-NH couplé au module d'aérosol ORILAM

Sommaire

4.1	Le modèle Meso-NH	115
4.1.1	Schéma de turbulence	116
4.1.2	Schéma microphysique	118
4.1.3	Le code de transfert radiatif	122
4.2	Le module d'aérosol ORILAM	125
4.2.1	Description générale	125
4.2.2	La dynamique des aérosols	126
4.3	La paramétrisation d'activation d'Abdul-Razzak	130
4.3.1	Description générale	130
4.3.2	Validation de la paramétrisation pour le couplage Meso-NH / ORILAM	132
4.4	Résumé	138

Cette section est consacrée à la configuration du modèle atmosphérique non-hydrostatique Meso-NH couplé au module d'aérosol ORILAM permettant la réalisation de simulations d'une couche de brouillard radiatif. Le schéma de turbulence, le schéma microphysique et le schéma radiatif utilisés dans le modèle Meso-NH seront décrits. Le module d'aérosol ORILAM sera ensuite présenté. Le couplage du modèle Meso-NH et du module d'aérosol ORILAM est effectué par l'intermédiaire de la paramétrisation d'activation des aérosols tirée des études de Abdul-Razzak et al. (1998); Abdul-Razzak et Ghan (2000, 2004). Lors de ce travail, ce schéma d'activation fut implémenté dans le modèle Meso-NH.

4.1 Le modèle Meso-NH

Meso-NH est un modèle atmosphérique non-hydrostatique à aire limitée développé conjointement par le Laboratoire d'Aérologie (UMR 5560 UPS/CNRS) et par le CNRM-GAME (URA 1357 CNRS/Météo-France). Il est capable de simuler les mouvements atmosphériques depuis l'échelle synoptique jusqu'au la micro-échelle (échelle de la turbulence). Une description détaillée du modèle Meso-NH est donnée par l'étude de Lafore *et al.*

(1998) et sur le site web à l'adresse <http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/>.

Pour répondre à la problématique d'interactions entre les processus dynamiques - microphysiques - radiatifs, le modèle Meso-NH a été couplé au module d'aérosol ORILAM (ORganic Inorganic Lognormal Aerosol Model). Cette configuration permettra de mettre en évidence l'influence des propriétés des aérosols sur la formation et le développement d'une couche de brouillard radiatif. Les différentes paramétrisations jouant un rôle dans la modélisation du brouillard telles que le schéma de turbulence, le schéma microphysique et le code radiatif seront décrites de façon succincte dans les paragraphes suivants.

4.1.1 Schéma de turbulence

Pour la réalisation des simulations 1-D présentées dans la suite du travail, le traitement de la turbulence dans le modèle Meso-NH est effectué à l'aide du schéma de turbulence de Cuxart *et al.* (2000). Il permet de réaliser des simulations sur une gamme d'échelles allant des LES (Large Eddy Simulations) à des simulations méso-échelles. Ce schéma de turbulence est basé sur le modèle de turbulence 3D développé par Redelsperger et Sommaria (1981) (RS81 dans la suite) d'ordre 1.5 en TKE pronostique où les variances pour la température potentielle et l'humidité ne sont pas pronostiques mais diagnostiquées à partir des quantités moyennes et de la TKE (Turbulent Kinetic Energy). En 1-D, les gradients horizontaux ne sont pas considérés.

L'approche utilisée dans ce schéma de turbulence est très proche de celle de RS81. Ainsi, les moments d'ordre 2 (variances et flux turbulents) sont divisés en une partie isotrope et en une partie anisotrope. La partie isotrope représente l'équation pronostique de la TKE alors que la partie anisotrope est stationnarisée, ce qui nécessite des formulations diagnostiques pour les flux et variances. Compte tenu de l'objectif de l'étude, le schéma ne sera pas présenté en détail, le lecteur se référera aux travaux de Cuxart *et al.* (2000) pour une description plus approfondie.

En configuration 1-D, l'hypothèse d'homogénéité horizontale est établie, l'équation pronostique de la TKE (partie isotrope) devient :

$$\frac{\partial e}{\partial t} = -\frac{1}{\rho_{ref}} \frac{\partial}{\partial x_j} (\rho_{ref} \bar{w} e) - \bar{w}' u'_i \frac{\partial \bar{u}'_i}{\partial z} + \frac{g}{\theta_{vref}} \bar{w}' \bar{\theta}'_v + \frac{1}{\rho_{ref}} \frac{\partial}{\partial x_j} (C_{2m} \rho_{ref} L e^{\frac{1}{2}} \frac{\partial e}{\partial x_j}) - C_\epsilon \frac{e^{\frac{3}{2}}}{L} \quad (4.1)$$

Dans l'ordre, les termes présents à droite de l'équation représentent respectivement le terme d'advection de TKE, la production par cisaillement (production dynamique), la production thermique, la diffusion et la dissipation. Le terme de dissipation ϵ est paramétré en utilisant la relation de Kolmogorov (1942).

Le traitement de la partie anisotrope des flux turbulents donne les formulations suivantes :

$$\bar{w}' \bar{\theta}' = -\frac{2}{3} \frac{L}{C_s} e^{\frac{1}{2}} \frac{\partial \bar{\theta}}{\partial z} \phi \quad (4.2)$$

$$\overline{w'r'_v} = -\frac{2}{3} \frac{L}{C_h} e^{\frac{1}{2}} \frac{\partial \overline{r_v}}{\partial z} \psi \quad (4.3)$$

$$\overline{w'u'} = -\frac{4}{-15} \frac{L}{C_m} e^{\frac{1}{2}} \frac{\partial \overline{u}}{\partial z} \quad (4.4)$$

$$\overline{w'\nu'} = -\frac{4}{-15} \frac{L}{C_m} e^{\frac{1}{2}} \frac{\partial \overline{\nu}}{\partial z} \quad (4.5)$$

$$\overline{u'^2} = \frac{2}{3} e \quad (4.6)$$

$$\overline{\theta'r'_v} = C_2 L^2 \left(\frac{\partial \overline{\theta}}{\partial z} \frac{\partial \overline{r_v}}{\partial z} \right) (\phi + \psi) \quad (4.7)$$

$$\overline{\theta'^2} = C_1 L^2 \left(\frac{\partial \overline{\theta}}{\partial z} \frac{\partial \overline{\theta}}{\partial z} \right) \phi \quad (4.8)$$

$$\overline{r'^2} = C_1 L^2 \left(\frac{\partial \overline{r_v}}{\partial z} \frac{\partial \overline{r_v}}{\partial z} \right) \psi \quad (4.9)$$

Les constantes C_{2m} , C_ϵ , C_s , C_h , C_m , C_1 et C_2 sont tirées de RS81. Les paramètres ϕ et ψ correspondent respectivement à l'inverse des nombres de Prandtl et Schmidt et permettent d'augmenter ou de limiter le mélange turbulent en fonction de la stabilité. De plus, le terme de production thermique présent dans l'équation pronostique de la TKE (4.1) est exprimée en fonction des flux turbulents de θ et r_v et devient :

$$\overline{w'\theta'_v} = E_\theta \overline{w'\theta'} + E_{moist} \overline{w'r'_v} \quad (4.10)$$

où $E_\theta = \frac{\overline{\theta_v}}{\overline{\theta}}$ et $E_{moist} = 0.61 \overline{\theta}$. Ces facteurs peuvent avoir des valeurs différentes en présence de nuages. Ces termes sont modifiés par la condensation décrite par un schéma sous-maille.

Les flux turbulents sont définis en utilisant les coefficients d'échange turbulent. En posant $K_\theta = \frac{2}{3} \frac{L}{C_s} e^{\frac{1}{2}} \phi$ dans l'expression de $\overline{w'\theta'}$, nous obtenons l'expression du flux turbulent vertical :

$$\overline{w'\theta'} = -K_\phi \frac{\partial \overline{\theta}}{\partial z} \quad (4.11)$$

K est le coefficient d'échange turbulent et peut prendre des valeurs différentes pour le vent, la température et l'humidité. Ainsi si K est positif, le flux s'écoule dans le sens du gradient. Tous ces termes diagnostiques de la partie anisotrope font intervenir le paramètre L correspondant à la longueur de mélange. Il y a plusieurs manières pour calculer cette longueur de mélange L . Elle peut être définie à partir de considérations physiques comme celle de Bougeault et Lacarrère (1989) (BL89 dans la suite) ou Deardorff (1980). Ces formulations sont disponibles dans le modèle Meso-NH. La formulation de la longueur de mélange L utilisée dans notre étude est celle de BL89. Celle-ci est basée sur le principe de conservation d'énergie d'une parcelle d'air. A un niveau donné, une parcelle d'air aura comme énergie cinétique la TKE à ce niveau. La longueur de mélange est donc liée aux distances que pourra parcourir cette parcelle d'air vers le haut et vers le bas avant d'être stoppée par les effets de flottabilité ou par le sol dans le sens descendant. La formulation de la longueur de mélange est la suivante :

$$L = (0.5(L^{-\frac{2}{3}down} + L^{-\frac{2}{3}up}))^{-\frac{3}{2}} \quad (4.12)$$

où L_{up} et L_{down} sont définis comme :

$$\int_z^{z+L_{up}} \frac{g}{\theta_{\nu ref}} (\theta(z) - \theta(z')) dz' = -e(z) \quad (4.13)$$

$$\int_{z-L_{down}}^z \frac{g}{\theta_{\nu ref}} (\theta(z') - \theta(z)) dz' = -e(z) \quad (4.14)$$

Cette longueur de mélange a le principal avantage d'être basée sur des postulats physiques sans utiliser de formulations empiriques. Elle correspond également à une fermeture non locale permettant de prendre en compte la stabilité globale de la couche limite.

Le schéma de turbulence présenté ci-dessus est utilisé dans toutes les simulations présentées dans cette thèse.

4.1.2 Schéma microphysique

Trois schémas microphysiques pour les nuages chauds sont actuellement implémentés dans le modèle Meso-NH. Le plus simple est le schéma à un moment développé par Kessler (1969) qui pronostique le contenu en eau nuageuse et le contenu en eau de pluie. Les deux autres schémas microphysiques sont des schémas à deux moments qui prédisent le contenu en eau nuageuse et en eau de pluie et la concentration de gouttelettes nuageuses et de pluies. Le premier qui a été implémenté est le schéma C2R2 développé par Cohard et Pinty (2000a,b); Cohard *et al.* (2000). Le deuxième schéma est celui développé par Khairoutdinov et Kogan (2000) (KHKO dans la suite) et qui a été implémenté et validé par Geoffroy (2007). Ce schéma a été spécialement conçu pour des simulations de nuages de couche limite faiblement précipitants, ce qui est représentatif des cas de brouillard. Les seuls hydrométéores précipitants sont de la bruine ayant un diamètre de l'ordre de plusieurs dizaines de micromètres.

Ainsi, la paramétrisation de Khairoutdinov et Kogan (2000) semble être bien appropriée pour l'étude du brouillard et sera donc utilisée pour les simulations effectuées pour le travail de modélisation du brouillard.

Le schéma KHKO utilise 5 variables pronostiques :

- Les concentrations de particules d'aérosols activées (CCN activés) N_a (particules.cm $^{-3}$)
- Les concentrations de gouttelettes nuageuses N_c (particules.cm $^{-3}$)
- Les concentrations de gouttes de bruine N_r (particules.cm $^{-3}$)
- Le rapport de mélange en eau nuageuse r_c (kg.kg $^{-1}$)
- Le rapport de mélange en eau précipitante r_r (kg.kg $^{-1}$)

Pour chaque variable pronostique, les équations de conservation dans le schéma KHKO s'écrivent de la façon suivante :

$$\frac{\partial N_a}{\partial t} = [\frac{\partial N_a}{\partial t}]_{PNM} + [\frac{\partial N_a}{\partial t}]_{ACT} + [\frac{\partial N_a}{\partial t}]_{EVAPC} \quad (4.15)$$

$$\frac{\partial N_c}{\partial t} = [\frac{\partial N_c}{\partial t}]_{PNM} + [\frac{\partial N_c}{\partial t}]_{ACT} + [\frac{\partial N_c}{\partial t}]_{SEDC} + [\frac{\partial N_c}{\partial t}]_{AUTO} + [\frac{\partial N_c}{\partial t}]_{ACCR} + [\frac{\partial N_c}{\partial t}]_{EVAPC} \quad (4.16)$$

$$\frac{\partial r_c}{\partial t} = [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{PNM} + [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{ACT} + [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{SEDC} + [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{AUTO} + [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{ACCR} + [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{CONDC} + [\frac{\partial r_c}{\partial t}]_{EVAPC} \quad (4.17)$$

$$\frac{\partial N_r}{\partial t} = [\frac{\partial N_r}{\partial t}]_{PNM} + [\frac{\partial N_r}{\partial t}]_{SEDR} + [\frac{\partial N_r}{\partial t}]_{AUTO} + [\frac{\partial N_r}{\partial t}]_{ACCR} + [\frac{\partial N_r}{\partial t}]_{EVAPR} \quad (4.18)$$

$$\frac{\partial r_r}{\partial t} = [\frac{\partial r_r}{\partial t}]_{PNM} + [\frac{\partial r_r}{\partial t}]_{SEDR} + [\frac{\partial r_r}{\partial t}]_{AUTO} + [\frac{\partial r_r}{\partial t}]_{EVAPR} \quad (4.19)$$

PNM représente la contribution des Processus Non Microphysiques (advection, turbulence, etc.). Les notations ACT, SEDC, SEDR, AUTO, ACCR, CONDC, EVAPC et EVAPR correspondent aux contributions des processus uniquement microphysiques, c'est à dire respectivement, l'activation, la sédimentation de l'eau nuageuse, la sédimentation de l'eau de bruine, l'autoconversion, l'accrétion, la condensation, l'évaporation de l'eau nuageuse et l'évaporation de l'eau de bruine. Il est également important de souligner que dans le schéma KHKO, la condensation de la vapeur d'eau sur les hydrométéores précipitants n'est pas représentée dans la paramétrisation.

Pour fermer ce système d'équations, les termes de la partie droite ($\partial N_a \partial t]_{PNM}$, $\partial N_a \partial t]_{ACT}$, etc.) sont paramétrés en fonction des variables pronostiques. Les paragraphes suivants présentent les paramétrisations de chaque processus microphysique intervenant dans le schéma KHKO.

La formation de l'eau nuageuse est due essentiellement aux processus de condensation (CONDC) et d'activation (ACT). Ces derniers sont les deux termes sources formant la concentration de gouttelettes nuageuses et le rapport de mélange en eau nuageuse durant le temps de vie du nuage. Ces processus sont difficiles à modéliser explicitement car ils dépendent de la valeur de la sursaturation locale, maximale (pour le processus d'activation) et moyenne (pour le processus de condensation), en présence de CCN et de gouttelettes. Les valeurs maximales de sursaturation sont très faibles comparées aux autres types de nuages de couche limite, de l'ordre de 0.001 % à 0.1 %.

L'originalité de ce travail est que la paramétrisation de l'activation des CCN de KHKO a été modifiée et remplacée par la paramétrisation de Abdul-Razzak *et al.* (1998); Abdul-Razzak et Ghan (2000, 2004) et sera détaillée dans la suite de l'étude. Une fois le maximum de sursaturation atteint par la masse d'air considérée, il faut atteindre une valeur de sursaturation plus importante pour activer de nouvelles gouttelettes permettant ainsi d'activer des CCN supplémentaires. Pour cela, il est indispensable "de garder une trace" de la sursaturation maximale tout au long du cycle de vie du nuage. Cohard *et al.* (2000) a donc introduit une variable pronostique, N_a , représentant la concentration de CCN activés à l'instant t :

$$N_a(t) = \max(N_a(t - dt), N_{CCN}(t)) \quad (4.20)$$

Le terme $N_a(t - dt)$ correspond à la concentration de CCN activés au pas de temps précédent (t - dt) et le terme N_{CCN} est la concentration de CCN activés à l'instant t. Afin de bien fixer les idées, le terme N_{CCN} provient du schéma d'activation de Abdul-Razzak *et al.* (1998); Abdul-Razzak et Ghan (2000, 2004) dans notre étude.

La concentration de CCN activés (gouttelettes nuageuses) correspond à la différence

entre le nombre de CCN activables à la sursaturation diagnostiquée dans une maille et le nombre de CCN déjà activés dans la même maille au pas de temps d'avant. La concentration de gouttelettes nuageuses dues à l'activation s'écrit :

$$\left(\frac{\partial N_c}{\partial t} \right)_{ACT} = \max(0, N_{CCN}(t) - N_a(t - dt)) / \Delta t \quad (4.21)$$

Les processus réversibles de condensation/évaporation sont traités implicitement par un ajustement à la saturation (Langlois, 1973; Cohard et Pinty, 2000a). En effet, le rapport de mélange en eau liquide est généralement dérivé d'un ajustement à la saturation : à chaque pas de temps, on suppose que toute la masse de vapeur sursaturée disponible dans une maille est instantanément condensée, et réciproquement pour l'évaporation. Cet ajustement n'est valable qu'en présence de petits hydrométéores. L'intérieur des nuages est supposé être en équilibre thermodynamique. Le taux de condensation est obtenu en résolvant l'équation :

$$(T - T^*) + \frac{L_\nu(T)}{C_{ph}}(r_{\nu s(T)} - r_{\nu *}) = 0 \quad (4.22)$$

T^* et $r_{\nu *}$ sont des valeurs de température et de rapport de mélange en vapeur d'eau à l'équilibre après intégration de tous les autres processus explicites. $r_{\nu s}(T)$ est le rapport de mélange en vapeur d'eau saturant ; $L_\nu(T)$ est la chaleur latente de vaporisation et C_{ph} la capacité calorifique de l'air nuageux. Le taux de condensation est donnée par l'équation :

$$\left(\frac{\partial r_c}{\partial t} \right)_{COND C} = \max(r_c, r_{\nu *} - r_{\nu s}(T)) / \Delta t \quad (4.23)$$

Le calcul du transfert radiatif et de la sédimentation des gouttelettes nuageuses nécessitent de connaître la distribution des gouttelettes nuageuses. La distribution dimensionnelle des gouttelettes nuageuses est représentée par la loi gamma généralisée dans le schéma microphysique. La loi gamma généralisée s'écrit dans sa forme normalisée :

$$n(D_c) = N_c \frac{\alpha}{\Gamma(v)} \lambda^{\alpha v} D_c^{\alpha v - 1} \exp(-(\lambda D_c)^\alpha), \quad (4.24)$$

où

$$\lambda = \left(\frac{\pi}{6} \rho_w \frac{\Gamma(v + 3/\alpha)}{\Gamma} \frac{N_c}{\rho_a r_c} \right)^{1/3} \quad (4.25)$$

Γ est la fonction gamma (Press *et al.*, 1992), N_c est la concentration totale en gouttelettes nuageuses, D est le diamètre des gouttelettes, r_c est le contenu en eau nuageuse, ρ_w et ρ_a sont les densités de l'eau et de l'air, respectivement. α and v sont des coefficients ajustables représentant le spectre des CCN et sont fixés à 1 et 3 pour cette étude, respectivement. Ces valeurs sont issues des travaux effectués par Remy (2006).

La sédimentation des gouttelettes nuageuses est traitée en supposant que les gouttelettes nuageuses ont atteint la vitesse de Stokes ($v = kr^2$, k est une constante et r le rayon des gouttelettes). En supposant que la loi gamma généralisée représente la distribution dimensionnelle des gouttelettes nuageuses (Eq. 4.24), les flux de sédimentation

pour la concentration en gouttelettes nuageuses et le rapport de mélange en eau nuageuse sont données par :

$$F_{N_c} = k_1 N_c D_c^2 \frac{\Gamma(\nu_c + \frac{2}{\alpha_c})}{\Gamma(\nu_c + \frac{3}{\alpha_c})^{\frac{2}{3}}} \Gamma(\nu_c)^{-\frac{1}{3}} \quad (4.26)$$

$$F_{r_c} = k_2 N_c D_c^5 \frac{\Gamma(\nu_c + \frac{5}{\alpha_c})}{\Gamma(\nu_c + \frac{3}{\alpha_c})^{\frac{5}{3}}} \Gamma(\nu_c)^{\frac{2}{3}} \quad (4.27)$$

D_c est le diamètre des gouttelettes.

Les processus de collection sont représentés par l'autoconversion et l'accréation. Ces deux processus sont des termes sources pour l'eau de pluie et des termes puits pour l'eau nuageuse. Ils sont paramétrés selon Khairoutdinov et Kogan (2000).

Le taux d'autoconversion dépend de la concentration en gouttelettes nuageuses N_c et du rapport de mélange en eau nuageuse r_c . Dans le schéma KHKO, le taux d'autoconversion paramétré pour les rapports de mélange en eau nuageuse r_c et en eau précipitante r_r est représenté par :

$$\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{AUTO} = 1350 r_c^{2.47} N_c^{-1.79} = - \left(\frac{\partial r_c}{\partial t} \right)_{AUTO} \quad (4.28)$$

Le terme source pour la concentration en gouttes de pluie est calculé en considérant que les gouttes de pluie formées ont un diamètre D_0 de $50 \mu m$:

$$\left(\frac{\partial N_r}{\partial t} \right)_{AUTO} = \frac{\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{AUTO}}{\frac{\pi \rho_w}{6 \rho_a} D_0^3} \quad (4.29)$$

Le taux d'accréation dépend des rapports de mélange en eau nuageuse et eau précipitante :

$$\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{ACCR} = 67 (r_c r_r)^{1.15} = - \left(\frac{\partial r_c}{\partial t} \right)_{ACCR} \quad (4.30)$$

La collection des gouttelettes nuageuses par les gouttes de pluie implique une augmentation de la masse de ces dernières mais pas leur concentration. C'est pourquoi il n'y a pas de terme source N_r par accrétion.

La diminution de la concentration des gouttelettes nuageuses due à la formation de gouttelettes précipitantes (pluie) par autoconversion ou par accrétion est prise en compte en supposant que les gouttelettes collectées ont un rayon égal au rayon volumique $r_{\nu c}$:

$$\left(\frac{\partial N_c}{\partial t} \right)_{ACCR} = \frac{\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{ACCR}}{4\pi r_{\nu c}^3 / 3\rho_a} \quad (4.31)$$

Le rayon volumique moyen est calculé comme : $r_{\nu c} = \left(\frac{3r_c}{4\pi \rho_w N_c} \right)^{\frac{1}{3}}$.

Les processus microphysiques modifiant le contenu en eau précipitante sont l'évaporation et la sédimentation.

Le taux d'évaporation sur le changement du contenu en eau précipitante est exprimé par :

$$\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{EVAPR} = 3C_{evap}G(T, p)(4\pi\rho_w/3\rho_a)^{\frac{2}{3}}r_r^{\frac{1}{3}}N_r^{\frac{2}{3}}S \quad (4.32)$$

Le paramètre C_{evap} est constant et vaut 0.86, son incertitude est estimée à 15-20%. S représente la sursaturation, G(T,p) correspond au coefficient de l'équation de croissance des gouttelettes par condensation (Khairoutdinov et Kogan, 2000).

Le taux d'évaporation sur la concentration des gouttelettes de bruine selon Khairoutdinov et Kogan (2000) est exprimé par :

$$\left(\frac{\partial N_r}{\partial t} \right)_{EVAPR} = \frac{N_r}{r_r} \frac{\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{EVAPR}}{\frac{\pi\rho_w}{6\rho_a} D_r^3} \quad (4.33)$$

Khairoutdinov et Kogan (2000) proposent les expressions suivantes pour paramétriser les vitesses de sédimentation pour le rapport de mélange en eau précipitante et pour la concentration des gouttes de pluie :

$$V_{N_r} = 0.0035D_r - 0.1 \quad (4.34)$$

$$V_{r_r} = 0.006D_r - 0.2 \quad (4.35)$$

Ces vitesses de sédimentation permettent de calculer les flux de sédimentation de N_r et r_r :

$$F_{N_r} = V_{N_r}N_r \quad (4.36)$$

$$F_{r_r} = V_{r_r}r_r \quad (4.37)$$

Les taux de sédimentation pour N_r et r_r s'écrivent :

$$\left(\frac{\partial N_r}{\partial t} \right)_{SEDR} = \frac{\partial F_{N_r}}{\partial z} \quad (4.38)$$

$$\left(\frac{\partial r_r}{\partial t} \right)_{SEDR} = \frac{\partial F_{r_r}}{\partial z} \quad (4.39)$$

Le lecteur se réfèrera aux travaux de Khairoutdinov et Kogan (2000) pour une description plus approfondie du schéma microphysique KHKO.

4.1.3 Le code de transfert radiatif

Le code de transfert radiatif (Morcrette, 1991) utilisé dans le modèle Meso-NH provient du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (ECMWF). Le schéma calcule les flux radiatifs (montants et descendants) en prenant en compte les processus d'absorption/émission du rayonnement infrarouge thermique (LW) et les processus de réflexion, de diffusion et d'absorption du rayonnement solaire (SW) par l'atmosphère et la surface. Différentes configurations sont disponibles pour traiter le LW et le SW dans le modèle Meso-NH. Les flux radiatifs sont également calculés différemment en conditions de ciel clair ou en présence de nuages.

L'objectif du schéma radiatif est de produire le flux radiatif total net utilisé pour évaluer les variations de température dues au rayonnement :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{g}{C_{ph}} \frac{\partial F_{SW/LW}}{\partial p} \quad (4.40)$$

où T est la température, g est l'accélération gravitationnelle, C_{ph} est la capacité calorifique de l'air humide, p est la pression atmosphérique. $F_{SW/LW}$ correspond au flux net c'est à dire à la différence du flux montant ($F\uparrow$) et du flux descendant ($F\downarrow$) pour LW ou SW.

En présence de nuages, les variables d'entrée du schéma radiatif (pression, température, la concentration en gouttelettes nuageuses et l'eau nuageuse) sont directement fournies à partir des variables pronostiques de Méso-NH correspondantes. Le champs de glace n'est pas considéré dans cette étude. Pour SW, les propriétés radiatives des nuages dépendent de trois paramètres : l'épaisseur optique, le facteur d'asymétrie et l'albédo de simple diffusion des particules. Pour LW, les propriétés nuageuses dépendent du schéma utilisé. Toutes ces propriétés dépendent du LWP (Liquid Water Path) ou du rayon effectif des gouttelettes. Ce paramètre peut être calculé par différents schémas (Eq. 4.41). Le rayon effectif des gouttelettes nuageuses est calculé à partir du spectre des gouttelettes défini dans le schéma microphysique :

$$r_e = 0.5 \frac{\Gamma(\nu + 3/\alpha)^{\frac{2}{3}}}{\Gamma(\nu + 2/\alpha)} \left(\frac{\Gamma(\nu)}{\pi/6\rho_w} \frac{\rho r_c}{N_c} \right) \quad (4.41)$$

Rayonnement solaire

Le calcul des flux radiatifs pour les courtes longueurs d'onde est basé sur le schéma développé par Fouquart et Bonnel (1980). Ce schéma prend en compte l'absorption et la diffusion du rayonnement solaire par les particules d'aérosols, les gaz (uniformément mélangés) et les gouttelettes nuageuses. L'équation du transfert radiatif est résolue par un schéma qui intègre les flux sur le spectre entier des courtes longueurs d'onde compris entre 0.2 et 0.4 μm . Le spectre est divisé en 6 bandes spectrales, 3 dans le visible (0.185-0.25-0.44-0.69 μm) et 3 dans le proche infrarouge (0.69-1.19-2.38-4.00 μm). Les flux montants et descendants sont calculés en supposant que l'atmosphère est divisée en couches plan-parallèles homogènes et en tenant compte des réflexions multiples entre les couches adjacentes. Ces flux montants et descendants sont obtenus à partir des réflectances et transmittances des différentes couches. Ces deux paramètres sont calculés séparément en situation de ciel clair ou en présence de nuages et sont obtenus à partir de l'approximation de Delta-Eddington (Joseph *et al.*, 1976).

Dans le schéma, le rayonnement solaire est absorbé par les gaz (vapeur d'eau, l'ozone et un mélange uniforme de gaz absorbants composé d'oxygène, de dioxyde de carbone, de méthane et d'oxyde d'azote), les particules d'aérosols et les gouttelettes nuageuses. De plus, le rayonnement solaire est diffusé par les molécules (diffusion de Rayleigh), les particules d'aérosols et les gouttelettes. L'approche 'photon path distribution' est utilisée pour l'absorption des gaz atmosphériques. Cette approche calcule la probabilité qu'un photon rencontre une certaine quantité de gaz absorbants.

Rayonnement infrarouge

Le schéma utilisé dans Meso-NH est le Rapid Radiation Transfer Model (RRTM dans la suite) qui est actuellement opérationnel au ECMWF (Mlawer *et al.*, 1997). Le code utilise une méthode à deux flux par bandes spectrales en considérant 16 intervalles compris entre 0 et 1400 cm^{-3} . Il utilise la méthode "k-correlated" (Lacis et Oinas, 1991; Fu et Liou, 1992). Le point principal dans cette méthode est l'application du coefficient d'absorption à partir des intervalles spectrales considérés (variant de manière irrégulière selon la longueur d'onde). La précision de ces coefficients d'absorption a été établie par des validations numériques et continues de LBLRTM (Line-By-Line Radiation Transfer Model) à partir du programme Atmospheric Radiation Measurement (ARM). Le calcul des propriétés optiques LW de l'eau nuageuse est fait à partir de la formulation de Smith et Shi (1992).

Comparé au schéma original RRTM (Mlawer *et al.*, 1997), la version de Meso-NH a été légèrement modifiée pour prendre compte les propriétés optiques des nuages et de l'émissivité de la surface pour chaque bande spectrale dans laquelle les flux sont calculés.

Le lecteur se réfèrera aux articles cités ci-dessus ou à la documentation du modèle Meso-NH disponible sur le site web à l'adresse <http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh/> afin d'obtenir une description plus complète et détaillée du schéma radiatif utilisé dans notre étude.

4.2 Le module d'aérosol ORILAM

Le modèle Meso-NH a été couplé au module d'aérosol ORganic Inorganic Lognormal Aerosol Model (ORILAM) développé par Tulet *et al.* (2005). Le module d'aérosol ORILAM a été étendu par Tulet *et al.* (2006) pour inclure les Aérosols Organiques Secondaires (SOA dans la suite) et devient ORILAM-SOA qui sera utilisé dans notre étude pour la réalisation des simulations du brouillard. Ce module est constitué des mêmes routines dynamiques de l'aérosol que ORILAM, un schéma photochimique est utilisé pour prédire les précurseurs des SOA et un schéma d'équilibre pour prédire la répartition de ces précurseurs entre la phase gaz et la phase aérosol.

ORILAM peut être couplé à un modèle météorologique ou à un modèle de transport de chimie. La description du module d'aérosol ORILAM est détaillée dans les travaux de Tulet *et al.* (2005, 2006). Nous décrivons succinctement dans les paragraphes suivants les principaux processus dynamiques des aérosols présents dans le module ORILAM.

4.2.1 Description générale

En faisant l'hypothèse d'une distribution lognormale, ORILAM prédit l'évolution de cette distribution d'aérosol dans le temps et l'espace. Ceci permet une évolution explicite de la composition chimique de l'aérosol, du nombre, du rayon moyen et de la dispersion σ de la distribution. Ces paramètres de la distribution lognormale sont utilisés pour l'étude de l'action et de la rétro-action de l'aérosol sur la radiation et l'activation des CCN en gouttelettes nuageuses.

L'évolution pronostique du spectre granulométrique est déterminée à partir d'une équation dynamique générale (Friedlander, 1977; Seinfeld et Pandis, 1998) :

$$\frac{\partial n(r_p)}{\partial t} = f(n(r_p)) \quad (4.42)$$

où n est la fonction du spectre granulométrique de l'aérosol (part.cm^{-3}) and r_p est le rayon de l'aérosol (μm). Cette équation peut être intégrée pour obtenir un système d'équation tel que :

$$\frac{\partial M_k}{\partial t} = f(M_k) \quad (4.43)$$

où M_k est le moment d'ordre k donnée par $M_k = \int_0^\infty r_p^k n(r_p) dr_p$ ($\mu\text{m}^k/\text{cm}^3$).

Cinq modes d'aérosols ont été implémentés : le premier mode représente les nouvelles particules formées (mode nucléation), le second correspond aux aérosols de tailles plus importantes et à des aérosols vieillis (mode accumulation), enfin les 3 derniers modes sont consacrés aux poussières désertiques et sont considérés en mélange externe avec les deux premiers modes. Chacun de ces modes est représenté par la distribution lognormale (Eq. 2.1). Seuls les deux premiers modes, nucléation et accumulation sont utilisés dans notre étude. Le moment d'ordre k d'un mode d'aérosol i est défini comme :

$$M_{k,i} = \int_0^\infty r^k n_i(r) dr \quad (4.44)$$

Après intégration en effectuant un changement de variable $x = \frac{\ln(r/D_g)}{\ln(\sigma)}$, l'équation 4.44 devient :

$$M_{k,i} = NR_g^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \ln(\sigma)\right) \quad (4.45)$$

Une combinaison simple avec l'équation 4.45 donne une relation entre M_k et les paramètres de la distribution lognormale σ_g , R_g et N :

$$N = M_0 \quad (4.46)$$

$$R_g = \left(\frac{M_3^4}{M_6 M_0^3} \right)^{1/6} \quad (4.47)$$

$$\sigma_g = \exp\left(\frac{1}{3} \sqrt{\ln\left(\frac{M_0 M_6}{M_3^2}\right)}\right) \quad (4.48)$$

L'intégration de $M_k = \int_0^\infty r_p^k n(r_p) dr_p$ donne $M_{0,i} = N_i$ où N_i est la concentration totale de particules pour le mode i et $M_{3,i} = \frac{3}{4\pi} V_i$ est une fonction directe du volume total du mode i .

4.2.2 La dynamique des aérosols

Les processus dynamiques des aérosols sont modélisés comme décrits par Whitby *et al.* (1991); Binkowski et Shankar (1995); Binkowski et Roselle (2003); Ackermann *et al.* (1998) avec des différences notables :

- Choix d'intégrer 3 moments (0, 3 et 6) comme variables pronostiques ; cette procédure permet de garder tous les paramètres de la distribution modale
- Différentes paramétrisations sont introduites pour la résolution de la chimie inorganique, organique et de la nucléation des sulfate sont données
- Le module d'aérosol peut être couplé avec un modèle météorologique en traitant différentes espèces chimiques
- Les échanges avec la surface sont réalisés à l'aide du modèle de surface SURFEX correspondant aux échanges atmosphère/biosphère (schéma ISBA, Noilhan et Mahouf (1996)), atmosphère/mer (schéma seaflux), atmosphère/ville (schéma TEB, Masson (2000)) et atmosphère/lacs (schéma watflux).

Coagulation

Le spectre granulométrique des aérosols peut être modifié par collision entre les particules, engendrée par *les processus de coagulation*. Les coûts numériques du traitement de la coagulation sont importants mais diminuent quand l'approche lognormale est utilisée. Plusieurs hypothèses ont été faites pour paramétriser la coagulation :

- Une collision entre deux particules forme une nouvelle particule
- La nouvelle particule est sphérique
- Le nouveau volume est égal à la somme des deux volumes des particules initiales.

Il est nécessaire de considérer la coagulation comme un processus de transfert de particules dans la distribution lognormale.

Une convention a donc été mise en place afin de bien paramétriser le processus de coagulation :

- Quand deux particules du même mode entrent en collision (coagulation intramodale), la nouvelle particule restera dans ce mode
- Quand deux particules entrent en collision appartenant à des modes différents (coagulation intermodale), la nouvelle particule se trouvera dans le mode avec le rayon le plus grand

Pour la coagulation intermodale, la seconde convention implique que chaque particule du mode le plus petit (nucléation) est transférée vers le mode le plus grand (accumulation).

Nous n'irons pas plus loin dans la description du processus de coagulation. L'ensemble de la paramétrisation utilisée est décrite dans Tulet *et al.* (2005).

Conversion Gaz - Particules

Les particules préexistantes présentes dans l'atmosphère grossissent par condensation de gaz sur leur surface (cf. chapitre 2.1.1). Le transfert des particules gazeuses peut être à l'origine de la formation de nouvelles particules par le processus de nucléation. En effet, très peu de temps après l'émission d'une particule dans l'atmosphère, plusieurs espèces gazeuses se fixent sur la surface de l'aérosol (processus d'adsorption). Lorsque ces molécules atmosphériques sont soit en nombre suffisant soit se trouvent sur un aérosol avec un rayon de courbure faible, le changement de phase apparaît. A ce stade, le formalisme classique de l'adsorption sur une surface sèche n'est plus applicable. Si le film à la surface de l'aérosol est composé d'un unique constituant en équilibre avec la phase gaz et quand la concentration atmosphérique de ce constituant augmente, les molécules de gaz se condensent alors sur la surface de l'aérosol pour restaurer l'équilibre thermodynamique.

Le processus de condensation est un processus discontinu : la pression partielle doit dépasser une valeur critique pour permettre le changement de phase. Dans ce cas, les propriétés de la surface de l'aérosol sont importantes pour le transfert des molécules gazeuses sur l'aérosol par condensation. Le processus d'absorption (espèces gazeuses pénétrant dans l'aérosol) nécessite d'avoir au préalable l'existence d'un film liquide à la surface de l'aérosol. Dès que la quantité d'une espèce gazeuse est suffisamment importante, plusieurs molécules sont transférées sur l'aérosol par équilibre thermodynamique. Dans ce modèle, l'aérosol est supposé être en équilibre avec son environnement (aérosols secondaires) pour posséder un film liquide à sa surface. Par conséquent, l'absorption a été retenue comme processus majeur du grossissement de l'aérosol.

Comme nous l'avons exposé dans le chapitre 2.1.2, les espèces gazeuses qui interagissent avec la phase aérosol proviennent de deux catégories : inorganique et organique. Les espèces inorganiques sont fondamentales pour prédire la condensation de l'eau et donc le grossissement de l'aérosol. Les espèces organiques incluent un grand nombre d'espèces chimiques différentes ayant des propriétés de solubilité et de pression de vapeur saturante spécifiques. La fraction organique de l'aérosol est capable de modifier l'hygroscopicité de l'aérosol (cf. Chapitre 2.1.2).

Plusieurs paramètres tels que la température, l'humidité relative, le type de surface de l'aérosol et le taux de condensation peuvent être les principaux responsables du grossissement de la particule d'aérosol.

En ce qui concerne le processus de nucléation de l'aérosol, il est nécessaire que la pression de vapeur partielle des espèces gazeuses soit supérieure à la pression de vapeur saturante. De plus, très peu de connaissance au sujet de la nucléation de la matière organique est disponible dans la littérature. La paramétrisation de Kulmala *et al.* (1998) a été choisie pour être en accord avec la théorie classique de la nucléation homogène (Wilemski, 1984) et pour la prise en compte de l'effet d'hydratation.

Dans notre étude, *l'équilibre thermodynamique concernant les inorganiques* est traité par le schéma thermodynamique EQSAM (Metzger *et al.*, 2002).

Dans la troposphère, les composés organiques volatils (COV) sont principalement oxydés par le radical OH, NO₃ et l'O₃. Plusieurs de ces produits ont une pression de vapeur saturante trop faible pour être absorbés et former des SOA. Pour prendre en compte le processus de condensation, il est nécessaire de réaliser l'équilibre thermodynamique de toutes les espèces. Si cela peut être effectué pour les espèces inorganiques, il apparaît irréaliste de l'appliquer aux espèces organiques en raison d'un nombre considérable de composés.

Plusieurs nouveaux schémas chimiques tels que CACM (Griffin *et al.*, 2002) distinguent les produits des COV en accord avec leur capacité à condenser sur la phase aérosol. Le schéma chimique utilisé dans notre travail est RELACS2 et correspond à une réduction du schéma CACM (Tulet *et al.*, 2006).

L'équilibre thermodynamique concernant les organiques est calculé par le schéma MPMPO (Model to Predict the Multiphase Partitioning of Organics) développé par Griffin *et al.* (2003). Ce schéma thermodynamique est basé sur le principe que les COV se répartissent entre les phases gaz et aérosol et à l'intérieur de l'aérosol entre une phase organique (tension de vapeur saturante) et une phase aqueuse (constante de Henry) selon leurs propriétés hydrophiles et hydrophobes. Dans la phase aqueuse, les acides peuvent se dissocier en ions. La phase inorganique est résolue en premier en utilisant le schéma thermodynamique EQSAM. L'eau liquide et le pH trouvés dans la phase inorganique sont utilisés dans les calculs d'équilibre de la phase organique.

Dépôt sec et sédimentation

Sans rentrer dans le détail, *le dépôt sec et la sédimentation* des aérosols sont gouvernés par la diffusion Brownienne :

$$D_p = \left(\frac{kT}{6\pi\nu\rho_{air}r_p} \right) C_c \quad (4.49)$$

et par la vitesse de sédimentation :

$$V_g = \left(\frac{2g}{9\nu} \left(\frac{\rho_{p,i}}{\rho_{air}} \right) r_p^2 \right) C_c \quad (4.50)$$

où k est la constante de Boltzmann, T la température ambiante, ν est la vitesse cinématique

de l'air, ρ_{air} la densité de l'air, $\rho_{p,i}$ est la densité de l'aérosol du mode i et $C_c = 1 + 1.246 \frac{\rho_{air}}{r_p}$.

Le lecteur obtiendra la description complète des paramétrisations des différents processus dynamiques des aérosols présentés brièvement ci-dessus en se référant aux travaux de Tulet *et al.* (2005, 2006).

4.3 La paramétrisation d'activation d'Abdul-Razzak

Le couplage Meso-NH - ORILAM s'effectue à travers la paramétrisation de Abdul-Razzak et Ghan (2004) qui a été implémentée lors de ce travail. Il consiste à utiliser le taux de refroidissement calculé par le modèle Meso-NH et à utiliser le spectre granulométrique et la composition chimique de l'aérosol fournis par ORILAM afin d'estimer la sursaturation critique des particules et le nombre de CCN activés.

4.3.1 Description générale

Abdul-Razzak *et al.* (1998) présente une paramétrisation d'activation des aérosols en combinant les approches de Twomey (1959) et de Ghan *et al.* (1993). Cette paramétrisation utilise une représentation lognormale unimodale de la distribution des aérosols (chapitre 2.1.1) et considère le grossissement de la particule entre le temps nécessaire pour que celle-ci s'active et le temps nécessaire pour que la sursaturation de la masse d'air atteigne sa valeur maximale. Le CCN s'active en atteignant son rayon critique d'activation lorsque la sursaturation de l'atmosphère excède une valeur critique (sursaturation maximale). La paramétrisation fut ensuite étendue à un spectre d'aérosol multimodal dans l'article Abdul-Razzak et Ghan (2000). Cette dernière fut à son tour adaptée pour déterminer la fraction d'aérosols activés constitués d'un mélange chimique interne de composés organiques et inorganiques. Il est important de noter que cette paramétrisation d'activation des aérosols a été validée pour des nuages de couches limites (stratocumulus ou cumulus). Dans ces études, le taux de refroidissement est associé à une parcelle d'air s'élevant adiabatiquement forcée par une vitesse verticale. La paramétrisation est une extension des travaux de Li *et al.* (1998), de Facchini *et al.* (2000) et de Mircea *et al.* (2002).

Nous présentons ici la paramétrisation étendue de Abdul-Razzak et Ghan (2004), celle que nous utilisons dans notre étude de modélisation du brouillard. L'essentiel des équations sera décrit. Cette paramétrisation utilise également la distribution lognormale en prenant en compte plusieurs modes i d'aérosols. Nous rappelons l'équation 2.1 utilisée :

$$n(a_{ap}) = \sum_{i=1}^I \frac{N_{ai}}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma_i} \exp\left(-\frac{\ln^2\left(\frac{a_{ap}}{a_{mi}}\right)}{2 \ln^2(\sigma_i)}\right), \quad (4.51)$$

où N_{ai} correspond à la concentration totale en nombre d'aérosols pour le mode i (en particules/m³), a_{ap} est le rayon de la particule d'aérosol (μm), a_{mi} est le rayon géométrique moyen du mode considéré (μm), et σ_i est la dispersion de la distribution du mode considéré.

La description classique de la formation des gouttelettes nuageuses à partir des particules d'aérosols en fonction de l'humidité relative a été introduite par Köhler (1936). Comme détaillée dans le chapitre 2, la théorie de Köhler postule que la sursaturation de la pression de la vapeur d'eau (S) au-dessus d'une gouttelette est contrôlée par deux effets en compétition : l'effet de courbure de la surface de la gouttelette (terme de Kelvin) et l'effet de soluté (terme de Raoult). L'équilibre thermodynamique pour une gouttelette de rayon r est décrit par :

$$S = \frac{A}{r} - \frac{B a_{ap}^3}{r^3} \quad (4.52)$$

où a_{ap} est le rayon sec de la particule. A représente le terme de Kelvin et est défini selon l'équation 2.11 et B correspond au terme de Raoult exprimé par l'équation 2.12. Contrairement à Abdul-Razzak et Ghan (2004), nous supposons que la densité globale de l'aérosol sec dans notre étude reste constante à 1.8 g.cm^{-3} pour la réalisation des simulations. Les différentes densités de chaque composé chimique ne seront pas prises en compte.

Le but de la paramétrisation basée sur la théorie de Köhler (Köhler, 1936) est de déterminer la fraction activée $\frac{N}{N_a}$ des particules d'aérosols constituées d'un mélange interne de composés organiques et inorganiques (Eq. 4.53) :

$$\frac{N}{N_a} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{2 \ln\left(\frac{S_m}{S_{max}}\right)}{3\sqrt{2} \ln \sigma}\right) \quad (4.53)$$

où la sursaturation maximale S_{max} est représentée par :

$$S_{max} = \sqrt{\frac{S_m^2}{f(\ln \sigma)\left(\frac{\zeta}{\eta}\right)^{\frac{3}{2}} + g(\ln \sigma)\left(\frac{S_m^2}{(\eta+3\zeta)^{\frac{3}{4}}}\right)}} \quad (4.54)$$

$$f(\ln \sigma) = 0.5 \exp(2.5 \ln^2 \sigma) \quad (4.55)$$

$$g(\ln \sigma) = 1 + 0.25 \ln \sigma \quad (4.56)$$

$$\zeta \equiv \frac{2A}{3}(\alpha V/G)^{1/2} \quad (4.57)$$

$$\eta \equiv \frac{(\alpha V/G)^{3/2}}{2\pi \rho_w \gamma N_a} \quad (4.58)$$

et

$$S_m = \sqrt{\frac{4A^3}{27Ba_m^3}} \quad (4.59)$$

est la sursaturation critique des particules activables de rayon sec a_m . $f(\ln \sigma)$ and $g(\ln \sigma)$ sont deux fonctions de σ détaillées dans Abdul-Razzak et Ghan (2004). Contrairement aux travaux de ces auteurs dans lesquels le taux de refroidissement provient essentiellement d'une détente adiabatique, l'originalité de notre travail est de représenter un brouillard de type radiatif dont le taux de refroidissement est essentiellement radiatif. Pour les brouillards radiatifs, le refroidissement radiatif est le principal mécanisme pilotant la sursaturation. Afin de prendre en compte cet effet, un terme supplémentaire dépendant du taux de refroidissement radiatif a été ajouté. Le terme η a donc été modifié et devient $\eta \equiv \frac{2A}{3}((\alpha V + \frac{\partial \theta}{\partial t})/G)^{1/2}$ dans lequel le terme $\frac{\partial \theta}{\partial t}$ représente le taux de refroidissement diabatique.

4.3.2 Validation de la paramétrisation pour le couplage Meso-NH / ORILAM

Afin de valider le couplage entre le modèle Meso-NH et ORILAM, la partie ci-dessous présente des exemples de différentes figures tirées des travaux Abdul-Razzak et Ghan (2000, 2004). Nous comparons dans la suite nos résultats (de couleur rouge sur les graphiques) avec ceux publiés par Abdul-Razzak et Ghan (2000, 2004).

Tests de validation pour une distribution d'aérosol multimodale avec des composés inorganiques (solubles) et/ou insolubles

Pour réaliser ces tests de validation, les conditions d'initialisation issues de Abdul-Razzak et Ghan (2000) ont été utilisées. La température est de 294 K, la pression de 1 000 hPa, la vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1} (correspondant à un taux de refroidissement de -18°K.h^{-1}) et les paramètres de la distribution de l'aérosol sont : $a_{mi} = 0.05 \mu\text{m}$, $N_{ai} = 100 \text{ cm}^{-3}$ et $\sigma_i = 2$, pour deux modes d'aérosols considérés.

Le premier test est réalisé avec les deux modes d'aérosol (Figure 4.1). Le mode 1 est composé de 100 % de sulfate d'ammonium, le mode 2 est composé de 10 % de sulfate d'ammonium ($\nu = 3$, $M = 132$, $\rho_a = 1.77 \text{ g.cm}^{-3}$) et de 90 % de matière insoluble (de densité de 1.77 g.cm^{-3}). La concentration en nombre d'aérosols du mode 1 est de 100 cm^{-3} . La vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1} .

La Figure 4.1 montre la fraction activée d'aérosols pour les deux modes d'aérosol en fonction de la concentration en nombre d'aérosols du mode 2. Seule la composition chimique de l'aérosol diffère entre les deux modes. Ces deux modes coexistent dans l'atmosphère.

Nous observons sur cette figure que lorsque la concentration en nombre d'aérosols présents dans le mode 2 augmente, la fraction activée des deux modes diminue. Seule la concentration du mode 2 varie dans ce test (seule la composition chimique entre les deux modes est différente, mais le rayon modal et le sigma sont identiques pour les deux modes). Lorsque la concentration en nombre d'aérosols du mode 2 augmente, les aérosols présents dans ce mode, du fait de leur nombre important, vont limiter l'augmentation de la sursaturation maximale (S_{max}) limitant ainsi l'activation des aérosols du mode 1. De plus, la fraction activée du mode 2 est plus faible que celle du mode 1 du fait qu'il contient 90 % de matière insoluble et seulement 10 % de matière soluble contrairement au mode 1 qui est totalement soluble.

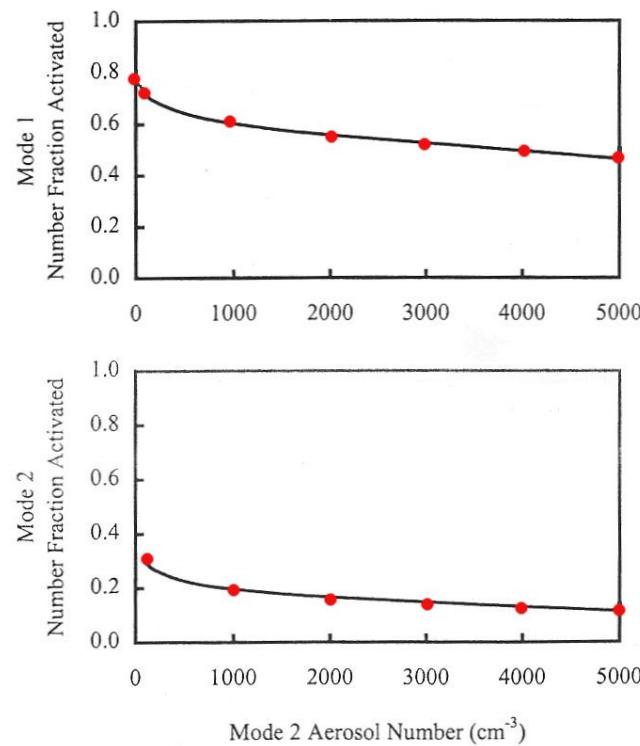


FIGURE 4.1 – *Comparaison de la fraction activée du mode 1 (en haut) et du mode 2 (en bas) en fonction de la concentration du mode 2 entre la paramétrisation Abdul-Razzak et Ghan (2000) (en ligne noire) et les résultats obtenus (en point rouge). Les deux modes d'aérosols ont un rayon modal de $0.05 \mu\text{m}$ et un $\sigma = 2$. Le mode 1 est composé de 100 % de sulfate d'ammonium, le mode 2 est composé de 10 % de sulfate d'ammonium et de 90 % de matière insoluble. La concentration en nombre d'aérosols du mode 1 est de 100 cm^{-3} . La vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1} .*

Pour la réalisation du second test, les deux modes d'aérosol sont composés de 100 % de sulfate d'ammonium. Les deux modes d'aérosols ont un $\sigma = 2$ et sont composés de 100 % de sulfate d'ammonium. Le rayon modal du mode 1 est de $0.05 \mu\text{m}$. Ce test fait varier uniquement la taille du mode 2 afin de regarder l'influence sur la fraction activée.

La Figure 4.2 montre la fraction activée pour deux modes d'aérosol en fonction du rayon modal du mode 2.

Pour ce test, seul le rayon modal du mode 2 varie. Nous constatons que lorsque le rayon modal du mode 2 augmente, la fraction activée de ce mode augmente progressivement contrairement à la fraction activée du mode 1 qui diminue. En effet, en augmentant le rayon modal du mode 2, le spectre granulométrique se déplace vers des aérosols de tailles plus importantes. Ces derniers augmentent en concentration et vont alors diminuer la sursaturation maximale. Cette diminution empêche l'activation des aérosols du premier mode qui ont un spectre granulométrique avec un rayon modal plus faible.

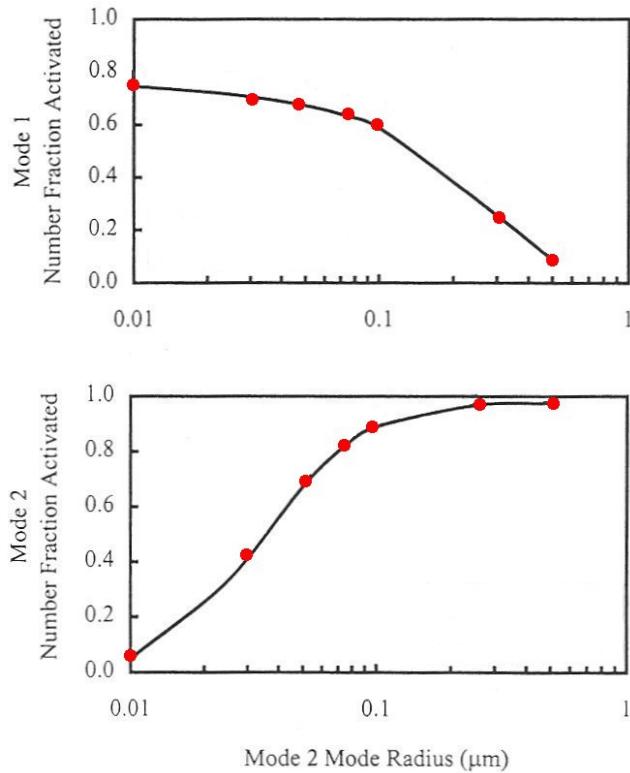


FIGURE 4.2 – *Comparaison de la fraction activée du mode 1 et du mode 2 en fonction du rayon modal du mode 2 entre la paramétrisation Abdul-Razzak et Ghan (2000) (en ligne noire) et les résultats obtenus (en point rouge). Les deux modes d'aérosols ont un $\sigma = 2$ et sont composés de 100 % de sulfate d'ammonium. Le rayon modal du mode 1 est de 0.05 μm et la vitesse verticale est de 0.5 m.s^{-1} .*

La Figure 4.3 montre la fraction activée pour les deux modes d'aérosol en fonction de la vitesse verticale et donc du taux de refroidissement. Ce dernier test considère également les deux modes d'aérosol de rayon modal de 0.05 μm et un $\sigma = 2$. Le mode 1 est composé de 100 % de sulfate d'ammonium et le mode 2 de 10 % de sulfate d'ammonium et de 90 % de matière insoluble.

Seule la vitesse verticale varie au cours de ce test. Plus la vitesse verticale (et donc le taux de refroidissement) devient importante, plus la fraction activée des deux modes augmente. En effet, le taux de refroidissement dû à une détente adiabatique augmente avec la vitesse verticale. Il est important de souligner que les taux de refroidissement rencontrés lors d'épisodes de brouillards radiatifs sont de l'ordre de -1°K.h^{-1} à -15°K.h^{-1} (au sommet du brouillard). Nous nous situons alors pour des brouillards radiatifs à des taux de refroidissement représentés par des vitesses verticales inférieures à 0.1 m.s^{-1} sur la Figure 4.3 correspondant à la partie gauche du graphique. Nous pouvons donc nous attendre à ce que la fraction en nombre d'aérosols activés soit moins importante dans un brouillard.

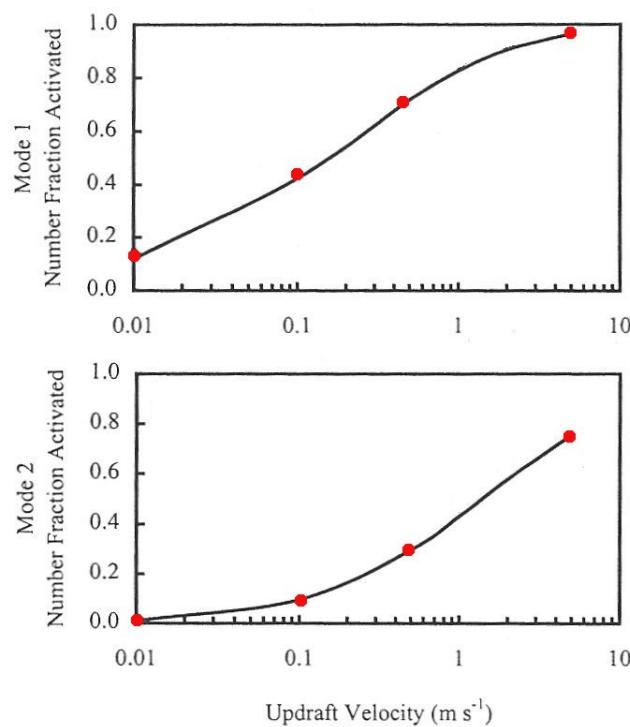


FIGURE 4.3 – *Comparaison de la fraction activée du mode 1 et du mode 2 en fonction de la vitesse verticale entre la paramétrisation Abdul-Razzak et Ghan (2000) (en ligne noire) et les résultats obtenus (en point rouge). Les deux modes d'aérosols ont un rayon modal de $0.05 \mu\text{m}$, un $\sigma = 2$. Le mode 1 est composé de 100 % de sulfate d'ammonium et le mode 2 de 10 % de sulfate d'ammonium et de 90 % de matière insoluble.*

Ces tests nous ont permis de valider le code de la paramétrisation et de comprendre certains processus d'activation des aérosols en reliant spectre granulométrique, vitesse verticale (taux de refroidissement) et en considérant deux modes d'aérosols.

Tests de validation pour une distribution d'aérosol unimodale avec des composés inorganiques et organiques

Le test présenté ci-dessous est tiré de l'article Abdul-Razzak et Ghan (2004). Il permet de montrer l'effet de la composition chimique de l'aérosol en prenant en compte ou non les composés organiques selon la concentration totale en nombre d'aérosols.

Le test est initialisé à une température de $293 \text{ }^{\circ}\text{K}$ et à une pression de 1 000 hPa. Un mélange de NaCl (Chlorure de sodium) et de Sodium Dodecyl Sulfate (SDS) est considéré. Cette composition varie d'un aérosol composé uniquement de NaCl (100 - 0 dans le Tableau 4.1) à un aérosol constitué entièrement de SDS (0 - 100 dans le Tableau 4.1). Le Tableau 4.1 présente les propriétés physico-chimiques des composés NaCl et SDS. Un seul mode d'aérosol est considéré dans ce test.

Composition Chimique	Masse totale en %	Poids Moléculaire	Solubilité	Nombre d'Ions	Coefficient Osmotique	Densité g.cm ⁻³
NaCl	100 - 0	58.5	1	2	1	2.17
SDS	0 - 100	288	1	2	1	1.00

TABLE 4.1 – *Propriétés physico-chimiques des composés SDS et NaCl.*

La Figure 4.4 montre la fraction activée et la sursaturation maximale (S_{max}) en fonction de la quantité de SDS en % constituant l'aérosol et pour trois concentrations d'aérosols différentes (100, 1 000 et 10 000 part.cm⁻³).

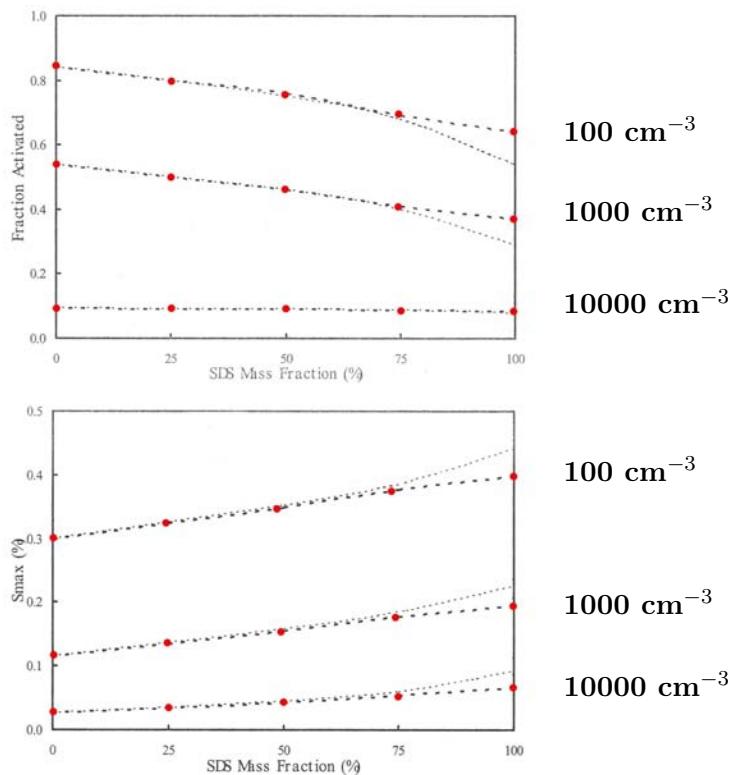


FIGURE 4.4 – *Comparaison de la fraction activée (en haut) et de la sursaturation maximale (en bas) entre la paramétrisation sans surfactants (pointillé fin) et avec surfactants (pointillé gras) Abdul-Razzak et Ghan (2004) et les résultats obtenus (en point rouge) en fonction de la quantité de SDS en % constituant l'aérosol et pour trois concentrations en aérosols différentes. La vitesse verticale est de 0.5 m.s⁻¹. Le rayon modal est de 0.05 µm avec un $\sigma = 2$. La concentration en nombre d'aérosols varie de 100, 1 000 et 10 000 part.cm⁻³.*

Ce test montre que les composés organiques (SDS pour ce test) réduisent la tension de surface, ce qui réduit la sursaturation critique de la particule. Ceci augmente la fraction activée et diminue la sursaturation maximale. Nous constatons sur le graphique que lorsque la fraction massique de SDS est inférieure à 75 % de la masse totale de l'aérosol, la réduction de la sursaturation critique due aux surfactants (cf. chapitre 2.1.3) est dominée par l'augmentation de la sursaturation critique due au terme de Raoult. Le SDS est dilué

dans la gouttelette. La tension de surface est celle de l'eau pure. Au contraire, lorsque la fraction massique de SDS dépasse 75 % de la masse totale de l'aérosol, la tension de surface est contrôlée par les surfactants. La sursaturation maximale est alors réduite et la fraction activée augmente.

Les résultats montrent aussi que la fraction activée augmente avec la diminution de la concentration en nombre d'aérosols.

4.4 Résumé

Ce chapitre a permis d'introduire le volet modélisation de notre travail. Il présente la configuration du modèle atmosphérique non-hydrostatique Meso-NH couplé au module d'aérosol ORILAM permettant la réalisation de simulations unidimensionnelles d'une couche de brouillard radiatif qui seront présentées dans le chapitre suivant.

Cette configuration permet d'aborder au mieux la problématique scientifique de notre travail pouvant montrer l'influence des propriétés des aérosols sur la formation et le développement d'une couche de brouillard radiatif. Successivement, le schéma de turbulence, le schéma microphysique et le schéma radiatif utilisés dans le modèle Meso-NH ont été décrits.

Le module d'aérosol ORganic Inorganic Lognormal Aerosol Model (ORILAM) a également été présenté. La description de l'ensemble des processus dynamiques des aérosols tels que la coagulation, la conversion gaz-particules, dépôt sec et sédimentation a été effectuée.

Le couplage Meso-NH - ORILAM s'effectue à travers la paramétrisation d'activation des aérosols de Abdul-Razzak et Ghan (2004). Cette paramétrisation a été validée pour notre étude.

Chapitre 5

Impact de l'aérosol sur la formation et le développement du brouillard radiatif

Sommaire

5.1	Introduction	140
5.2	Article : Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog	142
5.3	Complément : Validation microphysique	185
5.4	Que se passe-t-il lors de la phase de formation ?	188
5.4.1	Retour sur la relation entre le nombre d'aérosols et le nombre de gouttelettes	188
5.4.2	Pendant les 45 premières minutes	190
5.4.3	Les 45 minutes suivantes	194
5.4.4	Encore plus loin...	197
5.5	Conclusions	200

Cette dernière partie présente le volet modélisation de l'étude. L'ensemble des simulations unidimensionnelles, présentées dans la suite, a été réalisé à l'aide du modèle atmosphérique non-hydrostatique Méso-NH couplé au module d'aérosol ORILAM à travers la paramétrisation de Abdul-Razzak et Ghan (2004). Ce couplage est détaillé dans le chapitre précédente. Il a permis de réaliser des simulations 1-D d'une couche de brouillard radiatif. Le cas d'étude choisi pour ce travail de modélisation concerne l'épisode de brouillard se produisant dans la nuit du 18 au 19 Février 2007 lors de la campagne de mesures Paris-FOG (POI 13). Cet événement est présenté dans le Chapitre 3.

Tout d'abord, une introduction présentera la stratégie choisie pour aborder l'étude de modélisation. Ensuite, nous présenterons les principaux résultats au travers d'un article soumis à "Atmospheric Chemistry and Physics" en 2009. Par la suite, la phase de formation du brouillard sera étudiée en détail. Enfin, la conclusion exposera les principaux résultats.

5.1 Introduction

Le travail présenté dans ce chapitre ne concerne que l'étude de l'impact de l'aérosol sur les phases de formation et de développement d'une couche de brouillard radiatif. Le cas d'étude concerne l'épisode de brouillard se produisant dans la nuit du 18 au 19 Février 2007 lors de la campagne de mesures ParisFOG (POI 13). Dans la suite, ce cas servira le cas de référence.

Dans un premier temps, la sensibilité de l'activation des CCN a été testée en imposant le taux de refroidissement et les caractéristiques de l'aérosol (nombre, taille et composition chimique), dans le cadre de simulations appelées "off-line" (Partie 4 de l'article). Pour la réalisation de ces études, les interactions avec les autres processus physiques (par exemple les processus radiatifs, dynamiques...) n'ont pas été prises en compte. L'objectif de ces simulations "off-line" était d'isoler les influences des propriétés de l'aérosol et du taux de refroidissement atmosphérique sur l'activation des CCN en conditions de brouillard. Dans cette approche, seul le module d'activation (paramétrisation de Abdul-Razzak et Ghan (2004)) a été utilisé. Des études de sensibilité de l'activation des CCN sur la concentration en nombre d'aérosols, sur la taille et sur la composition chimique de l'aérosol ainsi que sur le taux de refroidissement ont donc été effectuées indépendamment. Cette stratégie nous a permis de déterminer les caractéristiques de l'aérosol les plus sensibles sur l'activation des CCN. Tout d'abord, l'effet de la concentration en nombre d'aérosols sur l'activation des CCN a été étudié en fixant le spectre granulométrique et la composition chimique correspondant au cas de référence (POI 13). Ensuite, l'effet de la taille de l'aérosol (diamètre médian) a été effectué pour une composition chimique fixe (provenant du cas de référence) et pour trois concentrations en nombre d'aérosols correspondant à des aires propres, rurales et polluées. Enfin, l'effet de la composition chimique de l'aérosol sur l'activation des CCN a été étudié pour différentes tailles d'aérosol. Ces études de sensibilité ont été restreintes au mode accumulation (Tableau 3.17, Chapitre 3.6.1) car les aérosols activés dans le mode Aitken ont été négligés à cause de leur petite taille. Ces simulations "off-line" constituent une stratégie efficace pour isoler les influences de l'aérosol sur les processus d'activation pour des conditions environnementales variées souvent rencontrées dans des situations de brouillards continentaux.

Cependant pour aller plus loin dans l'étude, il était nécessaire de prendre en compte les interactions entre aérosols et les processus radiatifs, dynamiques et microphysiques prenant place dans le cycle de vie du brouillard. L'évènement observé du brouillard radiatif du cas de référence a donc été simulé (Partie 5 de l'article). Comme nous l'avons vu précédemment, ce cas de brouillard radiatif s'est déroulé dans une zone polluée au sud de la région parisienne, caractérisée par une forte concentration en nombre de particules de $17000 \text{ part.cm}^{-3}$ (Chapitre 3.6.1). Les simulations ont été initialisées à 21 UTC le 18 Février 2007. Comme signalé précédemment, seules les phases de formation et de développement ont été étudiées. La phase de dissipation n'a pas été traitée dans cette étude. Il est nécessaire avant d'étudier la phase de dissipation de bien comprendre les différents processus et les interactions intervenant pendant la phase de développement afin de bien aborder cette dernière phase du cycle de vie du brouillard. On peut citer par exemple la prise en compte de la composition chimique des gouttelettes, les aérosols interstitiels

non activés, les caractéristiques radiatives des aérosols contenus dans les gouttelettes de brouillard... Tous ces processus demandent à être bien compris pour aboutir à des paramétrisations capables de bien aborder la phase de dissipation ce qui demande un travail de longue haleine. Les caractéristiques de la couche limite (profils de température, d'humidité relative et de vents) au temps initial ont été fournies par le radiosondage effectué au cours de la soirée du 18 Février 2007 à 21 UTC. Le type de sol a été déterminé à partir d'analyses de texture de sol et correspond principalement à des marnes sableuses. La surface est composée de 80 % de prairies, 15 % de bâtiments et 5 % de lac (Figure 3.1). La distribution initiale des propriétés des aérosols pour toutes les simulations est constante avec l'altitude. La résolution verticale est de 1 mètre jusqu'à 50 mètres d'altitude. Au-delà de 50 mètres, la grille verticale est progressivement étirée. 155 niveaux verticaux ont été utilisés dont 50 niveaux pour les 50 premiers mètres.

Pour la simulation du cas de référence, l'initialisation des propriétés des aérosols proviennent de l'étude effectuée dans la partie 3. Le spectre granulométrique des aérosols correspond ainsi au spectre granulométrique observé à 21 UTC avant la formation du brouillard. La concentration totale en nombre d'aérosols a été initialisée à $17000 \text{ part.cm}^{-3}$ avec $8700 \text{ part.cm}^{-3}$ pour le mode Aïtken et $8300 \text{ part.cm}^{-3}$ pour le mode Accumulation (Tableau 3.17, Chapitre 3.6.1). Dans un premier temps, une validation de la simulation du cas de référence a été effectuée en comparant les profils de température potentielle observée et simulée, l'évolution du flux infra-rouge descendant à 2 mètres observée et simulée et l'évolution de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses observée (par l'OPC Pallas welas 2000) et simulée à 2 mètres. Dans un second temps, trois simulations ont été réalisées en faisant varier la concentration en nombre d'aérosols du mode accumulation (1000, 5000 et $12000 \text{ part.cm}^{-3}$). Dans l'article, les tests de sensibilité prennent les noms suivant : pour le cas à $1000 \text{ part.cm}^{-3}$, le test se nomme "Slightly Polluted", celui à $5000 \text{ part.cm}^{-3}$ s'appelle "More Polluted" et celui avec $12000 \text{ part.cm}^{-3}$ "Heavily Polluted". Enfin, deux simulations ont été effectuées en modifiant la composition chimique de l'aérosol. Pour réaliser ces deux simulations, la composition chimique choisie correspond à un aérosol de 10 % de solubilité et de 85 % de solubilité.

5.2 Article : Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog

Article soumis à "Atmospheric Chemistry and Physics Discussions" en 2009 et disponible en ligne à l'adresse suivante :

<http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/17963/2009/acpd-9-17963-2009.pdf>

Les références de l'article sont :

Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog
J. Rangognio, P. Tulet, T. Bergot, L. Gomes, O. Thouron, and M. Leriche Atmos. Chem. Phys. Discuss., 9, 17963-18019, 2009

Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog

J. Rangognio¹, P. Tulet^{1,3}, T. Bergot¹, L. Gomes¹, O. Thouron¹, and M. Leriche²

¹GAME / CNRM (Météo-France, CNRS), Toulouse, France

²Laboratoire d'Aérologie / UMR 5560 / CNRS-UPS, Toulouse, France

³Lacy / UMR 8105 / Université de la Réunion, Saint-Denis, France

Correspondence to: J. Rangognio
(jerome.rangognio@laposte.net)

Abstract.

This paper assesses the impact of aerosol properties on the formation and the development of radiation fog. Simulations were performed using the Meso-NH meteorological model including the ORILAM aerosol scheme coupled with a two-moment microphysical cloud scheme (number concentration of cloud droplets and cloud water content). The activation scheme used was taken from the work of Abdul-Razzak and Ghan (2004). "Off-line" sensitivity analysis of CCN (Cloud Condensation Nuclei) activation was performed on number, median diameter and chemical compounds of aerosols. During this "off-line" study, the interactions with the other physical processes (e.g. radiative) were not taken into account since the cooling rate was imposed. Different regimes of CCN activation and a critical value of aerosol number concentration were found. This critical aerosol number corresponds to the maximum of activated cloud droplets for a given cooling rate and given aerosol chemical properties. As long as the aerosol number concentration is below this critical value, the cloud droplet number increases when the aerosol number increases. But when the aerosol number concentration exceeds this critical value, the cloud droplet number decreases when aerosol number increases. A sensitivity study on aerosol chemical composition showed that the CCN activation was limited in the case of hydrophilic aerosol composed of material with a solubility in the 10 % range. An event observed during the ParisFOG field experiment was simulated. This case took place in the polluted sub-urban area of Paris (France) characterized by particle concentrations of 17000 aerosols per cm^3 . 1D simulations successfully reproduced the observed temporal evolution of the fog layer. Beyond the initial fog formation at the surface, cloud droplet formation occurred at the top of the fog layer where the cooling rate was maximum, reaching more than -10 K.h^{-1} . These simulations confirm that the aerosol particle number concentration is a key parameter for the accurate prediction of the microphysical properties of a fog layer and also influences the vertical development of fog. The important of the interaction between microphysical and radiative processes is illustrated, showing how the life cycle of a fog layer is determined by the CCN number concentration and chemical properties.

1 Introduction

25 Aerosols and clouds play a major role in environmental, meteorological and climatic processes, and the aerosol-cloud interactions are now identified as a key challenge for the understanding of climate change. Vautard et al. (2009) estimates that the reduction in low-visibility conditions could have contributed about 20% on average to Europe's recent daytime warming and about 50% to eastern European warming. More locally, fog has a significant impact on economic and safety aspects. Timely and accurate forecasts of reduced visibility are necessary for the

30 agencies responsible for road safety, search and rescue operations and air traffic management. Nevertheless, fog forecasting by meteorological services is still a difficult issue. For instance, Pagowski et al. (2004) studied a fog episode related to a major traffic accident in Canada and pointed out that the forecasting of fog was very difficult because of its high variability and because of the complex interactions between physical processes occurring inside a fog layer. The fog life cycle is determined by thermodynamic, dynamic, radiative, and microphysical processes,

35 and by surface conditions. One of the particularities of fog is its development within the surface boundary layer, in contact with the ground, where aerosol concentrations are the highest and surface heterogeneities imply complex heat, water, radiative and chemical fluxes.

Radiation fog is mainly formed during the night above continental surfaces under high pressure systems. The radiative cooling of the surface can lead to saturated conditions and hence to cloud droplet formation. The life

40 cycle of radiation fog can be decomposed into three steps according to the behaviour of the turbulent kinetic energy: onset, vertical development and dissipation (e.g. Nakanishi 2000). Only the two first steps will be studied in this work.

Cloud droplet formation occurs with heterogeneous nucleation onto aerosol particles (e.g. Pruppacher and Klett 1997). Particles that serve as nuclei upon which water vapour condenses are called cloud condensation

45 nuclei (CCN). The parametrization of CCN activation is well developed (e.g. Twomey 1959; Ghan et al. 1993; Abdul-Razzak et al. 1998; Cohard and Pinty 2000a,b; Nenes and Seinfeld 2003; Cheng et al. 2007), since the activation process directly links microphysical aerosols and clouds. The size distribution and chemical composition of aerosols heavily influence CCN activation. Atmospheric aerosols are largely composed of soluble inorganic species but it is now known that a significant proportion of soluble matter (ranging from 20 % up to 70 % of the

50 total soluble mass in some cases) also consists of organic compounds (e.g. Saxena and Hildemann 1996; Zappoli et al. 1999). Some organic compounds are surface active (surfactants) and their presence within particle solutions can significantly affect CCN activation (e.g. Shulman et al. 1996; Li et al. 1998; Facchini et al. 2000).

Numerous numerical models have been developed for the description of fog physics (e.g. Brown and Roach 1976; Brown 1980; Duynkerke 1991; Bergot and Guedalia 1994). Some studies also show that the interaction

55 between aerosol and fog is an important issue (Pandis and Seinfeld, 1989a,b; Seinfeld et al., 1992; Bott, 1991; Bott and Carmichael, 1993). In the fog life cycle, the condensation process and cloud droplet sedimentation are crucial. Detailed understanding and modelling of the fine microphysical processes taking place inside a fog layer has been limited by the lack of suitable sets of dynamic, turbulent, radiative and microphysical measurements. Nevertheless, during the last few decades, several studies have observed and studied the chemistry of fog, in

60 particular the interaction of fog with black carbon (Badarinath et al., 2007; Husain et al., 2007) and with sulphate (Seinfeld et al., 1992; Reilly et al., 2001), and the chemistry of cloud droplets in fog (Fisak et al., 2002; Blando

and Turpin, 2000; Moore et al., 2004; Aikawa et al., 2007).

Many previous works have studied CCN activation inside stratocumulus or cumulus, i.e. associated with a significant cooling rate mainly forced by a vertical velocity. The specificity of this work is to study CCN activation 65 in foggy conditions. Therefore, the framework is relatively different to past studies on activation. Firstly, the fog is a cloud in contact with the ground where aerosol concentrations are the highest. Secondly, the cooling rate is mainly associated with radiative cooling and, consequently, is different from the cooling of other boundary layer clouds associated with vertical velocity. Moreover, this cooling rate is maximum at the top of the fog layer, leading to maximum production of liquid water near the top of the fog.

70 Aerosols influence the fog life cycle in a complex way. The number, size and chemical properties of aerosol particles are key properties in the activation processes. Consequently, the aerosol characteristics directly affect the microphysical properties of a fog layer (number and size of the fog droplets). But the microphysical properties of a fog layer indirectly influence the life cycle of the fog through the interactions between microphysical, dynamic and radiative processes.

75 The primary objective of this work was to analyse CCN activation in foggy conditions and to quantify the effects of the aerosol size distribution, concentration and chemical composition on the formation and the evolution of the vertical structure of fog.

In a first step, sensitivity tests of the activation processes only were performed. The goal of these so-called "off-line" simulations was to isolate the influences of aerosol properties and atmospheric cooling rates on the CCN 80 activation. In this approach, the interactions with the other physical processes (such as radiative) were not taken into account since the cooling rate was imposed. This study focused on the sensitivity of aerosol activation to differences in the air mass encountered above a continental surface. In the second step, an observed fog case was modelled in order to study the complex interactions involved in a fog layer. To achieve this objective, a series of simulations were performed, based on data gathered during the ParisFOG field experiment (Bergot et al., 2008).

85 Comprehensive 1D simulations were made with the Meso-NH numerical mesoscale model (Lafore et al., 1998), in which the ORILAM aerosol scheme (Tulet et al., 2005) was coupled with the two-moment microphysical scheme from the work of Khairoutdinov and Kogan (2000) through the activation scheme of Abdul-Razzak and Ghan (2004). This set of 1D simulations served as the basis for a comprehensive study of the interactions between aerosol properties, and microphysical and dynamic processes taking place during the life cycle of fog. Complex 90 interactions between short wave radiation, aerosols and cloud droplets occur during the dissipation stage. The influence of aerosol on the dissipation of a fog layer is not studied in this work, and will be the subject of a future study.

The numerical models used in this study are described in section 2 while observations are described in section 3. Section 4 illustrates the sensitivity of activation processes to aerosol properties obtained from the 'off-line' 95 simulations. Results from 1D simulations of a radiation fog event observed during the ParisFOG experiment are discussed in section 5. And, finally, section 6 summarizes the results.

2 Numerical Tools

2.1 Meso-NH Model and the 2-moment warm microphysical parameterization

Meso-NH is a meteorological model jointly developed by CNRM/GAME (Météo-France) and the Laboratoire d'Aérologie (CNRS) (Lafore et al., 1998). Meso-NH simulates small-scale (Large Eddy Simulation, LES type, horizontal resolution of a few meters) to synoptic-scale (horizontal resolution of several tens of kilometres) features and can be run in a two-way nested mode involving up to eight nested grids. Different sets of parameterizations have been introduced for the representation of various physical influences (for details, see <http://mesonh.aero.obs-mip.fr>). For this study, the sub-grid scale turbulence was parameterized with a 1.5 closure for the vertical fluxes using the prognostic turbulent kinetic energy. The turbulence scheme used was that of Cuxart et al. (2000) and the turbulent mixing length was from Bougeault and Lacarrère (1989). Details of the shortwave radiation code are given in Morcrette (1989) while the longwave radiation scheme was the Rapid Radiation Transfer Model (Mlawer et al., 1997). The cloud shortwave optical properties are determined following Fouquart (1987) and the cloud longwave optical properties were treated with Smith and Shi (1992)'s formulation. The coupling between the atmosphere and the underlying surface was based on the ISBA scheme (Interactions between the Soil Biosphere and Atmosphere, Noilhan and Planton 1989), extended by the TEB (Town Energy Balance) parameterization (Masson, 2000) for urban-atmosphere interaction. The numerical model has been validated previously for several cases of fog and low-level cloud (e.g. Bergot et al. 2007; Sandu et al. 2008).

The cloud microphysics were computed using a bulk microphysics parameterization based on the Kessler scheme (Kessler, 1969). The liquid water was separated into cloud water and precipitation. The 2-moment warm microphysical parameterization was taken from the work of Khairoutdinov and Kogan (2000), and extended by Geoffroy (2007). The number concentration of cloud droplets (N) and the cloud water content (q) were prognostic. The parameterization of microphysical processes (drizzle droplet sedimentation, autoconversion, accretion, condensation and vaporisation) are detailed in Khairoutdinov and Kogan (2000) and Geoffroy (2007). A key aspect of the parameterization was the assumption that the cloud droplet distribution followed the generalized gamma distribution:

$$n(D) = N \frac{\alpha}{\Gamma(v)} \lambda^{\alpha v} D^{\alpha v - 1} \exp(-(\lambda D)^\alpha), \quad (1)$$

where

$$\lambda = \left(\frac{\pi}{6} \rho_w \frac{\Gamma(v + 3/\alpha)}{\Gamma} \frac{N}{q} \right)^{1/3} \quad (2)$$

Γ is the gamma function (Press et al., 1992), N the cloud droplet concentration, D the diameter of the cloud droplet, q the liquid water content, and ρ_w the density of liquid water. α and v are empirical coefficients set to 1 and 3 respectively, as derived from observations.

2.2 The Organic Inorganic Log-normal Aerosol Module (ORILAM)

ORILAM (Tulet et al., 2005) is a three-moment log-normal aerosol scheme based on number, mass composition and standard deviation. This aerosol module is coupled with the ReLACS2 chemical scheme (Tulet et al., 2006) based on the CACM scheme (Griffin et al., 2002). ORILAM takes a range of internally mixed aerosol compounds

into account, such as BC (black carbon, viewed as soot in our study), OC (primary organic aerosol), H₂O (water), NH₄⁺ (ammonium), NO₃⁻ (nitrates), SO₄²⁻ (sulphates) and ten different SOA types as defined by Griffin et al. (2003). The log-normal approach is given for each mode by:

$$135 \quad n(r_{ap}) = \frac{N_r}{\sqrt{2\pi} \ln \sigma} \exp\left(-\frac{\ln^2\left(\frac{r_{ap}}{r_m}\right)}{2 \ln^2(\sigma)}\right), \quad (3)$$

where N_r is the aerosol number concentration (in particles.cm⁻³), r_{ap} is the aerosol particle radius, r_m is the geometric mean radius, and σ is the geometric standard deviation. The multimodal aerosol distribution computed by ORILAM is used by the CCN activation scheme described in the next section.

2.3 The CCN activation scheme

140 The coupling between Meso-NH and ORILAM consists of using the atmospheric cooling rate computed in Meso-NH and the aerosol chemical composition and size distribution computed by ORILAM to estimate the supersaturation and the number of activated CCN. The aerosol activation scheme used is that of Abdul-Razzak and Ghan (2004), which is an extension of Abdul-Razzak et al. (1998) and Abdul-Razzak and Ghan (2000). A detailed description of the activation scheme can be found in Abdul-Razzak and Ghan (2004) and only the main characteristics 145 of this parameterization will be described here.

The purpose of this parameterization, based on the Köhler theory (Köhler, 1936) is to determine the fraction $\frac{N}{N_a}$ of activated aerosol particles composed of an internal chemical mixture of organic and inorganic compounds (Eq. 4):

$$\frac{N}{N_a} = \frac{1}{2} \operatorname{erfc}\left(\frac{2 \ln\left(\frac{S_m}{S_{max}}\right)}{3\sqrt{2} \ln \sigma}\right) \quad (4)$$

150 where S_m and S_{max} are defined further.

In this activation scheme, the influence of organic surfactants is considered by modifying the Köhler curve decreasing the value of surface tension. According to Shulman et al. (1996), the Raoult term (noted B) for internal chemical mixtures can be expressed by assuming additive behaviour of the two compounds and can be reformulated as follows:

$$155 \quad B = \frac{M_w \rho_{ap}}{\rho_w} \left[\frac{v_{sal} \phi_{sal} (1 - \epsilon_m)}{M_{sal}} + \frac{v_{sft} \phi_{sft} \epsilon_m}{M_{sft}} \right] = B_{sal} + B_{sft} \quad (5)$$

where ε_m is the soluble mass fraction of the organic surfactants over the total soluble mass of aerosol, M_w is the molecular weight of H₂O, ρ_w is the density of H₂O, φ_{sal} and φ_{sft} are the osmotic coefficients of the salts and the surfactants respectively, v_{sal} and v_{sft} are the number of equivalent ions into which a molecule dissociates into salts and surfactants respectively, ρ_{ap} is the density of dry aerosol particles and M_{sal} and M_{sft} are the molecular 160 weight of salts and surfactants respectively. B_{sal} and B_{sft} are the contributions of the salt and the surfactant to the Raoult term B.

This parameterization takes account of the effect of aerosol composition (both inorganic and organic) on hygroscopicity (Raoult term, B) and on surface tension (Kelvin term, A). The activated aerosol concentration calculated by Eq. 4 corresponds to the concentration of cloud droplets formed. The critical supersaturation of the smallest

165 aerosol particle activated is equal to the maximum supersaturation S_{max} :

$$S_{max} = \sqrt{\frac{S_m^2}{f(\ln \sigma) \left(\frac{\zeta}{\eta}\right)^{\frac{3}{2}} + g(\ln \sigma) \left(\frac{S_m^2}{(\eta+3\zeta)^{\frac{3}{4}}}\right)}} \quad (6)$$

where

$$S_m = \sqrt{\frac{4A^3}{27Br_m^3}} \quad (7)$$

is the critical supersaturation for the activation of particles with dry radius r_m . $f(\ln \sigma)$ and $g(\ln \sigma)$ are two functions of σ ; ζ and η are two dimensionless terms depending on the atmospheric cooling rate (due to updraft velocity of an air parcel rising adiabatically in Abdul-Razzak and Ghan 2004 for details). For radiation fog, radiative cooling is the main mechanism driving the supersaturation. In order to take this effect into account, an additional term depending on the diabatic cooling rate is added.

The critical supersaturation (Eq. 7), and consequently the CCN activation, is driven by the chemical composition (effect on the Raoult term, B) and by the aerosol size (effect on the Kelvin term, A). For a given cooling rate, bigger aerosol particles or the presence of salt compounds decrease the critical supersaturation and hence increase the fraction activated.

3 Observations

3.1 ParisFOG Field Experiment

180 The six-month ParisFOG fog field experiment was carried out during the 2006-2007 winter season in a suburban area 20km south of Paris, France (Bergot et al. 2008 and <http://sirta.ipsl.polytechnique.fr/parisfog/>). The objectives of ParisFOG were to observe and describe, as thoroughly as possible, several fog events during a winter season and to provide complete information on the various processes taking place during the life cycle of fog (turbulence, microphysics, radiation and surface exchanges). The overall aim of this experiment was thus to improve our 185 understanding and our ability to simulate the life cycle of fog in order to enhance the quality of fog forecasts. The present work mainly focuses on the influence of microphysical processes taking place during an episode of dense radiation fog which occurred during the night of 18 to 19 February 2007 (corresponding to the Intensive Observation Period, IOP 13, of the experiment). Given the focus of the study, only the microphysical instruments will be presented here. A complete description of ParisFOG instrumentation is given in Bergot et al. (2008) or on 190 the web site dedicated to this experiment.

3.2 Microphysical instrumentation

The particle number size distribution within a diameter between 10 and 500 nm was obtained from a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) composed of a long Differential Mobility Analyzer (DMA, model TSI 3081) connected to a Condensation Particle Counter (CPC, model TSI 3025 High Flow) and from an optical particle counter 195 (OPC, model GRIMM 1.109) for a diameter range of 0.25 to 32 μm . These measurements were performed in an air-conditioned mobile laboratory. The aerosol was sampled via a low-flow PM2.5 inlet at a height of approximately 2 m and measured for relative humidity below 50 % with a 10-min resolution. Thus, both instruments

were considered to operate in dry conditions at a flow rate of $0.5 \text{ l}.\text{min}^{-1}$ and $1.2 \text{ l}.\text{min}^{-1}$ for the DMA and the OPC respectively. Both instruments were calibrated before the field campaign by using known concentrations of 200 mono-disperse ammonium sulphate aerosols and PSL aerosols.

Aerosol samples were also collected on filters within two size fractions (fine mode with particle diameters smaller than $2 \mu\text{m}$ and coarse mode with particle diameters larger than $2 \mu\text{m}$) before, during and after the fog event. Aerosol mass concentration was determined by gravimetric measurements and chemical analysis of the major components (ions, carbon, metals) were performed for these two size fractions using the procedure reported 205 by Sciare et al. (2005).

The fog droplet number size distribution was measured using another OPC (model Pallas Welas 2000) especially designed for environmental monitoring. The optical sensing volume was set-up outdoors at a height of about 2 m and connected to the rest of the device via an optical fibre. The Pallas Welas OPC was regularly calibrated using mono-disperse polystyrene latex (PSL) aerosols. The calibration curve was corrected to take the refractive index 210 of water into account. The droplet number distribution was measured within a diameter range of $0.4 - 40 \mu\text{m}$.

3.3 The Intensive Observation Period 13: 18-19 February 2007

3.3.1 Synoptic situation

During this IOP, the Paris region was in a ridge of high pressure. The atmosphere cooled rapidly between 15 and 23 UTC (-2 K.h^{-1} on average at 2 m, Figure 1a). The fog appeared over the site at around 22:30 UTC (horizontal 215 visibility less than 1000 m) and became dense (horizontal visibility less than 70 m) after 23 UTC (Figure 1b). The vertical radiosounding carried out at 03 UTC suggests a rapid vertical development of fog with an observed height of 130 m, characterized by a well-developed mixed layer within the fog layer. After 23 UTC, the temperature at 2 meters remained around 268 K (Figure 1a) until sunrise. The visibility remained below 150 m during the whole fog event (Figure 1b). The dissipation of the fog layer occurred around 08 UTC (Figure 1b).

220 3.3.2 Aerosol properties

The number concentration of aerosol particles measured by the integration of the SMPS data for a diameter between 10 and 500 nm is presented in Figure 2. During the period studied, the total number concentration of particles (solid line) varied between 5000 (at 12 UTC) and 20000 cm^{-3} just before the onset of the fog episode. Log-normal functions were fitted to the observed size distributions according to Eq. 3 to provide the modal parameters (i.e. 225 amplitude, median diameter and standard deviation) of the various populations constituting the aerosol population before fog (Table 1).

The fitted size distribution brings out the presence of two distinct modes of submicron particles: an Aitken mode ($D_p < 50 \text{ nm}$) and an accumulation mode ($D_p > 50 \text{ nm}$), typical of an urban aerosol. A preliminary analysis of these observations showed that the aerosol properties during IOP 13 were highly influenced by anthropogenic 230 emissions, with the presence of ultra fine particles (UFP) smaller than 100 nm (Figure 2). These particles came from local sources and were either directly emitted from combustion sources (mainly from vehicles) or formed by chemical reactions resulting in gas-to-particle conversion. These processes are generally followed by a growth of particles by condensation, mostly from volatile organic compound (VOC) oxidation products (Seinfeld and Pandis,

1998). These processes, along with the decreases of the boundary layer thickness, can explain the high aerosol
235 number concentrations observed between 18 UTC and 00 UTC. The influence of coarse particles (like sea-salt or mineral dust) did not appear significant, as confirmed by measurements carried out with the Grimm OPC for the fraction of particles larger than 500 nm (not shown).

Table 1 also shows that the characteristics of the aerosol accumulation mode changed rapidly. At the beginning of the night, during strong radiative cooling; the median diameter increased from 78.5 nm at 17 UTC to 110 nm at
240 21 UTC. During this period, the aerosol number concentration increased rapidly from 7400 cm^{-3} to 11400 cm^{-3} between 17 UTC and 18 UTC, then after 19 UTC decreased to 8300 cm^{-3} . Since the aerosol size distribution was measured for a constant value of RH (< 50%), the increase of median diameter can be attributed to the condensational growth of particles.

The analysis of aerosol chemical composition was based on filter samples collected between 20 UTC (18 February 245 2006) and 09 UTC (19 February 2006). Consequently, only an average mass of chemical compounds was determined, indicating that the overall aerosol composition was dominated by organic carbon (38.6 %) including Secondary Organic Aerosols (SOA) and Primary Organic Aerosol (POA). Unfortunately, the measurement system was not able to separate SOA from POA in the observed total organic mass. The total particulate organic matter (POM) was estimated to be $[\text{POM}] = 1.6 [\text{OC}]$ (Putaud et al., 2000). The inorganic salts (ammonium sulphate 250 and ammonium nitrate) were derived from the chemical analysis, which measured the mass of sulphates, nitrates and ammonium. The inorganic aerosol fraction mass was also large, with 25 % of ammonium sulphate and 20 % of ammonium nitrate. Soot (BC) formed 16.4 % of the total mass. This chemical mass composition of aerosol indicates that aerosol particles observed during the period of interest were rather hydrophilic.

The aerosol characteristics (chemical composition and size distribution obtained for the two fitted modes) observed 255 at 21 UTC and described above, were taken for the initialization of the so-called "reference" numerical simulation in sections 4 and 5. The size distribution of the two modes corresponds to median diameters of 33 nm and 110 nm and standard deviations of 1.57 and 1.59 for the Aitken and the accumulation modes respectively.

4 Sensitivity of Activation to Aerosol Properties

This section focuses on the sensitivity of CCN activation to aerosol properties, such as the aerosol number concentration, 260 the aerosol size distribution and their chemical composition. In order to isolate the sensitivity of activation processes, all the other physical processes were ignored. In these so-called "off-line" simulations, the atmospheric conditions and the aerosol characteristics were imposed, and only the activation module was used. All the numerical simulations presented here had stationary atmospheric conditions typical of fog during winter (278 K for temperature, 995 hPa for pressure and 100% relative humidity). The sensitivity of CCN activation was studied for 265 different air masses encountered above continental surface. The physical and chemical properties of the aerosols studied are summarized in Table 2. The reference case corresponds to the observed aerosol discussed in the previous section. The sensitivity of CCN activation to aerosol number concentration, aerosol size and aerosol chemical composition were studied independently. This allowed us to determine the most sensitive aerosol characteristics. In a first step, we studied the effect of aerosol number concentration for the aerosol size distribution and the chemical 270 composition corresponding to the reference case. In the second step, the effect of the aerosol median diameter

was studied for fixed chemical composition and three aerosol number concentrations corresponding to clean, rural and polluted areas. Finally, the effect of chemical composition was studied for different aerosol sizes. The aerosol density ρ_{ap} was set to 1.8 g.cm^{-3} and the osmotic coefficient ϕ was taken equal to 1 for all chemical compounds following Mircea et al. (2002). Sensitivity studies were restricted to the accumulation mode in this section because 275 activated aerosols in the Aitken mode were negligible due to their small size.

4.1 Sensitivity tests on aerosol concentration

The sensitivity tests presented here focused on the impact of aerosol concentration on the CCN activation. Different cases were considered according to the cooling rate. The studied aerosol concentrations were representative of polluted urban areas where aerosols are freshly emitted to a plume spreading from polluted urban areas to rural 280 or clean areas. In the latter case, the air mass becomes diluted during the transport, leading to a decrease in the aerosol number concentration. We assumed that the aerosol chemical composition and size distribution did not change with dilution and remained equal to the reference case (median diameter of 110 nm, geometric standard deviation of 1.59 and the reference chemical composition given in Table 3).

Figure 3a shows the activated aerosol fraction as function of aerosol number concentration for a cooling rate 285 of -10 K.h^{-1} . Three environments can be distinguished according to aerosol number concentration. For the first environment, corresponding to a polluted area ($N_a > 8000 \text{ particles.cm}^{-3}$) as observed during IOP 13, the activated aerosol fraction is very small (less than 5%). The second environment corresponds to a rural area ($100 < N_a < 8000 \text{ particles.cm}^{-3}$), where the fraction of activated aerosol increases linearly with the aerosol number concentration. The third environment is a clean environment ($N_a < 100 \text{ particles.cm}^{-3}$) in which more than 290 75% of particles are activated. When aerosol concentration increases, the maximum supersaturation S_{max} decreases, and the critical diameter to activate aerosols increases. Consequently, the activated fraction decreases with an increase of aerosol concentrations. However, it should be pointed out that, due to the large number of aerosols in the polluted case, the number of activated aerosols will be greater than for the clean case.

The influence of cooling rates in contrasting environments are further investigated here. To represent these 295 three environments, we considered a clean area with $83 \text{ particles.cm}^{-3}$, a rural area with $830 \text{ particles.cm}^{-3}$ and a polluted area with $8300 \text{ particles.cm}^{-3}$. The cooling rates imposed were representative of the cooling rate observed near the ground during fog formation (cooling rate by 0 K.h^{-1} to -4 K.h^{-1}) and that found at the top of the fog layer during the development phase (cooling rate by -4 K.h^{-1} to -15 K.h^{-1}), e.g. Brown and Roach (1976); Bergot and Guedalia (1994). For the three environments described previously, the fraction of activated aerosol increased 300 with the cooling rate (Figure 3b). However, it increased more rapidly for the clean case than for a polluted one. For a cooling rate of -2 K.h^{-1} , the fraction activated was insignificant for a polluted area, was 10% for a rural area and 40% for a clean area. For a cooling rate of -10 K.h^{-1} , the fraction activated was 4% for a polluted area, 40% for a rural area and 80% for a clean area. Whatever the aerosol number concentration, the number of activated aerosols (i.e. cloud droplets) was higher during the development phase (at the top of the fog), when the cooling 305 rate became stronger than during the fog formation (at the ground). The cooling rate is a crucial factor, which changes during the life cycle of fog and acts directly on the number of cloud droplets. In a fog layer, the cooling rate depends strongly on the divergence of the radiative fluxes, which depends on the liquid water content (LWC) and, consequently on the microphysical properties of the fog layer. This point will be studied in section 5.

4.2 Sensitivity tests on the aerosol median diameter

310 The sensitivity tests presented here focus on the impact of the median diameter of the aerosol distribution on CCN activation. The aerosol chemical composition and the shape of the size distribution correspond to the reference case and the cooling rate is imposed at -10 K.h^{-1} . Figure 4a and Figure 4b show the number of activated CCN and the maximum supersaturation respectively for the three environments defined previously (urban polluted, rural and clean areas) as a function of aerosol particle median diameter. It can be seen from Figure 4a that, in a clean area, all
315 aerosols having a median diameter greater than 120 nm are activated into cloud droplets. But the activated number stays smaller in the clean area than in rural or polluted areas whatever the aerosol size. In the case of small aerosol number concentration (i.e. clean area), the maximum supersaturation reached by the air mass is high (more than 0.2 %, Figure 4b). For polluted and rural areas, two behaviours can be distinguished in Figure 4a according to the aerosol median diameter. Firstly, for a median diameter of less than 100 nm, the number of activated CCN is higher
320 in a polluted area than in a rural one. The maximum supersaturation decreases with the aerosol median diameter (Figure 4b). Secondly, for a median diameter bigger than 100 nm in the case under study, the number of activated aerosols is higher in the rural area than in urban polluted areas. For a high aerosol number concentration, the available water is distributed among all the aerosols and each aerosol takes a smaller amount of water in polluted areas than in rural ones. In the urban polluted area, more big aerosols are preferentially activated preventing the
325 maximum supersaturation of the air mass from increasing. Thus, the number of activated aerosols decreases. On the contrary, in rural areas, fewer big aerosols are activated, the maximum supersaturation can become greater and higher proportion of the aerosol spectrum can be activated. The characteristics of the aerosol size distribution act on the maximum supersaturation and on the activation process. For example, for an aerosol mean diameter of 200 nm, 80 cloud droplets per cm^3 are formed for a clean area ($S_{max} = 0.3 \%$) whereas there are 500 cloud droplets
330 per cm^3 for a rural area ($S_{max} = 0.1 \%$) and 400 cloud droplets per cm^3 for a polluted area ($S_{max} = 0.03 \%$).

4.3 Sensitivity tests on the aerosol chemical composition

The sensitivity tests presented here focus on the impact of the aerosol chemical composition on CCN activation. The aerosol concentration and the size distribution correspond to the reference case and the cooling rate imposed is -10 K.h^{-1} . Numerical computations were performed for six aerosol chemical compositions representative of
335 different environments as detailed in Table 3. Following the study of Saxena et al. (1995), atmospheric organics are differentiated in terms of their interactions with water, into: a hydrophobic function having a surfactant behaviour (represented in our study by SOA8 hydrophobic type) and a hydrophilic function (represented by SOA1 hydrophilic type) which is condensable and water soluble, therefore behaving like inorganic compounds.

Figure 5a shows the activated aerosol fraction and number and Figure 5b the maximum supersaturation as a
340 function of aerosol median diameter for the six aerosol chemical compositions. As previously shown for the reference case, the fraction activated increases with the aerosol median diameter for all the chemical compositions studied (Figure 5a). Considering chemical compositions corresponding to near combustion (NC with 5% of soluble material), dust (with 10% of soluble material), and marine (completely soluble) as described in Table 3, the fraction activated increases mainly due to the salt fraction (Raoult effect). Sulphates (marine cases) activate more easily
345 than dust and NC because the sulphate particle mass is entirely dissociated in the aqueous phase while only 10% of

dust particle mass and 5% of NC are considered soluble here. These three compositions do not affect the surface tension, which is 75.2 dyn.cm^{-1} . This value corresponds to the surface tension of pure water. From a median diameter larger than 150 nm, the aerosol number activated is 420 cm^3 for the marine case. The effect of sulphates becomes insignificant for large aerosol sizes and only 4.8 % of the spectrum is activated.

350 Looking at the effect of surfactants (represented by the reference case, Reference_SOA1 and Reference_SOA8 compositions) on surface tension (at aerosol median diameter of 110 nm), the results show that organic compounds reduce surface tension from $\tau = 75 \text{ dyn.cm}^{-1}$ (Reference IOP 13), to $\tau = 74.5 \text{ dyn.cm}^{-1}$ (Reference_SOA8) and to $\tau = 70.7 \text{ dyn.cm}^{-1}$ (Reference_SOA1). This effect reduces the particle critical supersaturation (S_m) and thus increases the fraction activated. Organic compounds SOA1, SOA8 and POM contained in aerosols have a different 355 impact on particle activation. Only the difference between the compounds SOA1 and SOA8 will be discussed here. Unlike the SOA1 compound, which is soluble, the SOA8 compound acts only on the Kelvin effect because it is undissolved matter. As a result, the interaction of SOA1 and SOA8 with water is totally different. As mentioned previously, the chemical composition with SOA1 has a more important impact on surface tension than the one associated with the SOA8 compound. Moreover, the SOA1 compound absorbs more water than SOA8, increasing 360 the salt fraction (SOA1 is dissociated), thus adding an amount of additional water absorbed by inorganic salts which are also included in the aerosol composition (see Table 3). Consequently, the Reference_SOA1 composition leads to a larger fraction of activated particles than Reference_SOA8 and Reference cases.

4.4 Summary of off-line Simulations

These sensitivity tests are summarized in Table 4 and in Figure 6. This study highlights the role of the atmospheric 365 cooling rate and aerosol properties such as their number concentration, size distribution and chemical composition, on CCN activation. The magnitude of the cooling rate is a key factor in the aerosol activation process. Moreover, the aerosol number concentration is a strong driver of the activation process. The aerosol number influences the supersaturation of the atmosphere and thus the CCN activation. It is an important factor to be considered as shown in Figure 6, where the number of cloud droplets formed is plotted against aerosol number concentration for two 370 contrasting cooling rates, -2 K.h^{-1} (solid line) and -10 K.h^{-1} (dashed line). Two behaviours can be observed on the number of aerosols activated according to aerosol number concentration. Firstly, for an aerosol number concentration less than a critical value, mainly depending on the cooling rate, the cloud droplet concentration increases when the aerosol number increases. The maximum activation rate occurs at this critical value. Secondly, if the aerosol concentration exceeds the critical value, then the number of activated CCN decreases when aerosol 375 number increases. If aerosols become too numerous in the air parcel and reach this critical value (varying according to the cooling rate considered), aerosols absorb a large quantity of water vapour, significantly decreasing the supersaturation within the air mass. This behaviour is found whatever the cooling rate. Frank et al. (1998) and Kokkola et al. (2003) studied fogs from observations made in the Po Valley, a rather polluted region of Italy. They characterized these types of events as "unactivated fogs".

380 Finally, aerosol chemical composition also influences the activation process. The water-soluble properties of compounds and the presence of organics compounds determine the ability of aerosols to capture water during the hygroscopic growth phase. This influences the supersaturation of the air mass and consequently the number of activated CCN.

5 1D Numerical Results

385 Off-line simulations were an efficient way to isolate aerosol influences on the activation process for various environmental conditions often encountered in continental fog situations. However, to gain further insights, it is necessary to take into account the interactions among aerosols, and the microphysical and dynamic processes taking place in the life cycle of fog. For example, the cooling rate varies strongly during the life cycle of fog: during the formation phase, cooling occurs near the ground and is relatively weak, while it is stronger and located near the
390 top of the fog layer during the development phase. Consequently, the number of activated CCN should be greater during the development phase than during the initial phase. This topic is investigated in the following section with 1D simulations.

5.1 Model configuration

The numerical simulations were initialized at 21 UTC on 18 February 2006. In this study, we will focus on the
395 formation (before 00 UTC) and development phase (after 00 UTC) of the fog layer, and only the results of the night-time simulation will be studied. The characteristics of the boundary layer (temperature, relative humidity, wind vertical profiles) at initial time were given by the 21 UTC radiosounding (Figure 7). The soil type was determined from soil texture analysis and corresponded mainly to sandy loam. The surface cover was composed of 80% of temperate pastures, 15% of temperate sub-urban and 5% of lake surface-types. The initial vertical
400 distribution of aerosol properties for all these simulations was set constant with height. The vertical grid spacing was set to 1 metre and kept constant with height up to 50 metres. Such fine resolution is required to simulate a fog layer (Tardif, 2007). Above 50 metres, the vertical grid was gradually stretched.

5.2 Validation of the Reference Simulation for Intensive Observation Period 13: 18-19 February 2007

For this reference simulation, the specified size distribution corresponded to the observed size distribution at 21
405 UTC. The aerosol total number concentration was initialized at 17000 aerosols per cm^{-3} with 8700 aerosols per cm^{-3} for the Aitken mode and 8300 aerosols per cm^{-3} for the accumulation mode as shown in Table 1. The specified aerosol chemical composition corresponds to the observation at 21 UTC (see section 3).

Figure 7 compares the observed and simulated vertical profiles of the potential temperature θ during the fog event at 21 UTC, 03 UTC and 06 UTC. The simulation underestimates θ by about 2 K inside the fog layer (i.e.
410 below the thermal inversion). This difference is usual in 1D simulations of fog. It can be explained by the idealized nature of the surface, which only roughly represents the actual heterogeneity of the site, and also by the limitation of 1D simulations (e.g. the effect of horizontal advection is not taken into account). It is also worth noting that the thermal inversion is weaker and higher in the sounding than in the simulation at 03 UTC. The development of the fog layer is more rapid in the observation than in the simulation, leading to too cold a simulated fog layer. The
415 height of fog is, however, well represented at 06 UTC, even though the intensity of the thermal inversion is stronger than observed. It should be noted that the ascending velocity of the radiosonde (10 m.s^{-1}) which prevented an accurate estimation of the top of the fog layer.

The evolution of long-wave downward radiative flux at 2 m is illustrated in Figure 8. Before the formation of fog (before 23 UTC), the simulation seems to slightly underestimate the downward long-wave flux by 5 W.m^{-2} .

420 However, this value is within the range of the measurement error. During the development phase, the long-wave downward flux is well-represented and reaches a value of 330 W.m^{-2} . Consequently, it seems that the liquid water content inside the fog layer is well simulated. In spite of the problems previously described, the model represents the formation and the development of the fog layer relatively well.

425 Figure 9 represents the evolution of the observed and simulated cloud droplets number concentration at 2 metres. The formation phase is relatively well-simulated but the cloud droplet number concentrations are overestimated compared to measurements made during the development phase. The simulated maximum value is about $500 \text{ cloud droplets cm}^{-3}$ near the ground instead of the $250 \text{ cloud droplets cm}^{-3}$ observed. The simulated values are also higher than values obtained during other field experiments like, for example, the Po Valley experiment, in which values of cloud droplets varied between 50 and 300 (Gultepe and Isaac, 1997; Wendish et al., 1998). This could be 430 partially explained by the fact that the parameterization of Abdul-Razzak and Ghan (2004) does not take kinetic limitations into account. Chuang et al. (1997) have shown that under certain circumstances growth kinetics may retard the growth of CCN sufficiently to limit the number of activated droplets formed. By comparing the time scale for particle growth at equilibrium with that for actual condensational growth, Chuang et al. (1997) conclude that particles with critical supersaturation less than a threshold value do not have time to grow larger than their 435 critical size, and thus do not activate. This suggests that equilibrium models that diagnose droplet formation from maximum supersaturation may systematically overestimate the number of activated droplets formed (Nenes et al., 2001). Consequently, the maximum supersaturation and the number of activated aerosols are slightly overestimated. Unfortunately, it is not possible to validate the diagnosed supersaturation again observations. It seems that it is difficult to measure the supersaturation in a fog layer because of the weak value and the localization (at the 440 top of the fog layer). This could be the subject of future research. Moreover, rapid temporal fluctuations of cloud droplet number concentration are observed during the development phase (Figure 9). These fluctuations can be explained by complex interaction between microphysical and dynamic processes (e.g. gravity waves at the top of the fog layer leading to increased mixing) or by local modification of the physical properties of the air parcel (e.g. advection of more polluted aerosols from the Paris area). In the simplified 1D simulation, it is not possible to take 445 these processes into account.

450 The numerical results of the simulation for the cloud droplet number concentration are plotted in Figure 10a. Fog formation takes place around 23 UTC, in good agreement with observations. At the beginning, the fog rises rapidly and then grows gradually to reach a height of 110 metres at 03 UTC as mentioned before. The maximum number of cloud droplets is located at the top of the fog where the cooling rate is the greatest during the development phase. Figure 11 illustrates an example of a simulated vertical profile of the cooling rate at 03 UTC. The cooling rate is maximum near the top of the fog (-9 K.h^{-1} for the reference case, thick solid line) and decreases rapidly to become very weak within the fog and close to zero at the ground. From 02-03 UTC, the fog continues to develop vertically and the sedimentation process of cloud droplets becomes important (see accumulated precipitation for cloud droplets in Table 5). The liquid water path (LWP) diminishes slightly and the radiative cooling decreases 455 (Table 5 for the so-called "polluted reference" case). As a result, the activation process becomes weaker during this development phase and the cloud droplet number concentration gradually decreases. Moreover, one can see in Figure 10a that the cloud droplet concentration is relatively constant with height within the fog layer. This is explained by the turbulent mixing acting inside the fog layer. Consequently, the number of cloud droplets at the

ground depends strongly on the history of the fog layer and on the number of cloud droplets formed at the top of
460 the fog layer (sedimentation of fog droplets).

For the case studied, the microphysical parameterization (Khairoutdinov and Kogan 2000, microphysical scheme and the CCN activation parameterization of Abdul-Razzak and Ghan (2004)) used have realistic behaviour despite an overestimate of the cloud droplet number. The sensitivity of the life cycle of fog to aerosol type will now be studied. These sensitivity simulations differ in the specification of the aerosol concentration and aerosol chemical
465 composition from the reference simulation described previously.

5.3 Evolution of a fog layer with aerosol number concentration: a non-linear relation

The previous section allowed us to validate the behaviour of the model for the reference case. In the following, numerical simulations results will be shown, with special emphasis on differences in microphysical structure of the fog layer. For the sensitivity experiments presented here, only the number concentration of the accumulation mode
470 was changed. Three simulations were then performed using an aerosol concentration of 1000, 5000 and 12000 particles per cm^{-3} in the accumulation mode, varying from the slightly polluted case to a heavily polluted case.

The evolution of the cloud droplet number concentrations is plotted in Figure 10. Independently of the aerosol number concentration, fog forms approximately at the same time (around 23 UTC) which is due mainly to the thermodynamic conditions associated with the local air mass. But the vertical development and the characteristics
475 of the fog layer are significantly different. Table 5 details the evolution of the maximum height of the fog, the maximum cooling rate, the highest value of S_{max} , the maximum cloud droplet number concentration, the LWP, the accumulated precipitation at the surface for the cloud droplets and the effective droplet radius for the four types of aerosol concentrations considered. At 06 UTC, the fog layer exhibits a greater vertical development in the case of 5000 particles. cm^{-3} (180 metres, Figure 10c) and in the reference simulation (170 metres, Figure 10a) than for
480 the cases of 1000 cm^{-3} (150 metres, Figure 10b) and 12000 cm^{-3} (150 metres, Figure 10d). However, the number of cloud droplets varied during the life cycle of fog for the four cases studied. At 00 UTC, the cloud droplet number reached a value of 120 droplets per cm^{-3} for the slightly polluted case (1000 cm^{-3}), 400 cm^{-3} for the more polluted case (5000 cm^{-3}), 380 cm^{-3} for the polluted case (8300 cm^{-3} , reference) and only 220 cm^{-3} for the heavily polluted case (Table 5). At 06 UTC, the concentration was off by 35 droplets per cm^{-3} for the slightly
485 polluted case (1000 cm^{-3}), 200 cm^{-3} for the more polluted case (5000 cm^{-3}), 100 cm^{-3} for the reference case (8300 cm^{-3}) and 50 cm^{-3} for the heavily polluted case (12000 particles. cm^{-3}). The number of aerosols strongly influences the supersaturation of the atmosphere and, in consequence, directly influences number of cloud droplets. As previously mentioned, the maximum activation rate is located at the top of the fog where the radiative cooling
490 is the strongest.

Figure 12 describes the LWC vertical profiles at 23, 00, 03 and 06 UTC for the four cases studied. Whatever the sensitivity simulations, liquid water is mostly condensed at the top of the fog layer where the cooling rate is the greatest (Figure 11). However, LWC profiles depend strongly on the aerosol number concentration and consequently on the droplet number concentration. The interactions between the droplet number concentration and the LWC are quite complex: an increase in LWC does not necessarily change the droplet number concentration.
495 During the formation stage (23 UTC), the LWC is greatest ($0.2 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$) in the slightly polluted case compared to $0.1 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ for the reference case and only $0.07 \text{ g} \cdot \text{kg}^{-1}$ for the most polluted case. These values are in accordance

with the study of Wendish et al. (1998). During the development phase, after 00 UTC, the behaviour is quite different. Feedback occurs between the radiative and microphysical processes. If the LWP increases (i.e. the LWC increases for a given height of fog), the radiative cooling at the top of the fog will also increase, promoting aerosol activation (Table 5). The LWC at the top of the fog layer is 0.41 g.kg^{-1} for an aerosol concentration of 5000 cm^{-3} whereas it is only 0.15 g.kg^{-1} in the most polluted case (concentration of $12000 \text{ particles.cm}^{-3}$). The LWC is influenced not only directly by the cooling rate but also indirectly by the aerosol number concentration. Thus, the aerosol number concentration seems to be an important factor to be taken into account when the life cycle of fog is represented.

Figure 13 shows the evolution of the LWP during the simulation for the four cases studied. Two behaviours are apparent. Firstly, during the formation phase, the LWP is highest in the slightly polluted case (5.8 g.m^{-2} at 23 UTC) compared with the other cases. The cooling rate is highest (-8.5 K.h^{-1} , see Table 5) in the slightly polluted case. Secondly, during the phase, from 02 UTC, the slightly polluted case produces the weakest LWP among all sensitivity simulations, whereas the case with 5000 aerosols per cm^3 leads to the highest LWP (46 g.m^{-2} at 06 UTC). This is explained by the difference of accumulated precipitation for the cloud droplets (Table 5) due to the difference of settling velocity of the fog droplets. The accumulated precipitation for rain is negligible. The aerosol number concentration influences the cloud droplet concentration and size, which themselves affect the settling velocity and thus the accumulated precipitation at the ground. This affects the LWP and, indirectly, the height of the fog. Under very polluted conditions, the decrease of S_{max} leads to a reduction of the cloud droplet number concentration and consequently the droplet size becomes larger (increase in effective droplets radius, Table 5). The difference of LWC at the top of the fog layer among the cases studied affects the divergence of radiative fluxes at the top of the fog layer and thus the radiative cooling. This interaction between the microphysical and the radiative processes explain the reduction of the cloud droplet concentration during the development of fog.

5.4 Sensitivity of fog formation and development to aerosol chemical composition

Two additional 1D simulations were performed to study the impact of the aerosol chemical composition (with different solubilities) on the formation and the development of radiative fog. To perform these sensitivity simulations, the chosen chemical composition corresponded to a mineral aerosol case (with 10% solubility) and to Reference_SOA1 (with 85% solubility) (see Table 3). The results of the numerical simulations are shown in Figure 14, in which the evolution of the cloud droplet number concentration is plotted for the mineral aerosol case and the Reference_SOA1 case. The aerosol number concentrations were fixed at 8700 cm^{-3} and 8300 cm^{-3} for the Aitken and accumulation modes respectively.

The fog again forms approximately at the same time (23 UTC) for these three chemical compositions. As for the sensitivity to the aerosol number concentration, the aerosol chemical composition does not affect the time of fog formation. In contrast, the cloud droplet number concentration is quite different during the fog event. For the 10 % soluble case (referred to as the mineral aerosol case), at 06 UTC, the number of cloud droplets is 50 cm^{-3} lower at the ground and the height of fog only reaches 70 metres. In comparison, the 85 % soluble case (named Reference_SOA1 case) produces $600 \text{ cloud droplets.cm}^{-3}$ at the top of the fog layer, a value slightly higher than for the Reference IOP13 case (effect of surfactants, see section 4.3).

Table 6 shows the evolution of the maximum height of fog, the maximum cooling rate, the highest value of

535 S_{max} , the maximum cloud droplet number concentration, the LWP, the accumulated precipitation and the effective droplets radius for the two aerosol chemical compositions considered. As for the aerosols number concentration, the aerosol chemical composition strongly influences the LWC. During the formation phase, at 23 UTC, the height of the fog layer is the same for both cases. But during the development phase, between 00 and 03 UTC, the behaviour is quite different. In the Reference_SOA1 case, the height of fog increases more than in the mineral
540 aerosol case, and the radiative cooling at the top of the fog also increases, -18 K.h^{-1} at 00 UTC, promoting aerosol activation and leading to a cloud droplet concentration of $1050 \text{ cloud droplets.cm}^{-3}$ at the top of the fog layer.

As for simulations of sensitivity to aerosol number concentration, the aerosol chemical composition influences the cloud droplet concentration and size, which themselves affect the settling velocity and thus the accumulated precipitation at the ground (Table 6). This indirectly affects the LWP and depth of the fog layer. Thus, the amount
545 of condensed water is smaller at the top of the fog for the mineral aerosol case than for the Reference_SOA1 case. The maximum value of LWP is 8.8 g.m^{-2} for mineral aerosols whereas it reaches 44 g.m^{-2} in the Reference_SOA1 case. The fog layer reaches a height of 180 metres in the Reference_SOA1 case whereas it only reaches 70 metres in the case of mineral aerosols at 06 UTC.

6 Conclusions and Recommendations

550 This study evaluated the impact of aerosols (number concentration, size distribution and chemical composition) during the formation and development stages of radiation fog. The particularity of fog in opposition to other boundary layer clouds is that the cooling rate (responsible of the CCN activation into cloud droplets) is related to the radiative cooling rather than the adiabatic cooling associated with updrafts. Fogs also form near the ground, where the variability of aerosol number concentration is the highest.
555 A simplified off-line framework allowed us to study the sensitivity of CCN activation to different key parameters such as the cooling rate, the aerosol number concentration, the aerosol size and its chemical composition. The results of these simulations underline the key role played by radiative cooling in the activation process. Radiative cooling is the main source of condensed water and aerosols, by their capabilities to act as CCN from the sink of water vapour. The cloud droplets formed in radiation fogs are the net budget of these two processes. It has been
560 shown that water transfer to aerosols can limit the activation processes under polluted conditions. In the case, where aerosols are numerous, the maximum supersaturation reached within the air mass remains weak, preventing particles from reaching their critical activation diameter. For a fixed aerosol size distribution, it is possible to determine a critical value of aerosol number concentration, which primarily depends on the cooling rate. If the aerosol number concentration is lower than this critical value, the number of activated CCN increases with the
565 aerosol number. The maximum of activation rate is reached at this critical value. Afterwards, the number of CCN activated decreases when the aerosol number concentration increases.

Complementing the off-line sensitivity simulations, a radiation fog event (IOP 13 of the ParisFOG field experiment) was studied in detail using results from 1D simulations. Comprehensive simulations of this radiation fog event were performed using an on-line coupling of the Meso-NH meteorological model with the ORILAM aerosol
570 scheme. This configuration takes account of the interactions between aerosol size distribution, their chemical properties and the microphysical and dynamic processes taking place during the fog life cycle. Comparisons between a

baseline simulation and observations show that the model can realistically simulate the event of interest. However, the cloud droplet number concentration is slightly overestimated. The parameterization of Abdul-Razzak and Ghan (2004) does not take kinetic limitations into account. Growth kinetics may retard the growth of CCN sufficiently 575 to limit the number of activated droplets formed.

Sensitivity studies on the aerosol number concentration and chemical composition were then performed. It was found that the aerosol number concentration or chemical composition did not influence the time of fog formation for this case. But an impact on the microphysical properties and on the vertical development of fog was found. Under polluted conditions, the aerosol number concentration limited the increase of maximum supersaturation of 580 the air mass. This led to a greater number of larger cloud droplets and increased the deposition at the ground. In the strongly polluted case, the fraction of activated CCN decreased when the aerosol number increased and the amount of water created at the top of the fog was reduced. The decreased LWC led to a reduction of the radiative cooling at the top of the fog layer during the development phase. This interaction between the microphysical and the radiative processes also explains the reduction of the cloud droplet concentration. The development of dense 585 fog is then limited under heavily polluted conditions, in which so called "unactivated fog" seems more frequent. For these cases, it seems necessary to take the wet aerosol, and not only the cloud droplets, into account for the interactions with the other physical processes (e.g. visibility computation). These unactivated aerosols are also very important during the life cycle of fog, as they limit the activation processes.

The influence of aerosol characteristics on the dissipation phase has not been studied and will be the subject of 590 a future work. The particularity of the dissipation phase is the interaction between the fog microstructure and its interaction with shortwave radiation. Future research efforts will also take the interstitial aerosol characteristics into consideration along with their optical properties as a function of their chemical composition. The impact of these non-activated-aerosols on the dissipation of fog needs to be studied.

In cases of strong pollution, the number of activated aerosols is less dependent on their chemical composition 595 if their percentage of soluble material is sufficient. In the observed aerosol of ParisFOG, the aerosol mixture was composed of 55 % of soluble inorganic material, 16.4 % of soot and the 38.6 % of organics. In this case, sensitivity studies on the type of organic matter (primary organic, hydrophobic or hydrophilic SOA) do not modify the fraction of activated aerosols by more than 10 %. Nevertheless, a stronger sensitivity appears where the aerosol matter is mostly composed of hydrophobic matter that is able to inhibit activation through the Raoult term. The amount of 600 condensed water is then smaller at the top of the fog and the cloud droplet number concentration decreases.

Another aspect which has not been addressed in this work is the effect of the cloud droplet number concentration on visibility computations. Gultepe et al. (2006) and Gultepe et al. (2007) show that the visibility predictions are directly based on the cloud droplet number concentration and the liquid water content depending on environmental conditions. The role of aerosol characteristics in determining visibility variations within fog layers should be 605 clarified further in order to establish a comprehensive parameterization suitable for operational applications.

Acknowledgements. We would like to thank our colleagues at IPSL (Institut Pierre-Simon Laplace), CREA (Centre d'Enseignement et de Recherche en Environnement Atmosphérique) and CNRM/GAME/GMEI/4M for their collaboration and their contributions during the ParisFOG field experiment. We would also like to thank V. Masson, C. Lac for their assistance during the field modelisation and J. Sciare and P. Chazette for carrying out the aerosol chemical analysis. ParisFOG benefited from the funding 610 of the Lefe programme by CNRS-Insu.

References

Abdul-Razzak, H. and Ghan, S.: A parameterization of aerosol activation 2. Multiple aerosol types, *Journal of Geophysical Research*, 105, 6837–6844, 2000.

Abdul-Razzak, H. and Ghan, S.: Parameterization of the influence of organic surfactants on aerosol activation, *Journal of Geophysical Research*, 109, 1–11, 2004.

Abdul-Razzak, H., Ghan, S., and Rivera-Carpio, C.: A parameterization of aerosol activation 1. Single aerosol type, *Journal of Geophysical Research*, 103, 6123–6131, 1998.

Aikawa, M., Hiraki, T., Shoga, M., Tamaki, M., and Sumitomo, S.: Seven-year trend and the time and seasonal dependence of fog water collected near an industrialized area in Japan, *Atmospheric Research*, 83, 1–9, 2007.

Badarinath, K., Madhavi Latha, K., Kiran Chand, T., Reddy, R., Rama Gopal, K., Siva Sankara Reddy, L., Narasimhulu, K., and Raghavendra Kumar, K.: Black carbon aerosols and gaseous pollutants in an urban area in North India during a fog episode, *Atmospheric Research*, 85, 209–216, 2007.

Bergot, T. and Guedalia, D.: Numerical forecasting of radiation fog. Part1: Numerical model and sensitivity tests, *Monthly Weather Review*, 122, 1218–1230, 1994.

Bergot, T., Terradellas, E., Cuxart, J., Mira, A., Liechti, O., Muller, M., and Nielsen, N.: Intercomparison of single-column numerical models for the prediction of radiation fog, *Journal of applied meteorology and climatology*, 46, 504–521, 2007.

Bergot, T., Haeffelin, M., Musson-Genon, L., Colomb, M., Boitel, C., Bouhours, G., Bourriane, T., Carrer, D., Challet, J., Chazette, P., Drobinski, P., Dupont, E., Dupont, J., Elias, T., Fesquet, C., Garrouste, O., Gomes, L., Guerin, A., Lapouge, F., Lefranc, Y., Legain, D., Pietras, C., Plana-Fattori, A., Rangognio, J., Remy, S., Romand, B., and Zhand, X.: Paris-FOG: des chercheurs dans le brouillard, *La Météorologie*, 62, 48–58, 2008.

Blando, J. D. and Turpin, B. J.: Secondary organic aerosol formation in cloud and fog droplets: a literature evaluation of plausibility, *Atmospheric Environment*, 34, 1623–1632, 2000.

Bott, A.: On the influence of the physico-chemical properties of aerosols on the life cycle of radiative fogs, *Boundary-Layer Meteorology*, 56, 1–31, 1991.

Bott, A. and Carmichael, G.: Multiphase chemistry in a Microphysical radiation fog model - A numerical study, *Atmospheric Environment*, 27A, 503–522, 1993.

Bougeault, P. and Lacarrère, P.: Parameterization of Orography-Induced Turbulence in a Mesobeta-Scale Model, *Mon. Wea. Rev.*, 117, 1872–1890, 1989.

Brown, R.: A numerical study of radiation fog with an explicit formulation of the microphysics, *Q. J. R. Meteorological Society*, 106, 781–802, 1980.

Brown, R. and Roach, W.: The physics of radiation fog: II: a numerical study, *Q. J. R. Meteorological Society*, 102, 335–354, 1976.

Cheng, C., Wang, W., and Chen, J.: A modelling study of aerosol impacts on cloud microphysics and radiative properties, *Q. J. R. Meteorological Society*, 133, 283–297, 2007.

Chuang, P., Charlson, R., and Seinfeld, J.: Kinetic limitations on droplet formation in clouds, *Nature*, 393, 594–596, 1997.

Cohard, J. and Pinty, J.: A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. I: Description and tests, *Q. J. R. Meteorology Society*, 126, 1815–1842, 2000a.

Cohard, J. and Pinty, J.: A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. II: 2D experiments with a non hydrostatic model, *Q. J. R. Meteorology Society*, 126, 1843–1859, 2000b.

Cuxart, J., Bougeault, P., and Redelsperger, J.-L.: A turbulence scheme allowing for mesoscale and large-eddy simulations, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 126, 1–30, 2000.

Duynkerke, P.: Radiation fog: A comparison of model simulation with detailed observations, *Monthly Weather Review*, 119,

324–341, 1991.

655 Facchini, M., Decesari, S., Mircea, M., Fuzzi, S., and Loglio, G.: Surface tension of atmospheric wet aerosol and cloud/fog droplets in relation to their organic carbon content and chemical composition, *Atmospheric Research*, 24, 4853–4857, 2000.

Fisak, J., Tesar, M., Rezacova, D., Elias, V., Weignerova, V., and Fottova, D.: Pollutant concentrations in fog and low cloud water at selected sites of the Czech Republic, *Atmospheric Research*, 64, 75–87, 2002.

Fouquart, Y.: Radiative transfer in climate modeling, M.E. Schlesinger, 1987.

660 Frank, G., Martinsson, B. G., Cederfelt, S., Berg, O. H., Swietlick, E., Wendisch, M., Yuskiewicz, B., Heitzenberg, J., Wieden-sohler, A., Orsini, A., Stratmann, F., Laj, P., and Ricci, L.: Droplet formation and growth in polluted fogs, *Contr. Atmos. Phys.*, 71, 65–85, 1998.

Geoffroy, O.: LES modeling of precipitation in boundary layer clouds and parameterization for general circulation model, Ph.D. thesis, Université Paul Sabatier, Toulouse, France, 2007.

665 Ghan, S., Chuang, C., and Penner, J.: A parameterization of cloud droplet nucleation, part I, Single aerosol type, *Atmospheric Research*, 30, 197–221, 1993.

Griffin, R., Dabudub, D., and Seinfeld, J.: Secondary organic aerosol: 1. Atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents, *Journal of Geophysical Research*, 107(D17), 4332, doi:10.1029/2001JD000541, 2002.

Griffin, R., Nguyen, K., Dabudub, D., and Seinfeld, J.: A coupled hydrophobic-hydrophilic model for predicting secondary organic aerosol formation, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 44, 171–190, 2003.

670 Griffin, R., Dabudub, D., and Seinfeld, J.: Development and initial evaluation of a dynamic species-resolved model for gas phase chemistry and size-resolved gas/particle partitioning associated with secondary organic aerosol formation, *Journal of Geophysical Research*, 110, D05304, doi:10.1029/2004JD005219, 2005.

Gultepe, I. and Isaac, G.: Scale effects on averaging of cloud droplet and aerosol number concentrations: Observations and models, *Journal of Climate*, 12, 1268–1279, 1997.

675 Gultepe, I., Muller, M., and Boybeyi, Z.: A new visibility parameterization for warm fog applications in numerical weather prediction models, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 45, 1469–1480, 2006.

Gultepe, I., Tardif, R., Michaelides, S. C., Cermak, J., Bott, A., Bendix, J., Muller, M. D., Pagowski, M., Hansen, B., G. Ellrod, G., Jacobs, W., Toth, G., and Cober, S. G.: Fog Research: A Review of Past Achievements and Future Perspectives, *Pure and Applied Geophysics*, 164, 1121–1159, 2007.

680 Husain, L., Khan, A., Ghauri, B., Dutkiewicz, V., and Farhana, B.: Carbonaceous and sulfate aerosols in highly polluted urban fog and clear air in South Asia, in: *Proceedings of the Fourth International Conference on fog, fog collection and dew*, La Serena, Chile, 2007.

Kessler, E.: On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulation, *Meteor. Monogr.*, 32, 84 pp, 1969.

685 Khairoutdinov, M. and Kogan, Y.: A new cloud parameterization in a Large-Eddy Simulation Model of Marine Stratocumulus, *Mon. Weather Rev.*, 128, 229–243, 2000.

Köhler, H.: The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets, *Trans. Faraday Soc.*, 32, 1152–1161, 1936.

Kokkola, H., Romakkaniemi, S., and Laaksonen, A.: On the formation of radiative fogs under heavily polluted conditions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 581–589, 2003.

Lafore, J., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Héreil, P., Mascart, P., Masson, V., Pinty, J., 690 Redelsperger, J., Richard, E., and Vil-Guerau de Arellano, J.: The meso-nh atmospheric simulation system. Part I: adiabatic formulation and control simulations, *Annales Geophysicae*, 16, 90–109, 1998.

Li, Z., Willimans, A., and Rood, J.: Influence of Soluble Properties on the Activation of Aerosol Particles Containing Inorganic Solute, *Journal of Atmospheric Sciences*, 55, 1859–1866, 1998.

Masson, V.: A physically-based scheme for the urban energy balance in atmospheric models, *Boundary Layer Meteorology*,

695 94, 357–397, 2000.

Mircea, M., Facchini, M., Decesari, S., Fuzzi, S., and Charlson, R.: The influence of the organic aerosol component on CCN supersaturation spectra for different aerosol types, *Tellus*, 54B, 74–81, 2002.

Mlawer, E., Taubman, S., Brown, M., Iacono, M., and Clough, S.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validation correlated-k model for the longwave, *Journal of Geophysical Research*, 102D, 16 662–16 682, 1997.

700 Moore, K. F., Eli Sherman, D., Reilly, J. E., Hannigan, M., Lee, T., and Collett Jr, J. L.: Drop size-dependent chemical composition of clouds and fogs. Part II: Relevance to interpreting the aerosol/trace gas/fog system, *Atmospheric Environment*, 38, 1403–1415, 2004.

Morcrette, J.-J.: Physical parametrization, ECMWF Forecast Model, ECMWF Tech. Memo. 165, 1989.

Nakanishi, M.: Large-eddy simulation of radiation fog, *Boundary-Layer Meteorology*, 94, 461 – 493, 2000.

705 Nenes, A. and Seinfeld, J.: Parameterization of cloud droplet formation in global climate models, *Journal of Geophysical Research*, 108(D14), 4415, doi:10.1029/2002JD002911, 2003.

Nenes, A., Ghan, S., Abdul-Razzak, H., Chuang, Y., and Seinfeld, J.: Kinetic limitations on cloud droplet formation and impact on cloud albedo, *Tellus*, 53B, 133–149, 2001.

Noilhan, J. and Planton, S.: A simple parameterization of land surface processes for meteorological models, *Monthly Weather Review*, 117, 536–549, 1989.

710 Pagowski, M., Gultepe, I., and King, P.: Analysis and modeling of an extremely dense fog event in southern Ontario, *Journal of Applied Meteorology*, 43, 3–16, 2004.

Pandis, S. and Seinfeld, J.: Mathematical modeling of acid deposition due to radiation fog, *Journal of Geophysical Research*, 94, 12 911–12 923, 1989a.

715 Pandis, S. and Seinfeld, J.: Sensitivity analysis of a chemical mechanism for aqueous-phase atmospheric chemistry, *Journal of Geophysical Research*, 94, 1105–1126, 1989b.

Press, W., Teukolsky, S., Vetterling, W., and Flannery, B.: *Numerical recipes in FORTRAN: The art of scientific computing*, 2nd Ed. Cambridge University Press, 1992.

Pruppacher, H. and Klett, J.: *Microphysics of Clouds and Precipitation*, Kluwer Acad., Norwell, Mass, 1997.

720 Putaud, J.-P., Van Dingenen, R., Mangoni, M., Virkkula, A., Raes, F., Maring, H., Prospero, J., E., S., Berg, O., Hillamo, R., and Makkela, T.: Chemical mass closure and assessment of the origin of the submicron aerosol in the marine boundary and the free troposphere at Tenerife during ACE2, *Tellus*, 52B(2), 141–168, 2000.

Reilly, J. E., Rattigan, O., Moore, K., Judd, C., Eli Sherman, D., Dutkiewicz, V., Kreidenweis, S., Husain, L., and Collett Jr, J. L.: Drop size-dependant S(IV) oxidation in chemically heterogeneous radiation fogs, *Atmospheric Environment*, 35, 5717–5728, 2001.

725 Sandu, I., Brenguier, J., Geoffroy, O., Thouron, O., and Masson, V.: Aerosol impacts on the diurnal cycle of marine Stratocumulus, *Journal of Atmospheric Sciences*, 65, 2705–2718, 2008.

Saxena, P. and Hildemann, L.: Water-soluble organics in atmospheric particles: a critical review of the literature and application of thermodynamics to identify candidate compounds, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 24, 57–109, 1996.

730 Saxena, P., Hildemann, L., McMurry, P., and Seinfeld, J.: Organics alter hygroscopic behavior of atmospheric particles, *Journal of Geophysical Research*, 100, 18,755–18,770, 1995.

Sciare, J., Oikonomou, K., Cachier, H., Andreea, M., Maenhaut, W., Mihalopoulos, N., and Sarda-Estve, R.: Aerosol mass closure and reconstruction of the light scattering coefficient over the Eastern Mediterranean Sea during the MINOS campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 2427–2461, 2005.

735 Seinfeld, J. and Pandis, S.: *Atmospheric chemistry and physics*, John Wiley, New-York, 1998.

Seinfeld, J., Pandis, S., and Pilinis, C.: Heterogeneous sulfate production in an urban fog, *Atmospheric Environment*, 26A,

2509–2522, 1992.

Shulman, M., Jacobson, M., Carlson, R., Synovec, R., and Young, T.: Dissolution behavior and surface tension effects of organic compounds in nucleating cloud droplets, *Geophysical Research Letters*, 23, 277–280, 1996.

740 Smith, E. and Shi, L.: Surface forcing of the infrared cooling profile over the Tibetan plateau. Part I: Influence of relative longwave radiative heating at high altitude, *Journal of Atmospheric Sciences*, 49, 805–822, 1992.

Tardif, R.: The impact of vertical resolution in the explicit numerical simulation of radiation fog : a case study, *Pure and applied Geophysics*, 164, 1221–1240, 2007.

745 Tulet, P., Crassier, V., Cousin, F., Suhre, K., and Rosset, R.: ORILAM, a three-moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model: Online coupling into the Meso-NH-C model and validation on the Escompte campaign, *Journal of Geophysical Research*, 110, D18 201–1/D18 201–13, 2005.

Tulet, P., Grini, A., Griffin, J., and Petitcol, S.: ORILAM-SOA: A computationally efficient model for predicting secondary organic aerosols in three-dimensional atmospheric models, *Journal of Geophysical Research*, 111, D23 208, doi:10.1029/2006JD007152, 2006.

750 Twomey, S.: The nuclei of natural cloud formation. II. The supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration, *Geophysical Pure Application*, 43, 243–249, 1959.

Vautard, R., Yiou, P., and Oldenborgh, G. J. v.: Decline of fog, mist and haze in Europe over the past 30 years, *Nature Geoscience*, 2, 115–119, 2009.

Wendish, M., Mertes, S., Heintzenberg, J., Wiedensohler, A., Schell, D., Wobrock, W., Frank, G., Martinsson, B., Fuzzi, S., 755 Oris, G., Kos, G., and Berner, A.: Drop size distribution and LWC in Po Valley Fog, *Contribution to Atmospheric Physics*, 71/1, 87–100, 1998.

Zappoli, S., Andracchio, A., Fuzzi, S., Facchini, M., Gelencser, A., Kiss, G., Krivacsy, Z., Molnar, A., Meszaros, E., Hansson, H.-C., Rosman, K., and Zebhr, Y.: Inorganic, organic and macromolecular components of fine aerosol in different areas of Europe in relation to their water solubility, *Atmospheric Environment*, 33, 2733–2743, 1999.

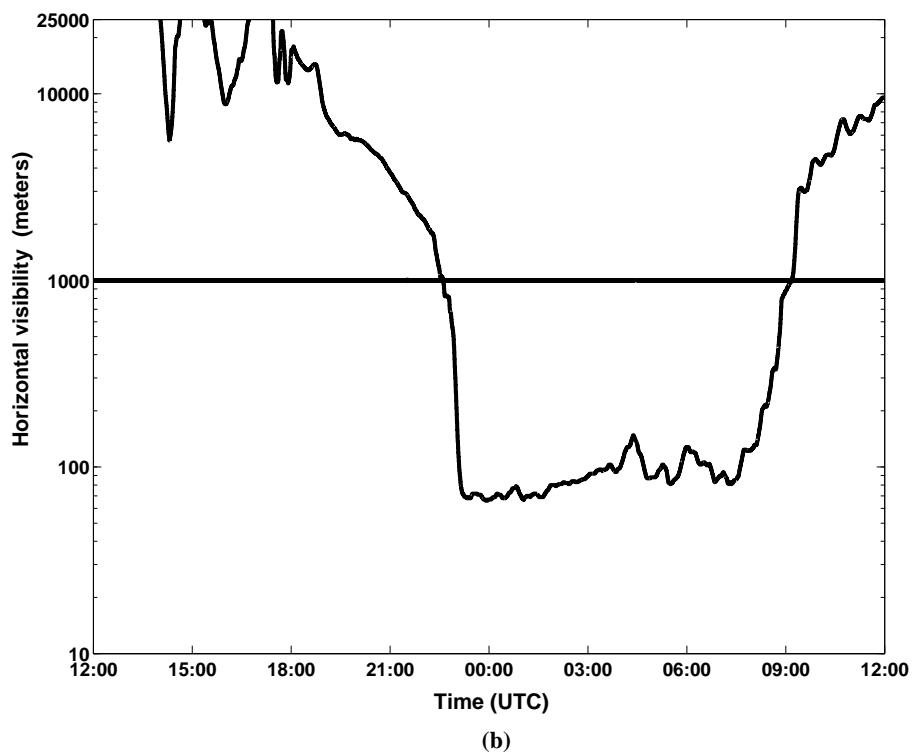
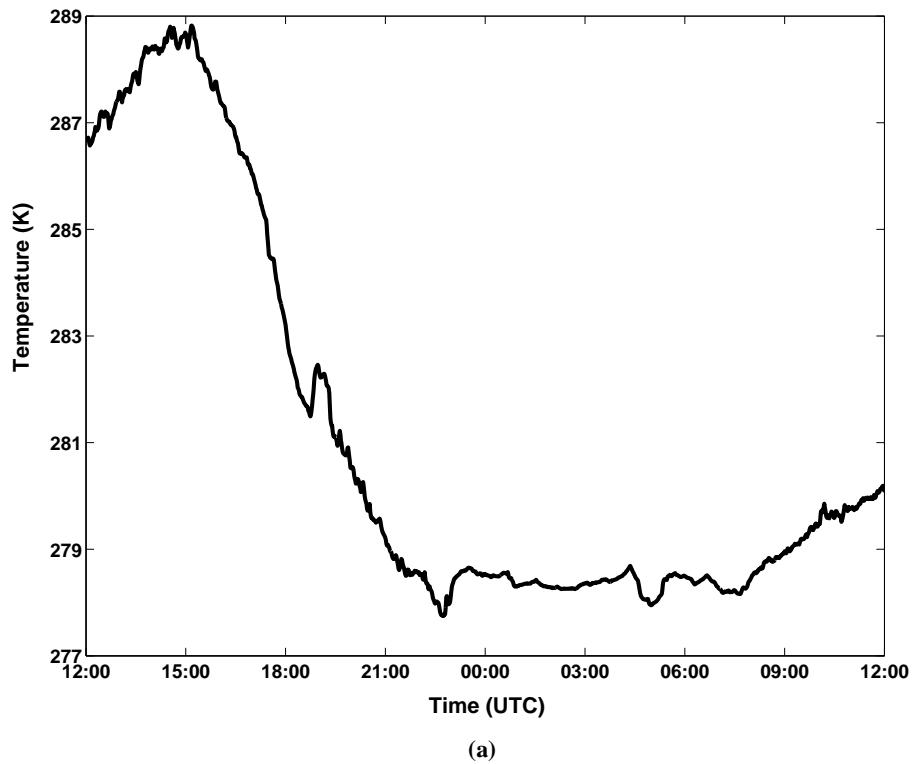


Fig. 1. IOP13, 18-19 Feb 2007.: Evolution of the temperature (a) and the horizontal visibility (b) at 2 metres.

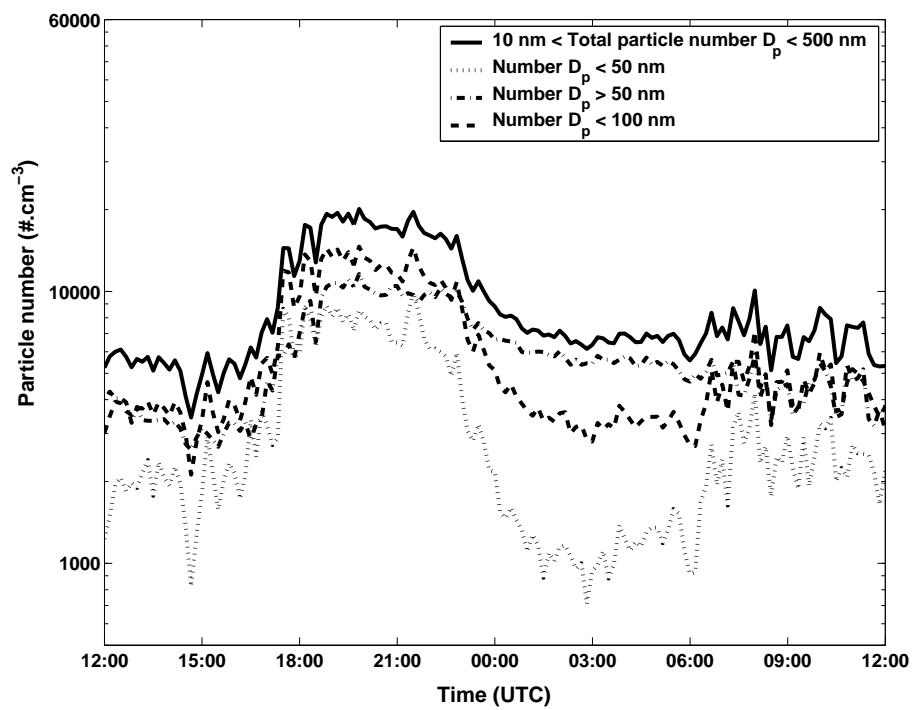
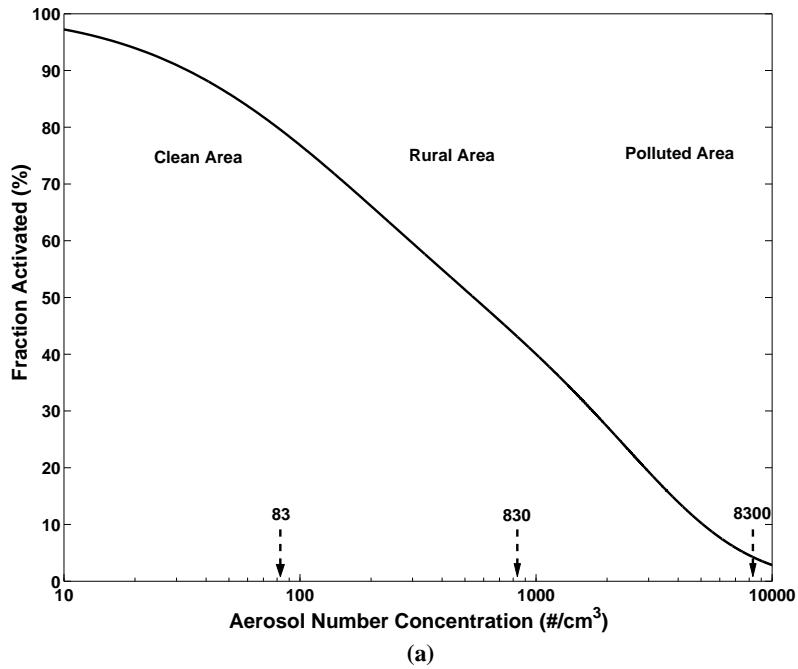
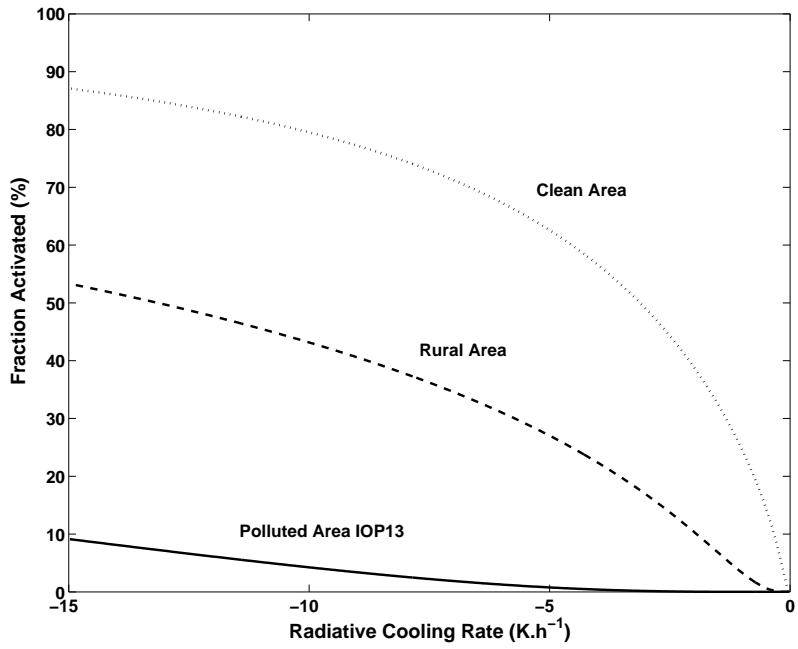


Fig. 2. IOP13, 18-19 Feb 2007.: Evolution of the aerosol number concentration measured at 2 metres by integration of the SMPS data between 10 and 500 nm (solid line), ranging from 10 to 50 nm (Aitken mode, dotted line), from 50 to 500 nm (Accumulation mode, dash-dot line) and from 10 to 100 nm (ultra-fine particles, dashed line)

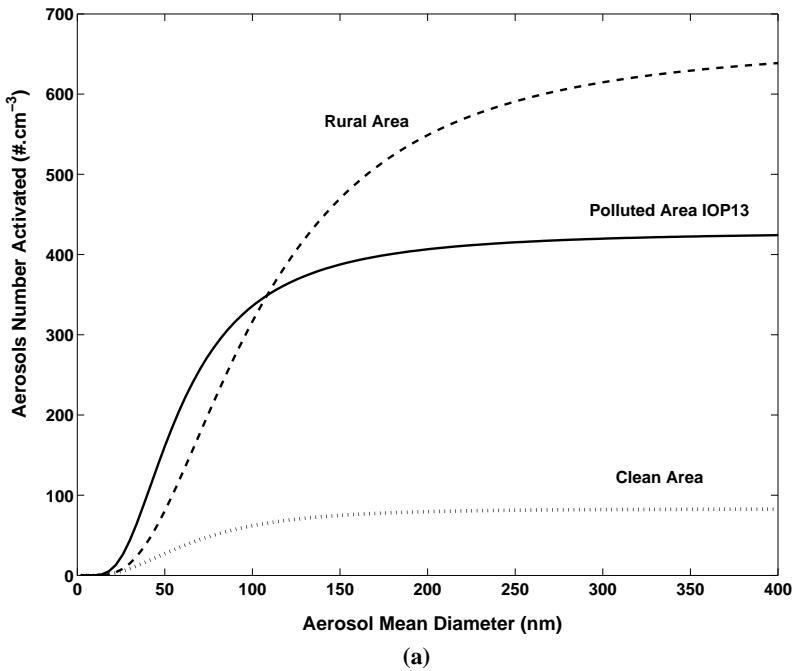


(a)

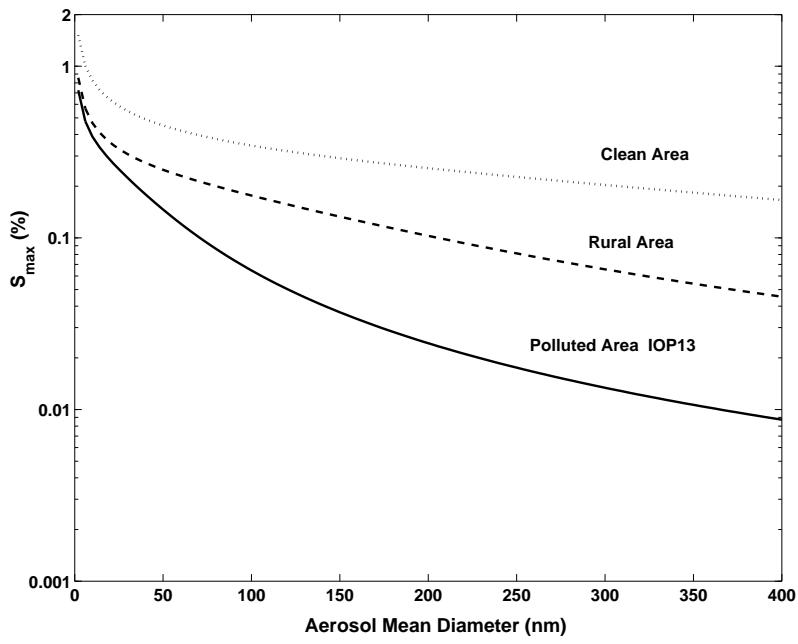


(b)

Fig. 3. (a) Fraction of activated aerosols as a function of aerosol number concentration for a cooling rate of -10K.h^{-1} . (b) Fraction of activated aerosols as function of the cooling rate for 3 types of aerosol number concentration: Polluted area with $8300\text{ particles.cm}^{-3}$, Rural area with $830\text{ particles.cm}^{-3}$ and Clean area with $83\text{ particles.cm}^{-3}$. For (a) and (b), the aerosol median diameter is 110 nm, the geometric standard deviation is 1.59 and the aerosol chemical composition is that of the Reference IOP 13.

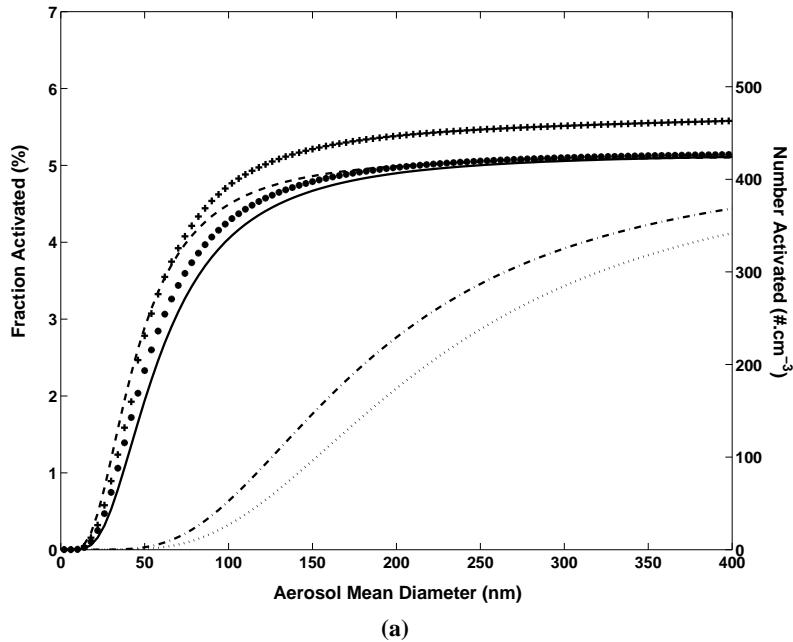


(a)

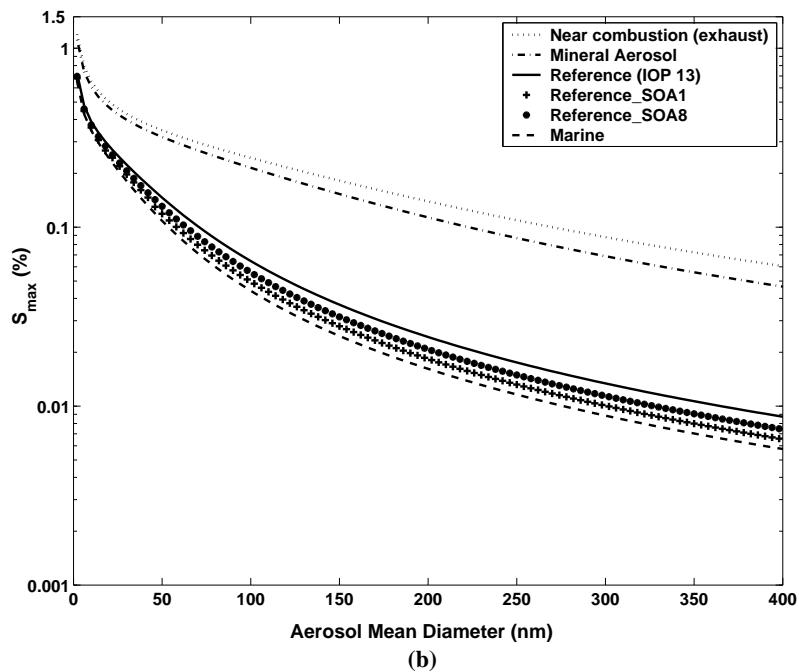


(b)

Fig. 4. Number of activated aerosols (a) and maximum supersaturation (b) as functions of the aerosol median diameter for the three types of aerosol number concentration described in Figure 3 with the Reference chemical composition of IOP 13. The radiative cooling rate is -10 K.h^{-1} . The geometric standard deviation is 1.59.



(a)



(b)

Fig. 5. (a) Fraction of activated aerosols and corresponding number of activated aerosols and (b) maximum supersaturation as functions of the aerosol median diameter for the six aerosol chemical compositions (see Table 3), for a cooling rate of -10K.h^{-1} , the aerosol number concentration and the geometric standard deviation are respectively $8300\text{ particles.cm}^{-3}$ and 1.59.

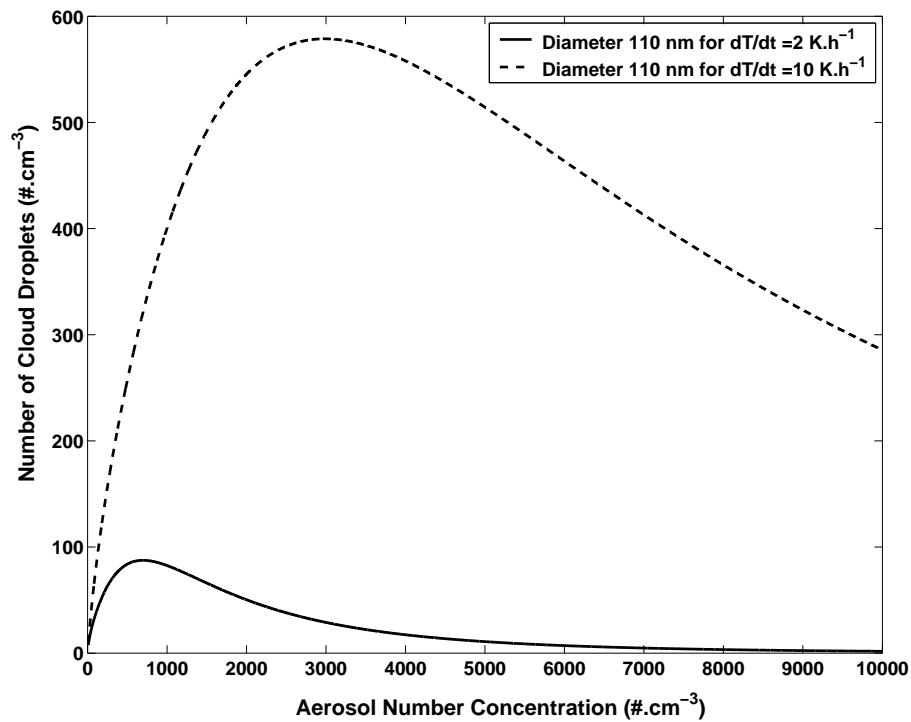


Fig. 6. Number of activated aerosols as function of aerosol number concentration for a cooling rate of -2 K.h^{-1} (solid line) and -10 K.h^{-1} (dashed line) with the Reference chemical composition. The aerosol median diameter and the geometric standard deviation are 110 nm and 1.59 respectively.

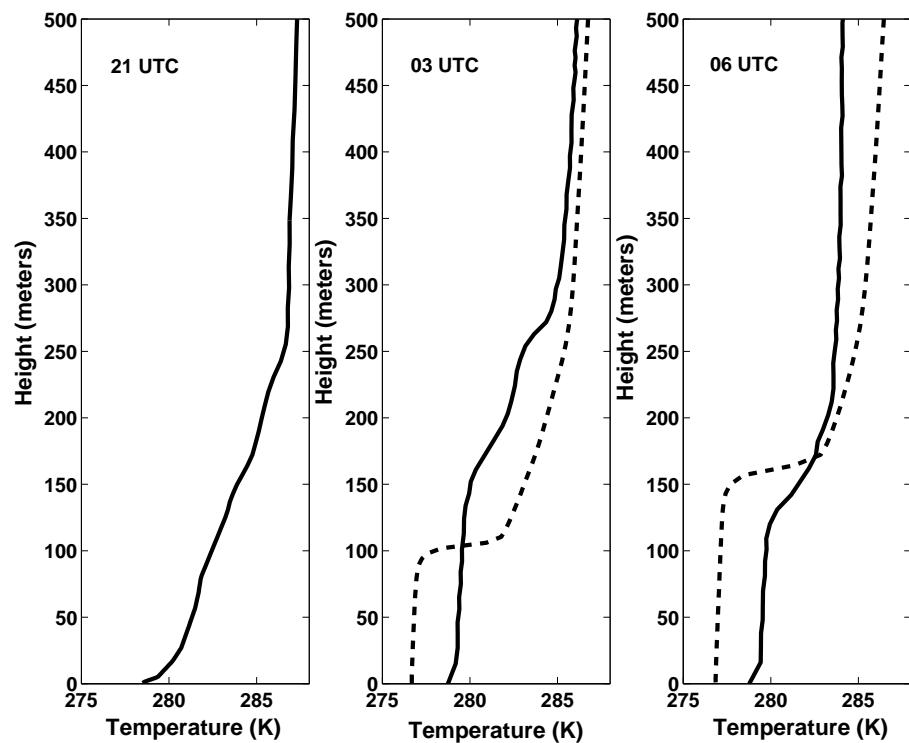


Fig. 7. Observed (solid line) and simulated (dashed line) vertical profiles of potential temperature at 21, 03 and 06 UTC.

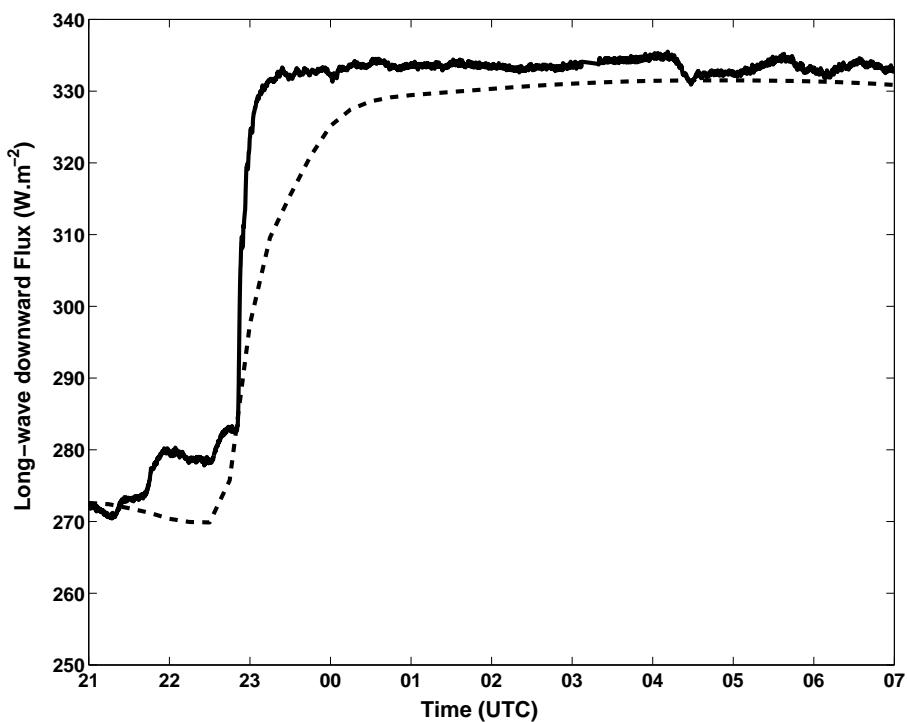


Fig. 8. Evolution of long-wave downward radiative flux observed (solid line) and simulated (dashed line) at 2 metres.

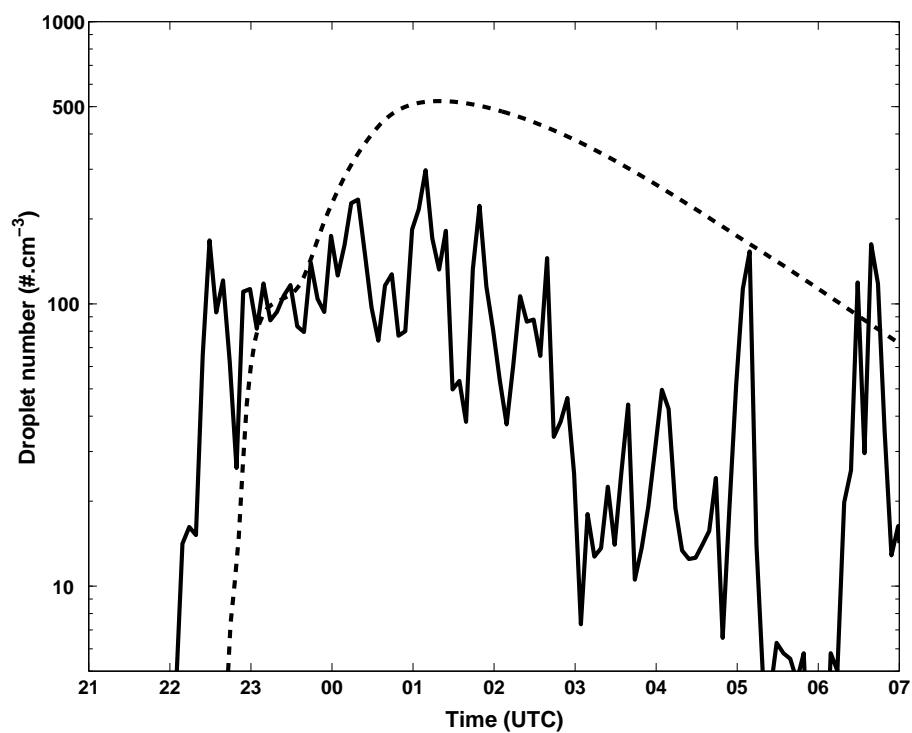


Fig. 9. Evolution of cloud droplets number concentration observed (solid line) and simulated (dashed line) at 2 metres.

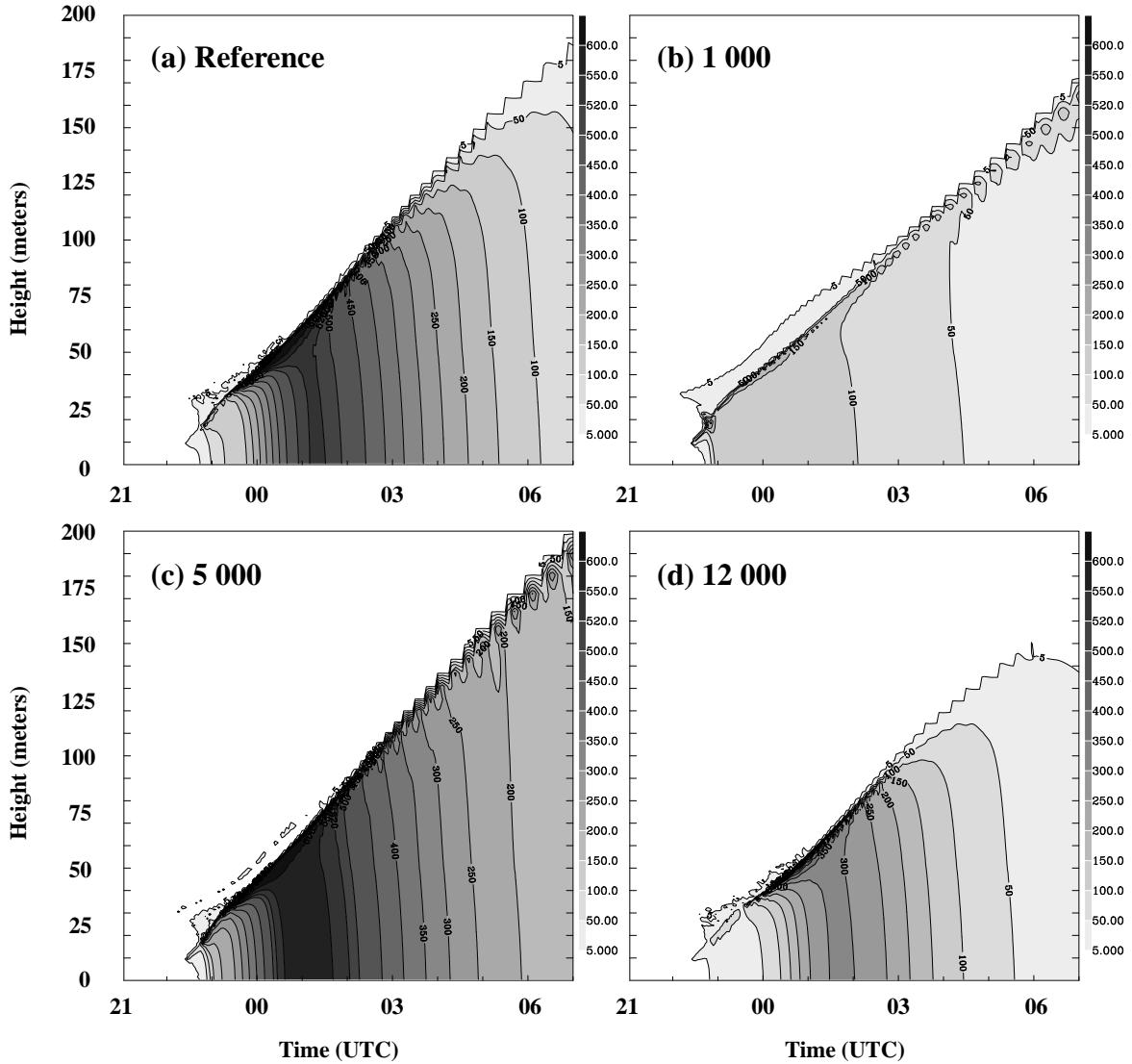


Fig. 10. Cloud droplet number concentration (cm^{-3}) for the four sensitivity cases for an aerosol number concentration in accumulation mode of 8300 cm^{-3} (reference) (a), 1000 cm^{-3} (b), 5000 cm^{-3} (c) and 12000 cm^{-3} (d) as functions of height and time.

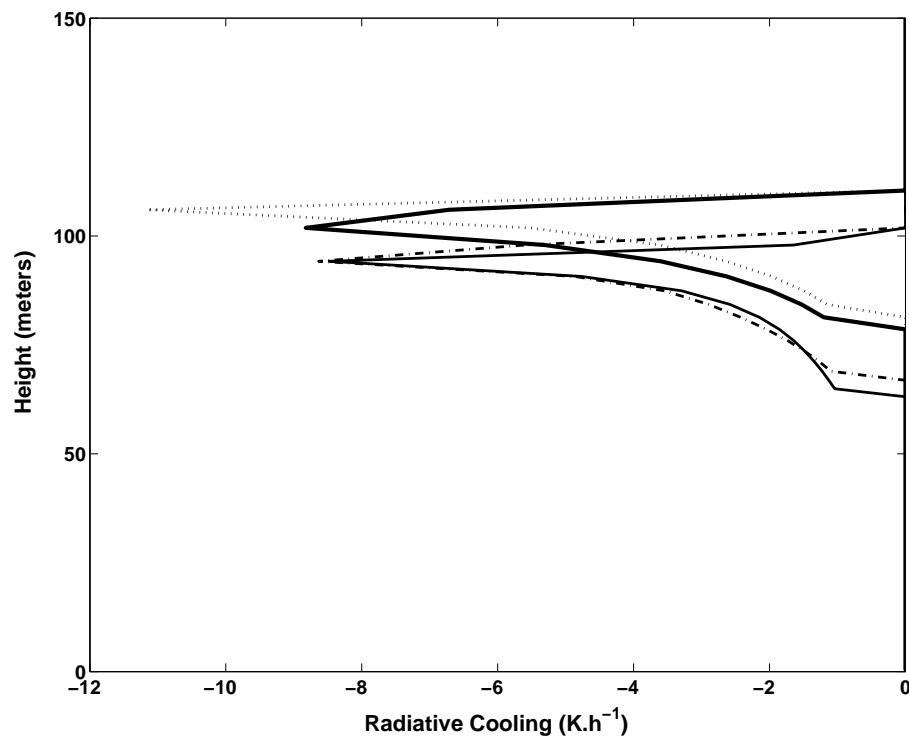


Fig. 11. Example of simulated vertical profile of radiative cooling rate (K.h^{-1}) at 03 UTC for the four sensitivity cases: 1000 cm^{-3} (solid line), 5000 cm^{-3} (dotted line), 8300 cm^{-3} (reference, thick solid line) and $12\,000 \text{ particles.cm}^{-3}$ (dash-dot line).

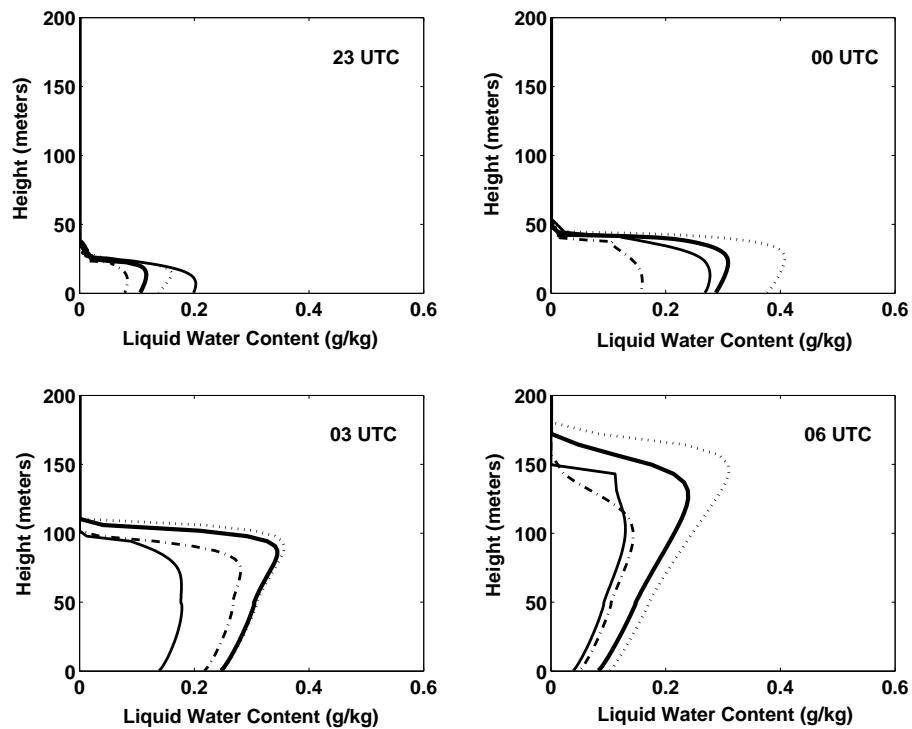


Fig. 12. Vertical profiles of LWC ($\text{g} \cdot \text{kg}^{-1}$) at 23, 00, 03 and 06 UTC for the four sensitivity cases: 1000 cm^{-3} (solid line), 5000 cm^{-3} (dotted line), 8300 cm^{-3} (reference, thick solid line) and $12\,000 \text{ particles} \cdot \text{cm}^{-3}$ (dash-dot line).

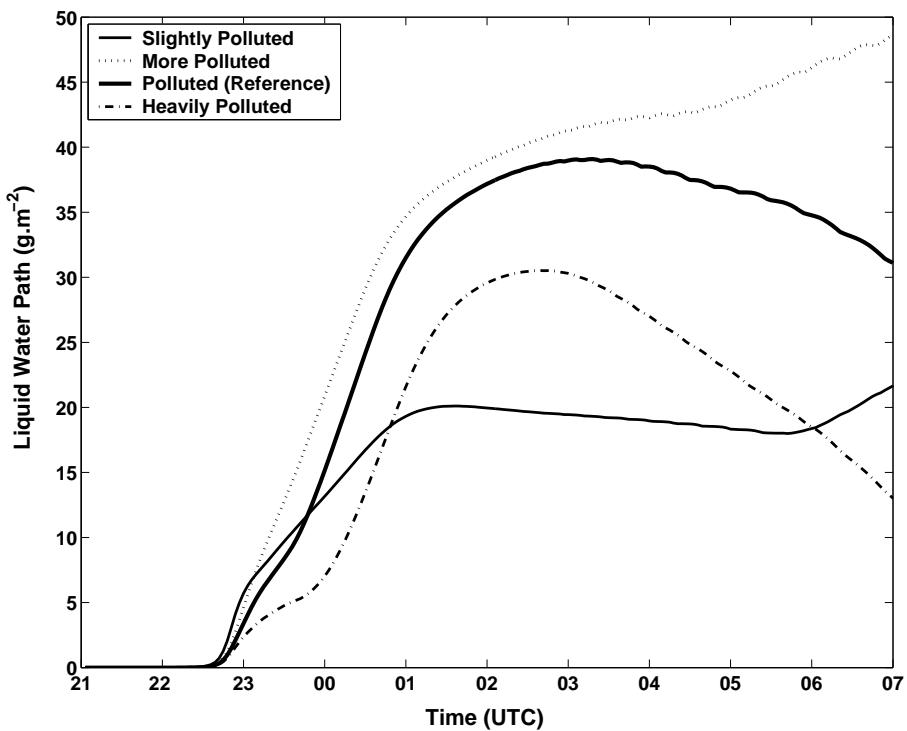


Fig. 13. Evolution of the LWP (g.m^{-2}) for the four sensitivity cases: slightly polluted 1000 aerosols per cm^{-3} (solid line), more polluted 5000 aerosols per cm^{-3} (dotted line), polluted 8300 aerosols per cm^{-3} (reference) (thick solid line) and heavily polluted 12 000 aerosols per cm^{-3} (dash-dot line) for the accumulation mode during the simulation.

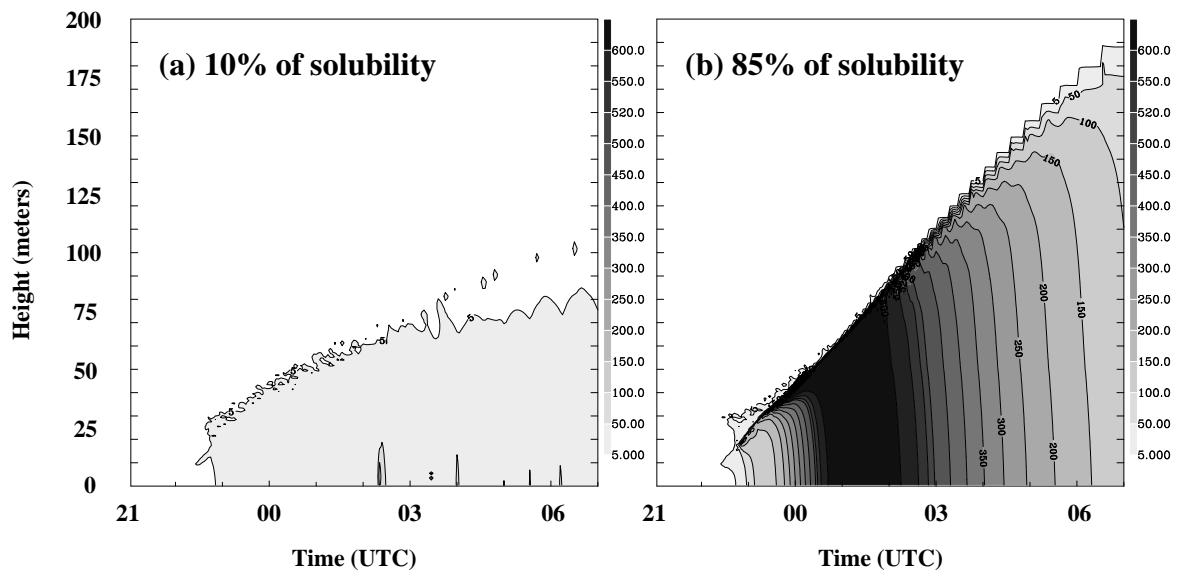


Fig. 14. Cloud droplet concentration (cm⁻³) for the aerosol chemical composition with 10 % solubility (Mineral Aerosol case) (a) and 85% solubility (Reference_SOA1) as functions of height and time.

Table 1. IOP13, 18-19 Feb 2007: Aerosol size distribution characteristics measured from SMPS before the fog episode.

Time period (UTC)	Aitken Mode			Accumulation Mode		
	N (cm ⁻³)	D _p (nm)	σ	N (cm ⁻³)	D _p (nm)	σ
17 - 18	4050	17.4	1.51	7400	78.5	1.84
18 - 19	5700	20.6	1.59	11400	81.2	1.87
19 - 20	8200	30	1.64	10700	97.3	1.71
20 - 21	7700	32	1.59	9700	102.0	1.68
21 - 22	8700	33	1.57	8300	110	1.59

Table 2. Physical and chemical properties of chemical compounds.

	Compounds	Molecular	Solubility	No. of
	Chemical	Weight		Ions
INORGANIC	$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	132	1	3
	NH_4NO_3	80	1	2
INSOLUBLE	SOOT	250	0	0
ORGANIC	POM			
PRIMARY		250	0.1	1
MINERAL	DUST			
(AEROSOL)		250	0.1	1
ORGANIC	SOA1^a	88	0.99	1
SECONDARY*	SOA8^b	195	0.23	0

* SOA groups considered by Griffin et al. (2005) and by Tulet et al. (2006)

^a SOA1 Hydrophilic Secondary Organic Aerosol (Anthropogenic, dissociative type)

^b SOA8 Hydrophobic Secondary Organic Aerosol (Anthropogenic, poly-aromatic type)

Table 3. The six aerosol chemical compositions used in the sensitivity tests in "off-line" simulations. The percentage represents the mass fraction of each compound contained in the aerosol.

Chemical Composition	(NH ₄) ₂ SO ₄	NH ₄ NO ₃	SOOT	POM	SOA1	SOA8	DUST
Near							
Combustion	-	-	50%	50%	-	-	-
Exhaust							
Mineral Aerosol	-	-	-	-	-	-	100%
ParisFOG							
Reference	25%	20%	16.4%	38.6%	-	-	-
IOP 13							
Marine	100%	-	-	-	-	-	-
Reference_SOA1	25%	20%	16.4%	-	38.6%	-	-
Reference_SOA8	25%	20%	16.4%	-	-	38.6%	-

Table 4. Summary of the sensitivity tests of cooling rate, aerosol chemical composition and geometric median diameter on the formation of fog droplets. The geometric standard deviation and the aerosol number concentration are 1.59 and 8300 particles.cm⁻³ respectively. Percentages represent the fraction of activated aerosol. Numbers in parentheses represent the number of activated aerosols formed.

FORMATION (Cooling rate = -2K.h ⁻¹ on the surface)						
	<i>Near Combustion^a</i>	<i>Mineral Aerosol</i>	<i>Reference IOP 13</i>	<i>Marine</i>	<i>Reference SOA1^b</i>	<i>Reference SOA8</i>
Diameter 40 nm	0% (0)	0% (0)	0.02% (2)	0.02% (2)	0.02% (2)	0.02% (2)
Diameter 110 nm*	0.01% (1)	0.02% (2)	0.03% (3)	0.036% (3)	0.046% (4)	0.037% (3)
Diameter 300 nm	0.03% (3)	0.035% (3)	0.04% (3)	0.037% (3)	0.048% (4)	0.04% (3)
DEVELOPMENT (Cooling rate = -10K.h ⁻¹ at the top of the fog)						
	<i>Near Combustion^a</i>	<i>Dust</i>	<i>Reference</i>	<i>Marine</i>	<i>Reference SOA1^b</i>	<i>Reference SOA8</i>
Diameter 40 nm	0% (0)	0.01% (1)	1.5% (121)	2% (167)	1.8% (147)	1.4% (122)
Diameter 110 nm*	0.5% (46)	1% (90)	4.4% (363)	4.6% (380)	4.3% (430)	3.7% (368)
Diameter 300 nm	3.5% (295)	4% (339)	5% (421)	5.1% (421)	5.8% (483)	5.1% (426)

* aerosol median diameter of the Reference Case IOP 13

^a minimum cloud droplets number formed (minimum aerosol number activated)

^b maximum cloud droplets number formed (maximum aerosol number activated)

Table 5. Numerical values of the maximum height of fog, the strongest cooling rate, the highest value of S_{max} , the maximum cloud droplet concentration, the Liquid Water Path, the accumulated precipitation at the ground (for cloud droplets) and the effective droplets radius for the four sensitivity tests: slightly polluted (1000 aerosols per cm^{-3}), more polluted (5000 aerosols per cm^{-3}), polluted - reference (8300 aerosols per cm^{-3}) and heavily polluted (12 000 aerosols per cm^{-3}) at 23, 00, 03 and 06 UTC.

Time of Simulation (hours)	Sensitivity tests	Height of fog (meters)	Cooling rate (K.h^{-1})	S_{max} %	Cloud Droplets Conc. (cm^{-3})	Liquid Water Path (g.m^{-2})	Accumulated Precipitation (mm)	Effective Droplets Radius (μm)
23 UTC	Slightly Polluted	30	8.5	0.15	160	5.8	$9.5*10^{-5}$	12
	More Polluted	30	8.3	0.082	320	4.6	$4.9*10^{-5}$	13
	Polluted (Ref)	30	7.6	0.057	180	3.4	$6.1*10^{-5}$	13
	Heavily Polluted	30	7.2	0.042	85	2.4	$6.8*10^{-5}$	14
00 UTC	Slightly Polluted	50	11.5	0.175	203	13	$1.6*10^{-3}$	11
	More Polluted	50	19.8	0.13	960	21	$1.3*10^{-3}$	12
	Polluted (Ref)	50	16.2	0.091	720	15	$1.3*10^{-3}$	12
	Heavily Polluted	50	12	0.060	310	7	$1.3*10^{-3}$	16
03 UTC	Slightly Polluted	100	8.4	0.15	120	19	$5.7*10^{-3}$	11
	More Polluted	110	11	0.098	400	41	$4.4*10^{-3}$	8
	Polluted (Ref)	110	9	0.063	380	39	$4.5*10^{-3}$	8
	Heavily Polluted	100	8.6	0.048	220	30	$4.6*10^{-3}$	9
06 UTC	Slightly Polluted	150	6.7	0.14	90	18	$6.9*10^{-3}$	13
	More Polluted	180	7	0.072	190	46	$5.7*10^{-3}$	10
	Polluted (Ref)	170	5	0.04	100	34	$5.8*10^{-3}$	12
	Heavily Polluted	150	3	0.022	35	19	$6.1*10^{-3}$	14

Table 6. Same as Table 5 for the chemical sensitivity tests.

Time of Simulation (hours)	Sensitivity tests	Height of fog (meters)	Cooling rate (K.h ⁻¹)	S _{max} %	Cloud Droplets Conc. (cm ⁻³)	Liquid Water Path (g.m ⁻²)	Accumulated Precipitation (mm)	Effective Droplets Radius (μm)
23 UTC	Mineral Aerosol	30	6	0.16	30	1.6	8.1*10 ⁻⁵	12
	Reference_SOA1	30	8	0.043	240	3.6	5.7*10 ⁻⁵	14
00 UTC	Mineral Aerosol	40	10	0.19	38	2.8	8.8*10 ⁻³	15
	Reference_SOA1	50	18	0.074	1050	17	1.3*10 ⁻³	9
03 UTC	Mineral Aerosol	70	5	0.15	20	8.8	4.5*10 ⁻³	17
	Reference_SOA1	110	11.8	0.056	460	44	4.3*10 ⁻³	8
06 UTC	Mineral Aerosol	70	2.5	0.10	15	8.5	7.9*10 ⁻³	16
	Reference_SOA1	170	5.5	0.033	160	43	5.6*10 ⁻³	8

5.3 Complément : Validation microphysique

Cette section apporte des informations complémentaires à la validation effectuée dans l'article "Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog". On se focalisera sur la comparaison entre le nombre de gouttelettes simulé, la concentration en nombre de gouttelettes mesuré par l'OPC (Pallas welas 2000) et la concentration en nombre de CCN activés calculée à partir des données obtenues par le SMPS. Nous allons montré toutes les difficultés à effectuer cette validation et qu'il n'est pas trivial de comparer le nombre de gouttelettes nuageuses simulées avec celles observées. Ce paragraphe est également un complément d'informations aux problèmes soulevés dans la partie 3.7.2 pour des épisodes de brouillards radiatifs.

La Figure 5.1 compare le nombre de gouttelettes nuageuses simulées à 2 m (en trait pointillé) pour la simulation de référence représentant le cas d'étude de la POI 13 de la campagne ParisFOG avec celui observé à partir de l'OPC (Pallas welas 2000) (en trait plein). Le nombre observé de gouttelettes à partir de l'OPC correspond au nombre de gouttelettes de rayons supérieurs à $0.9 \mu m$ (cf. Chapitre 3.7.2). Durant les premières heures de brouillard (entre 22:30 et 00:00 UTC), le nombre de gouttelettes simulé est du même ordre de grandeur que le nombre de gouttelettes observé. Cependant, à partir de 00:00 UTC, le modèle crée à 2 m une concentration en nombre de gouttelettes nuageuses plus importantes que celles observée. Dans cette étude, il est très important de souligner que la valeur du rayon d'activation de $0.9 \mu m$ utilisée, au-delà duquel les CCN correspondent à des gouttelettes, est gardé constante durant tout le cycle de vie du brouillard. Cette valeur a permis de discriminer plus simplement les données de l'OPC et a supposé alors que la sursaturation donnée par le modèle est restée également constante (égale à 0.076 % pour obtenir un rayon d'activation de $0.9 \mu m$, voir Tableau 3.21). Il faut cependant noter que la sursaturation est un paramètre extrêmement variable durant tout le cycle de vie du brouillard et conduit ainsi à des diamètres d'activation variables et donc à des concentrations en nombre de gouttelettes différentes. De plus, cette comparaison entre le nombre de gouttelettes simulé et observé effectuée à 2 m ne semble pas pertinente, sauf lors de la phase de formation, compte tenu que le processus d'activation prend place au sommet du brouillard. Il semble donc indispensable de comparer le nombre de gouttelettes observé et simulé à l'endroit où les CCN s'activent en gouttelettes nuageuses.

Ainsi, une nouvelle comparaison a été effectuée entre le nombre de gouttelettes observé et simulé au sommet du brouillard. La concentration maximale en nombre de gouttelettes nuageuse simulée au sommet du brouillard est représenté sur la Figure 5.1 par les croix rouges. La concentration maximale en nombre de CCN activés calculée à partir des données SMPS est mise en évidence par les croix bleus (les concentrations sont calculées à partir de la théorie κ -Köhler détaillée dans l'étude de discrimination présentée dans la partie 3.7.2). En réalisant cette comparaison, nous utilisons, cette fois-ci à un temps donné, la même valeur de sursaturation et nous nous plaçons à l'endroit où se produit l'activation des CCN. Toutefois, il est important de rappeler que les valeurs de concentration en nombre de gouttelettes dépendent fortement de la valeur de la sursaturation obtenue par la modélisation. Par conséquent, une sursaturation surestimée par le modèle entraînera une surestimation de la concentration en nombre de gouttelettes simulée et

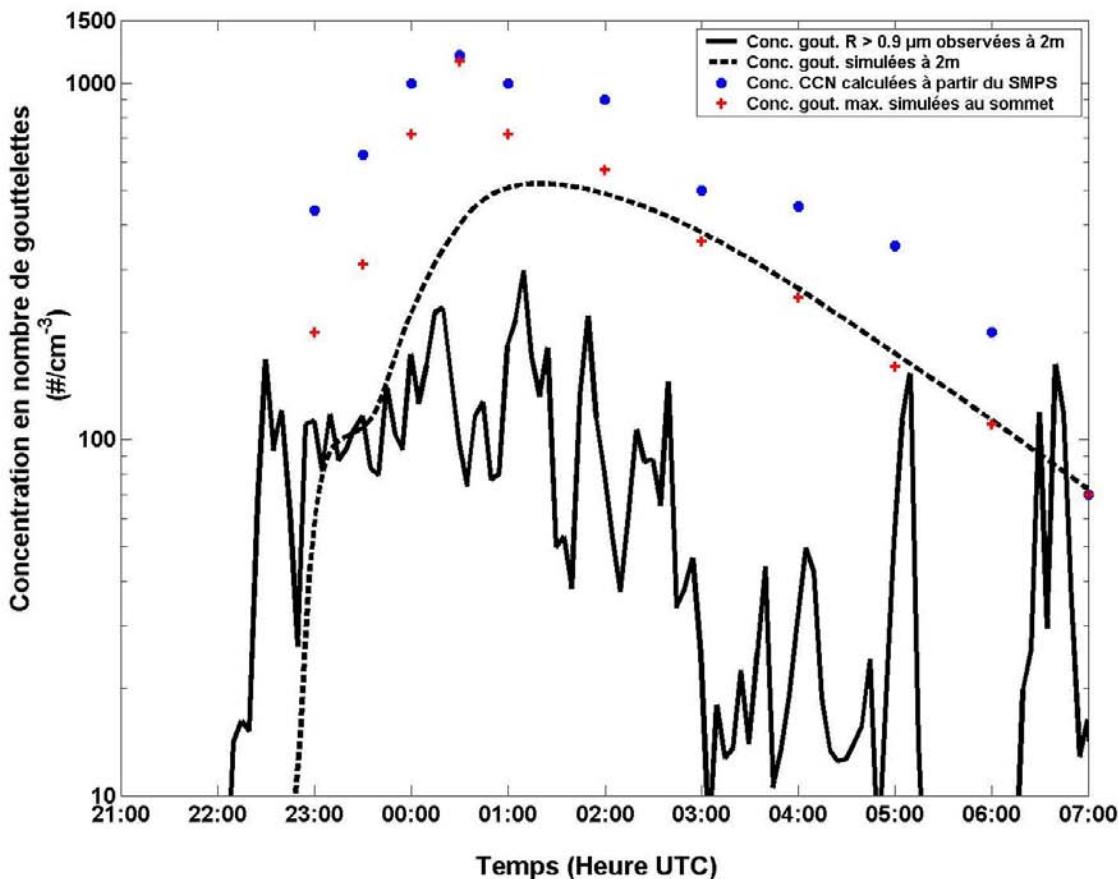


FIGURE 5.1 – *Comparaison entre la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses simulées à 2 m (trait pointillé) et la concentration en nombre de gouttelettes de rayons supérieurs à 0.9 µm mesurées par l'OPC (Pallas welas 2000) (trait plein). Comparaison de la concentration en nombre de CCN calculée à partir des données SMPS et de la concentration maximale de gouttelettes simulées au sommet du brouillard.*

du nombre de CCN observé. De plus, comme nous l'avons précisé dans l'introduction du chapitre, les simulations sont réalisées avec une concentration en nombre d'aérosols constante en fonction de l'altitude ce qui n'est pas forcément le cas dans la réalité. Ainsi, les concentrations en nombre de CCN (croix bleus) déduites à partir des données SMPS sont issues de mesures effectuées en surface à 2 m. De cette manière, nous supposons que la concentration en nombre d'aérosols est homogène sur toute la couche limite.

Malgré les remarques soulevées ci-dessus, les résultats obtenus entre le nombre de gouttelettes simulé et le nombre de CCN déduit à partir des observations sont relativement proches. La concentration en nombre de gouttelettes simulée et observée (ou CCN observés) augmentent progressivement lors de la phase de formation entre 22:30 et 00:00 UTC pour atteindre une valeur maximale de 1000 gouttelettes.cm⁻³ vers 00:30 UTC. Après 01:00 UTC, la concentration diminue régulièrement durant la phase de développement pour atteindre une valeur d'environ 70 gouttelettes.cm⁻³ à 07:00 UTC.

A partir de ces évolutions (au sommet et en surface) de la concentration en nombre de gouttelettes (ou CCN observés), deux remarques peuvent être mis en évidence :

- La première remarque concerne la différence de l'heure pour laquelle la concentration en nombre de gouttelettes simulée créées au sommet du brouillard et observée en surface sont maximales. En effet, l'heure à laquelle la concentration en nombre de gouttelettes simulée à 2m est maximale (trait pointillé), c'est à dire 01:30 UTC, est différente de celle où la concentration en nombre de gouttelettes créées au sommet du brouillard est maximale (croix rouge), c'est à dire 00:30 UTC. Un décalage dans le temps est donc constaté. Cela signifie que l'heure à laquelle le nombre de gouttelettes créées au sommet est maximal ne coïncide pas à l'heure à laquelle le nombre de gouttelettes en surface est maximal. Ce décalage dépend du temps de résidence des gouttelettes nuageuses au sein de la couche de brouillard. Ce temps de résidence varie tout au long du cycle de vie du brouillard et dépend fortement de la taille des gouttelettes et donc du taux d'activation se produisant au sommet et ainsi engendrer des vitesses de sédimentation différentes. De plus, les valeurs de concentration maximale de gouttelettes entre le sommet et la surface sont différentes : 1000 gouttelettes.cm⁻³ sont créées au sommet pour environ 500 gouttelettes.cm⁻³ obtenues à la surface. Cette différence du nombre maximal de gouttelettes met clairement en évidence des interactions se produisant à l'intérieur de la couche de brouillard avec une perte de concentration de gouttelettes entre le sommet et la surface. Ces interactions ont été mis en évidence dans l'article présenté précédemment et seront également mis en avant dans la section suivante.
- La deuxième remarque correspond aux valeurs identiques de concentrations en nombre de gouttelettes entre celles créées au sommet et celles à la surface à partir de 03:00 UTC. A cette heure-ci, l'épaisseur du brouillard devient importante et le brouillard atteint une altitude de plus 100 m. La couche de brouillard est par conséquent bien développée et bien mélangée. Le taux d'activation au sommet de la couche de brouillard diminue également à cause de la diminution du taux de refroidissement engendrant une diminution du nombre de nouvelles gouttelettes nuageuses, comme observé sur la Figure 10 et dans le tableau 5 de l'article.

Cette discussion renforce la validation microphysique de la simulation de référence correspondant à l'épisode de la POI 13 de la campagne ParisFOG. Le point essentiel à cette discussion est que la sursaturation est le principal paramètre pouvant influencer la concentration en nombre de gouttelettes créées au sommet du brouillard influençant fortement le nombre de gouttelettes observé à la surface. Une mauvaise estimation de la sursaturation par le modèle engendrera des différences importantes de concentration de gouttelettes en surface. Seule une mesure de sursaturation réellement observée pourra renforcer cette validation.

5.4 Que se passe-t-il lors de la phase de formation ?

Afin d'aller plus loin dans la compréhension des processus, il nous a paru nécessaire d'étudier de manière approfondie la phase de formation du brouillard. Le cas d'étude correspond toujours à la POI 13 provenant de la campagne de mesures ParisFOG. Cette partie est un complément d'interprétation à l'article : "Influence of aerosols on the formation and development of radiation fog" présenté précédemment en se focalisant principalement sur la phase de formation du brouillard.

5.4.1 Retour sur la relation entre le nombre d'aérosols et le nombre de gouttelettes

Nous apportons dans cette section des informations supplémentaires concernant les résultats des simulations "off-line" présentés dans l'article. La Figure 5.2 illustre l'évolution du nombre maximal de gouttelettes nuageuses formées (trait plein pointillé) en fonction de la concentration totale en nombre d'aérosols et du taux de refroidissement. Les 4 autres courbes montrent l'évolution du nombre de gouttelettes nuageuses formées en fonction du nombre d'aérosols et du taux de refroidissement que l'on impose et qui est déterminé à l'aide la Figure 5.3. En effet, la Figure 5.3 montre le taux de refroidissement pour lequel le nombre d'aérosols activés est maximal en fonction de la concentration totale en nombre d'aérosols. Ces deux figures sont donc complémentaires. Les 4 études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols du mode accumulation effectuées dans l'article sont représentées par la couleur rouge : 1000, 5000, 8300 (Référence) et 12000 part.cm^{-3} . La composition chimique de l'aérosol correspond à celle du cas de référence de la POI 13 de la campagne de mesures ParisFOG, le diamètre médian et la dispersion de la distribution est de 110 nm et 1.59, respectivement.

A l'aide de ces deux figures, nous constatons que pour de faibles taux de refroidissement de valeurs inférieures à -4°K.h^{-1} (Figure 5.3), le nombre maximal de gouttelettes nuageuses formées se situe pour de faibles concentrations en nombre d'aérosols (vers 1000 part.cm^{-3}). Au fur et à mesure que le taux de refroidissement va augmenter, la valeur de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses formées devient maximale pour des concentrations en nombre d'aérosols de plus en plus importantes. Par exemple, si le taux de refroidissement atteint une valeur de -10°K.h^{-1} (Figure 5.3), le nombre de gouttelettes créées sera maximal pour un environnement contenant 3000 part.cm^{-3} . De même, si le taux de refroidissement dépasse -15°K.h^{-1} (Figure 5.3), le maximum de gouttelettes formées sera présent pour un environnement contenant environ 5000 part.cm^{-3} . Afin de bien fixer les idées, nous pouvons également interpréter ces résultats de manière inverse. Par exemple, pour qu'un environnement contenant 12000 part.cm^{-3} forme un nombre maximal de gouttelettes nuageuses, il faut que le taux de refroidissement atteigne une valeur de -45°K.h^{-1} . Ce dernier exemple semble toutefois peu réalisable, il est peu probable que le taux de refroidissement atteigne une telle valeur pour un épisode de brouillard radiatif.

Ces résultats tirés de ces deux figures vont servir de base pour comprendre les diffé-

rences observées lors des simulations 1D entre les 4 études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols du mode accumulation. Dans la suite de l'étude, nous nous intéressons à la phase de formation du brouillard en s'appuyant sur les figures 5.2 et 5.3 en montrant que cette relation entre le nombre d'aérosols et le nombre de gouttelettes est à l'origine des différences importantes sur les processus microphysiques prenant place dans le brouillard.

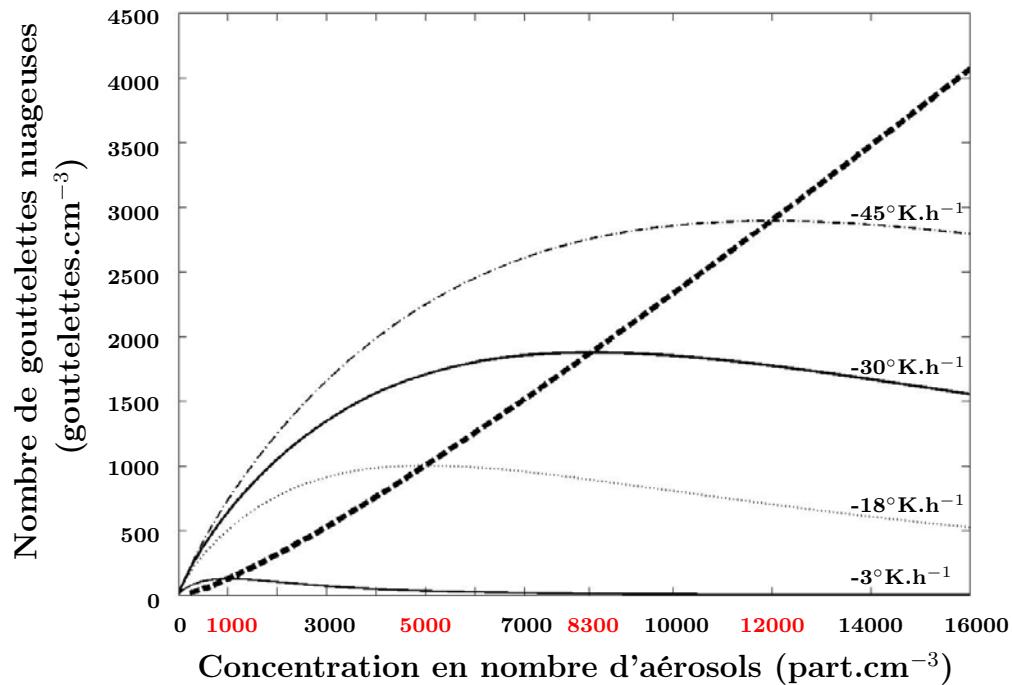


FIGURE 5.2 – *Evolution de la concentration maximale de gouttelettes nuageuses (seuil maximal d'activation) en fonction de la concentration totale en nombre d'aérosols (trait gras pointillé) et du taux de refroidissement. Les 4 autres courbes montrent l'évolution du nombre de gouttelettes nuageuses formées en fonction du nombre d'aérosols et du taux de refroidissement donné par la Figure 5.3. La composition chimique de l'aérosol est celle du cas de référence (POI 13 de ParisFOG), le diamètre médian et la dispersion de la distribution est de 110 nm et 1.59, respectivement.*

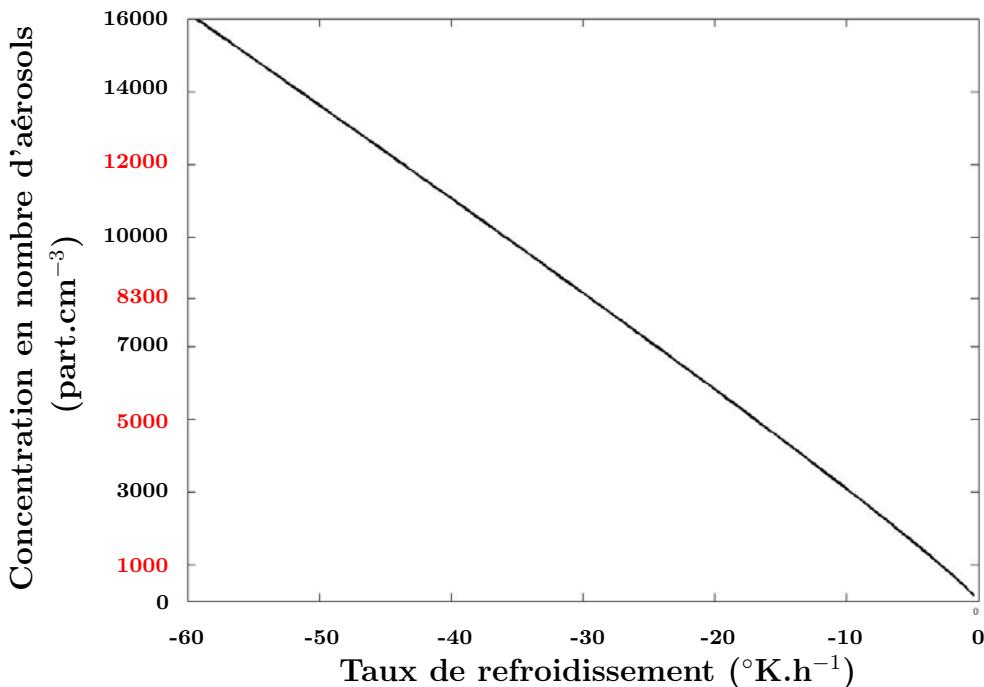


FIGURE 5.3 – *Evolution du taux de refroidissement pour lequel le nombre d'aérosols activés est maximal en fonction de la concentration totale en nombre d'aérosols. La composition chimique de l'aérosol est celle du cas de référence (POI 13 de ParisFOG), le diamètre médian et la dispersion de la dispersion est de 110 nm et 1.59, respectivement.*

5.4.2 Pendant les 45 premières minutes...

La Figure 5.4 illustre les profils verticaux du contenu en eau liquide, de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses et du taux de refroidissement à 22:15, 22:30 et 22:45 UTC. Les profils verticaux sont tracés pour les 4 études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols du mode accumulation qui correspondent à : 1000 (trait solide fin), 5000 (trait pointillé), Référence 8300 (trait solide gras) et 12000 (trait tireté) part.cm⁻³. Le code de tracés reste identique à celui utilisé dans l'article. Seules les différences observées entre les cas 1000, 5000 et 8300 part.cm⁻³ seront analysées afin de simplifier les interprétations.

A 22:15 UTC, la condensation apparaît simultanément au sol et à une altitude de 30 mètres. Le niveau de condensation au niveau de l'inversion nocturne est dû essentiellement à la turbulence. Nous constatons que le cas avec 1000 part.cm⁻³, représenté dans notre étude comme un milieu étant peu pollué, forme le plus de gouttelettes nuageuses avec environ 25 gouttelettes.cm⁻³ contrairement aux autres cas plus pollués qui présentent une concentration en nombre de gouttelettes nuageuses inférieure à 5 cm⁻³ (Figure 5.4b à 22:15 UTC). A partir des résultats de la section 5.4.1, nous avons montré que pour de faibles taux de refroidissement (inférieur à -4°K.h⁻¹), ce qui est le cas lors des toutes premières minutes de formation du brouillard, que c'est le milieu peu pollué contenant

une concentration en nombre d'aérosols faible qui forme le plus de gouttelettes nuageuses.

Le Tableau 5.1 montre le taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuse à 22:15, 22:30 et 22:45 UTC. Le taux de précipitation est nul à 22:15 et 22:30 UTC en surface. Les gouttelettes n'ont pas encore atteint la surface. Compte tenu que c'est le milieu peu pollué ($1000 \text{ part.cm}^{-3}$) qui possède un taux d'activation des aérosols le plus élevé, les gouttelettes nuageuses sont alors plus nombreuses mais également de tailles plus petites et sédimentent alors moins rapidement. Le cas peu pollué présente ainsi un contenu en eau liquide plus important mais qui reste très faible autour de 0.006 g.kg^{-1} à environ 30 mètres d'altitude (Figure 5.4a à 22:15 UTC, nous nous situons dans les toutes premières minutes de la formation du brouillard!).

Tests de Sensibilité	Concentration en nombre d'aérosols (part.cm^{-3})	Taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses au sol (mm)		
		22:15 UTC	22:30 UTC	22:45 UTC
Slightly Polluted	1000	0	0	7.1×10^{-8}
More Polluted	5000	0	0	2.3×10^{-7}
Polluted (Ref)	8300	0	0	8.9×10^{-7}
Heavily Polluted	12000	0	0	1.9×10^{-6}

TABLE 5.1 – *Taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses pour les 4 cas de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols pour le mode accumulation : 1000 (Slightly Polluted), 5000 (More Polluted), 8300 (Polluted) et 12000 (Heavily Polluted) part.cm^{-3} à 22:15, 22:30 et 22:45 UTC. Les noms des tests de sensibilité sont identiques à ceux de l'article précédent.*

Quinze minutes plus tard, à 22:30 UTC, le niveau de condensation s'élève du sol pour atteindre 10 mètres d'altitude. Nous constatons aussi que pour le même taux de refroidissement de -4°K.h^{-1} environ (Figure 5.4c), le milieu peu pollué (avec $1000 \text{ part.cm}^{-3}$) présente toujours le plus de gouttelettes nuageuses avec une centaine de gouttelettes.cm $^{-3}$ formées. Les cas à 5000 et $8300 \text{ part.cm}^{-3}$ simulent $70 \text{ gouttelettes.cm}^{-3}$ alors que le cas fortement pollué active très faiblement avec $10 \text{ gouttelettes.cm}^{-3}$ (Figure 5.4b à 22:30 UTC). En se reportant aux Figures 5.2 et 5.3, à un taux de refroidissement de -4°K.h^{-1} , nous constatons que c'est encore le milieu peu pollué ayant une concentration totale en nombre d'aérosols faible qui active le maximum d'aérosols. Les gouttelettes nuageuses sont alors plus petites dans le cas avec $1000 \text{ part.cm}^{-3}$ (milieu peu pollué) et sédimentent moins rapidement par rapport aux autres cas. Le cas peu pollué présente alors un contenu en eau liquide plus important de 0.01 g.kg^{-1} à 30 mètres d'altitude (Figure 5.4a à 22:30 UTC).

A 22:45 UTC, une couche de brouillard de 30 m de hauteur s'est formée. Une rétroaction entre les processus microphysiques et radiatifs apparaît, le taux de refroidissement est maintenant différent entre les 4 cas d'études de sensibilité. Il est de -7°K.h^{-1} pour le cas peu pollué, -5°K.h^{-1} pour le cas avec $5000 \text{ part.cm}^{-3}$ et de -4°K.h^{-1} pour les cas avec 8300 et $12000 \text{ part.cm}^{-3}$ (Figure 5.4c à 22:45 UTC). De ce fait, le cas peu pollué active le plus grand nombre de gouttelettes nuageuses avec environ $190 \text{ gouttelettes.cm}^{-3}$ (Figure 5.4b à 22:30 UTC). Cette différence de valeur de taux de refroidissement est due à la différence du taux d'activation et de valeur de contenu en eau liquide entre les

différents cas (Figure 5.4a à 22 :45 UTC) qui lui-même diffère selon la sédimentation des gouttelettes nuageuses comme expliqué auparavant. En effet, à 22:45 UTC, le Tableau 5.1 montre que le taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses au sol est le plus faible pour le milieu peu pollué ($1000 \text{ part.cm}^{-3}$) avec $7.1*10^{-8} \text{ mm}$ suggérant ainsi que les gouttelettes sont plus petites et sédimentent moins rapidement que pour les 3 autres cas. Par conséquent, le cas peu pollué a un contenu en eau liquide de 0.085 g.kg^{-1} (situé à environ 15 mètres d'altitude) supérieur aux autres cas qui possèdent un contenu en eau liquide inférieur à 0.04 g.kg^{-1} .

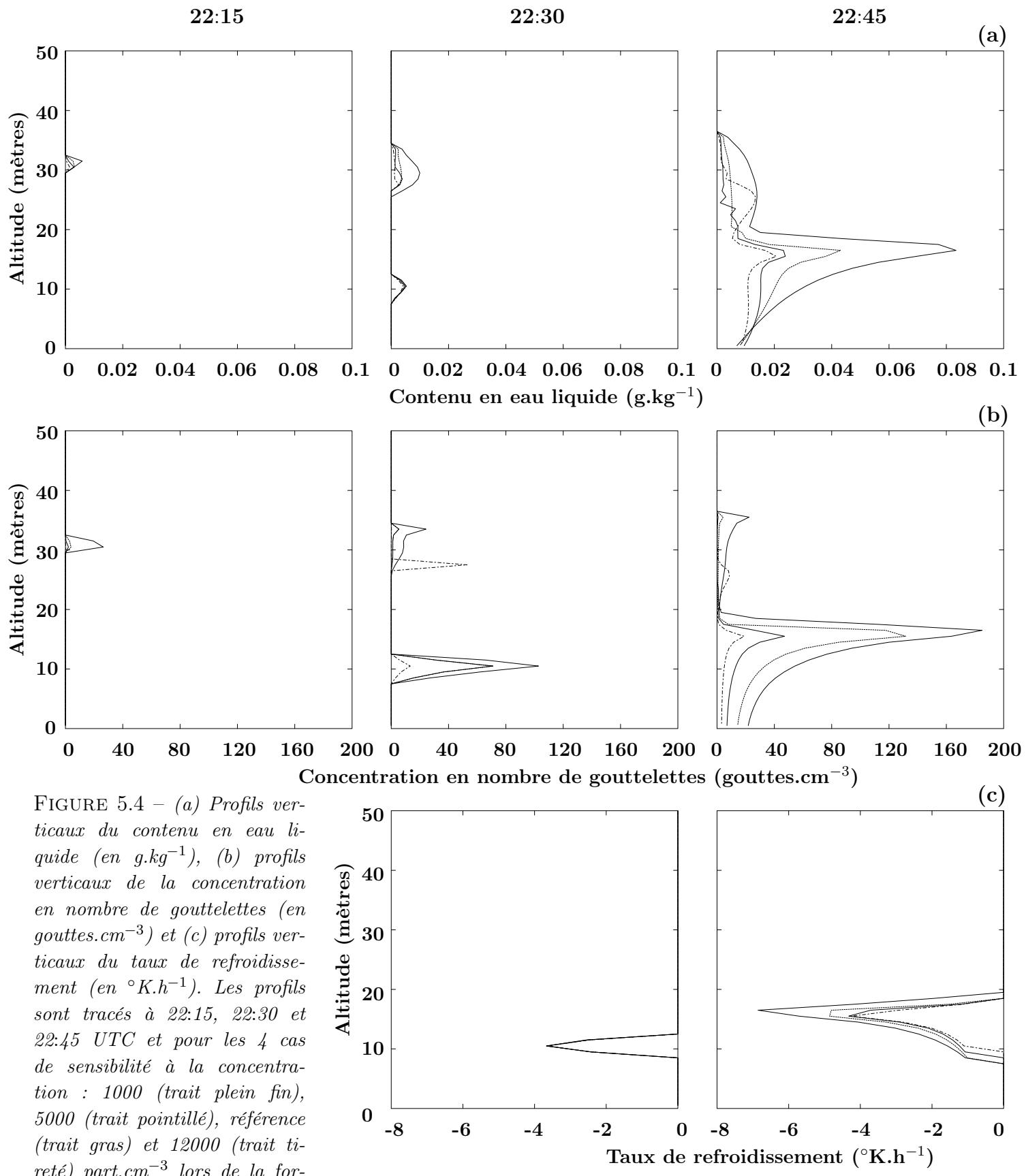


FIGURE 5.4 – (a) Profils verticaux du contenu en eau liquide (en g.kg^{-1}), (b) profils verticaux de la concentration en nombre de gouttelettes (en gouttes.cm^{-3}) et (c) profils verticaux du taux de refroidissement (en $^{\circ}\text{K.h}^{-1}$). Les profils sont tracés à 22:15, 22:30 et 22:45 UTC et pour les 4 cas de sensibilité à la concentration : 1000 (trait plein fin), 5000 (trait pointillé), référence (trait gras) et 12000 (trait tireté) part.cm^{-3} lors de la formation du brouillard radiatif de la POI 13.

5.4.3 Les 45 minutes suivantes...

Comme pour la Figure 5.4, la Figure 5.5 illustre les profils verticaux du contenu en eau liquide, de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses et du taux de refroidissement à 23:00, 23:15 et 23:30 UTC. Pour rappel, les profils verticaux sont tracés pour les 4 études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols du mode accumulation : 1000 (trait solide fin), 5000 (trait pointillé), Référence 8300 (trait solide gras) et 12000 (trait tireté) part.cm⁻³.

A 23:00 UTC, la couche de brouillard est désormais bien mélangée et atteint une hauteur de 38 mètres environ. La tendance entre les 4 cas de sensibilité change. Le taux de refroidissement est très peu différent entre les cas et se situe entre -7 et -8°K.h⁻¹. Cependant, nous remarquons que c'est le cas avec 5000 part.cm⁻³ qui enregistrent cette fois-ci le plus grand nombre de gouttelettes nuageuses avec 320 cm⁻³. Comme indiqué en section 5.4.1 à partir des figures 5.2 et 5.3, une augmentation du taux de refroidissement engendre un nombre maximal de gouttelettes pour une concentration d'aérosol de plus en plus élevée. C'est pour cette raison que le milieu contenant 5000 part.cm⁻³ crée désormais le maximum de gouttelettes nuageuses parmi les 4 études de sensibilité présentées ici.

C'est toujours la simulation en milieu peu pollué qui donne un contenu en eau liquide le plus important avec 0.2 g.kg⁻¹ en surface (Figure 5.5a à 23:00 UTC). Cependant, le Tableau 5.2 montre que le maximum de taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses au sol est de 9.5*10⁻⁵ mm pour le milieu peu pollué. Le taux de précipitation est plus faible pour les 3 autres cas. La différence du contenu en eau liquide entre le cas à 5000 et 1000 part.cm⁻³ est alors due au processus de sédimentation. En effet, les gouttelettes sont plus grosses pour le milieu peu pollué (car il y a moins d'aérosols activés) et atteignent le sol plus rapidement (notons que le brouillard atteint à 23:00 UTC une hauteur de 40 mètres environ). Ceci explique les différences de valeurs du taux de précipitation cumulée entre les 4 cas (Tableau 5.2).

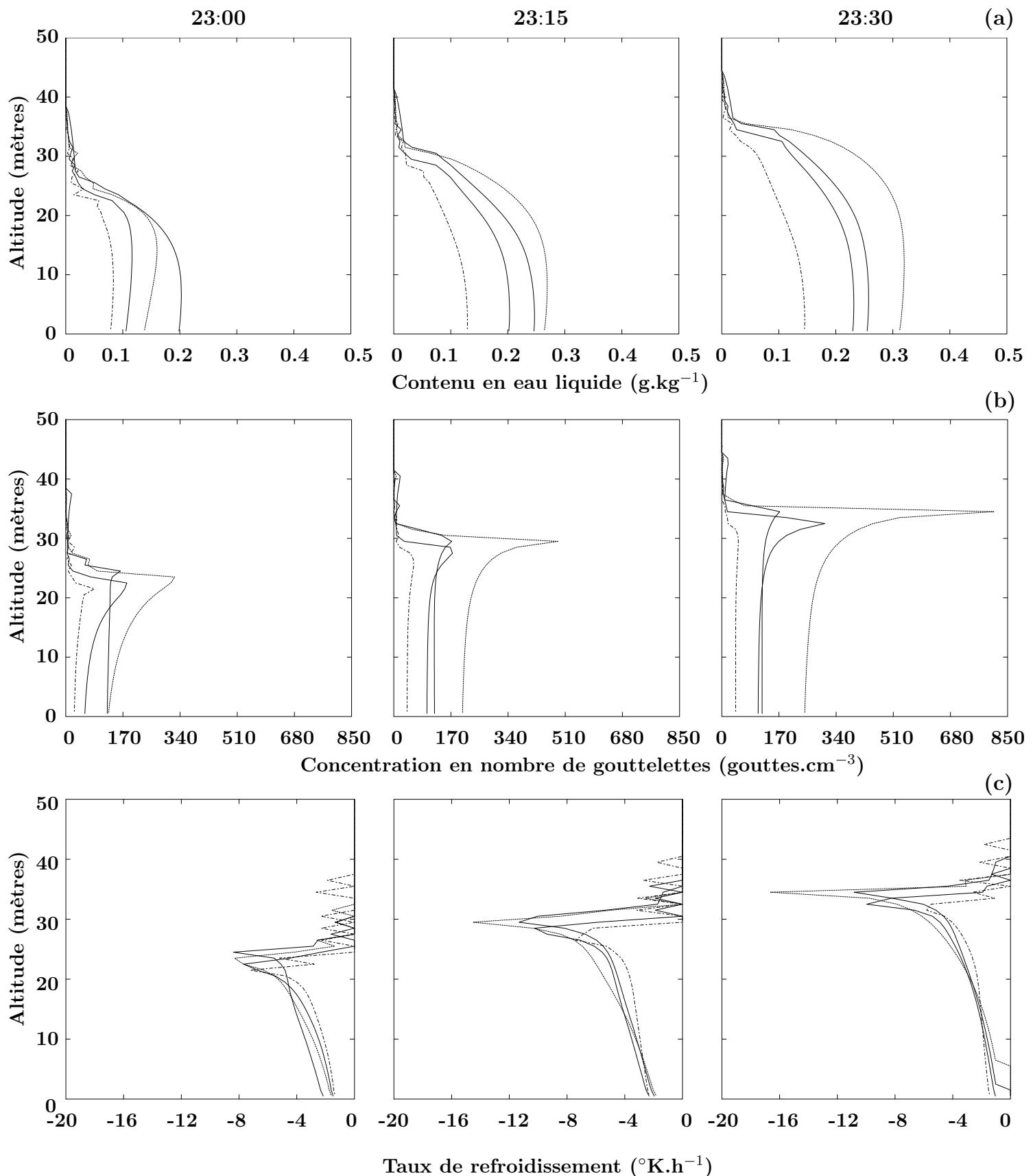
Tests de Sensibilité	Concentration en nombre d'aérosols (part.cm ⁻³)	Taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses (mm)		
		23:00 UTC	23:15 UTC	23:30 UTC
Slightly Polluted	1000	9.5*10 ⁻⁵	4.2*10 ⁻⁴	8.0*10 ⁻⁴
More Polluted	5000	4.9*10 ⁻⁵	2.6*10 ⁻⁴	5.9*10 ⁻⁴
Polluted (Ref)	8300	6.1*10 ⁻⁵	2.9*10 ⁻⁴	6.2*10 ⁻⁴
Heavily Polluted	12000	6.8*10 ⁻⁵	2.8*10 ⁻⁴	5.7*10 ⁻⁴

TABLE 5.2 – *Idem Tableau 5.1 mais à 23:00, 23:15 et 23:30 UTC.*

A 23:15 UTC, c'est maintenant le cas avec 5000 part.cm⁻³ qui enregistre le plus fort contenu en eau liquide avec 0.26 g.kg⁻¹ (Figure 5.5a). L'augmentation du contenu en eau liquide engendre ainsi une rétro-action sur le taux de refroidissement qui devient alors plus important avec -14°K.h⁻¹ pour le cas avec 5000 part.cm⁻³ (Figure 5.5c) par rapport aux 3 autres cas qui enregistrent un taux de refroidissement de l'ordre de -11°K.h⁻¹ pour les cas à 1000 et à 8300 part.cm⁻³. Le nombre de gouttelettes nuageuses est de 500 cm⁻³ pour le cas avec 5000 part.cm⁻³ (Figure 5.5b).

Cette tendance se poursuit également à 23:30 UTC. Le cas avec 5000 part.cm⁻³ active près de 800 gouttelettes.cm⁻³, le taux de refroidissement atteint cette fois-ci -17°K.h⁻¹ et le contenu en eau liquide augmente pour franchir la valeur de 0.3 g.kg⁻¹ à la surface. Sur les Figures 5.2 et 5.3 et pour un taux de refroidissement de -17°K.h⁻¹, le milieu avec 5000 part.cm⁻³ atteint le nombre maximal d'aérosols activés avec 1000 gouttelettes.cm⁻³ (Figure 5.2). De plus, nous constatons que pour ce même taux de refroidissement, le milieu avec 8300 part.cm⁻³ (cas de référence) a un nombre de gouttelettes nuageuses plus important que le milieu peu pollué avec 1000 part.cm⁻³ (Figure 5.2). Ceci explique que le pic d'activation est plus important dans le milieu avec 8300 part.cm⁻³ (référence) que dans le cas avec 1000 part.cm⁻³ sur la Figure 5.5b à 23:30 UTC. Ces différences expliquent ainsi les différences de taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses présentées dans le Tableau 5.2. En effet, c'est le milieu peu pollué (activant le moins à 23:30 UTC comme le montre la Figure 5.2) qui présente un taux de précipitation le plus élevé du fait que les gouttelettes sont plus grosses et sédimentent le plus.

Il est également important de souligner que l'évolution du brouillard pendant sa phase de formation est relativement rapide dans notre cas d'étude. En moins d'une heure, le brouillard atteint une hauteur de près de 45 mètres entre 22:30 et 23:30 UTC. Le contenu en eau liquide est mélangé sur toute la couche de brouillard et l'activation des aérosols présente un pic au sommet du brouillard (contrairement à l'intérieur de la couche de brouillard) à l'endroit où le taux de refroidissement est maximal (Figure 5.5b et c à 23:15 et 23:30 UTC). Ainsi la présence de gouttelettes nuageuses en surface est due à l'activation des aérosols se produisant au sommet du brouillard, à la sédimentation des gouttelettes et également à l'influence du mélange turbulent.

FIGURE 5.5 – *Idem Figure 5.4 mais à 23:00, 23:15 et 23:30 UTC.*

5.4.4 Encore plus loin...

Continuons à observer les différences microphysiques entre les 4 cas de sensibilité. Comme précédemment, la Figure 5.6 montre les profils verticaux du contenu en eau liquide, de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses et du taux de refroidissement à 23:45, 00:00 et 00:15 UTC. Les profils verticaux sont toujours tracés pour les 4 études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols du mode accumulation : 1000 (trait solide fin), 5000 (trait pointillé), Référence 8300 (trait solide gras) et 12000 (trait tireté) part.cm^{-3} .

A partir de 23:30 UTC, la couche de brouillard est désormais bien développé atteignant plus de 50 mètres de hauteur. Les taux de refroidissement sont également plus importants comme le montre la Figure 5.6c. Les résultats entre les différents cas de sensibilité observées à 23:30 UTC sont identiques à ceux faits à 23:45, 00:00 et 00:15 UTC. Le cas avec 5000 part.cm^{-3} a toujours le taux de refroidissement le plus important avec -17°K.h^{-1} , le nombre maximal de gouttelettes nuageuses avec 840 cm^{-3} et la valeur maximale du contenu en eau liquide de 0.35 au sol à 23:45 UTC. Ces valeurs sont quasi-identiques à celles observées à 23:30 UTC. Les différences entre les cas avec 1000 part.cm^{-3} (milieu peu pollué) et avec 8300 part.cm^{-3} (référence) se sont accentuées par rapport à 23:30 UTC du fait que le taux de refroidissement pour le cas de référence a augmenté de -10°K.h^{-1} à -14°K.h^{-1} entre 23:30 et 23:45 UTC alors que celui pour le milieu peu pollué est resté relativement constant à -10°K.h^{-1} . Le Tableau 5.3 montre que le milieu peu pollué enregistre le plus fort taux de précipitation cumulée (comme à 23:30 UTC) et varie de $1.2*10^{-3}$ à $2.0*10^{-3}$ mm entre 22:45 à 00:15 UTC. Toujours à partir des résultats de la section 5.4.1 (Figures 5.2 et 5.3), compte tenu que les taux de refroidissement continuent à croître légèrement, le nombre maximal de gouttelettes nuageuses se situe maintenant pour des concentrations en nombre d'aérosols plus importantes. Ainsi, en milieu peu pollué (1000 part.cm^{-3}), l'activation des aérosols est donc moins importante (avec 200 gouttelettes. cm^{-3} créées), les gouttelettes sont alors plus grosses et sédimentent de façon plus conséquente expliquant un taux de précipitation cumulée plus important dans le Tableau 5.3. Ceci explique ainsi les valeurs plus faibles de contenu en eau liquide (Figure 5.6a à 00:15 UTC).

Quelque soit les cas de sensibilité, le contenu en eau liquide présente des valeurs légèrement plus faible en surface que dans la couche de brouillard. Les pics d'activation se situent toujours au sommet du brouillard, à l'endroit où le taux de refroidissement est le plus fort (Figure 5.6b).

Tests de Sensibilité	Concentration en nombre d'aérosols (part.cm^{-3})	Taux de précipitation cumulée des gouttelettes nuageuses (mm)		
		23:45 UTC	00:00 UTC	00:15 UTC
Slightly Polluted	1000	$1.2*10^{-3}$	$1.6*10^{-3}$	$2.0*10^{-3}$
More Polluted	5000	$9.2*10^{-4}$	$1.2*10^{-3}$	$1.6*10^{-3}$
Polluted (Ref)	8300	$9.6*10^{-4}$	$1.3*10^{-3}$	$1.6*10^{-3}$
Heavily Polluted	12000	$9.0*10^{-4}$	$1.2*10^{-3}$	$1.5*10^{-3}$

TABLE 5.3 – *Idem Tableau 5.1 mais à 23:45, 00:00 et 00:15 UTC.*

Nous avons réussi à mettre en évidence que la concentration en nombre d'aérosols peut être à la fois un paramètre limitant ou bénéfique à la formation du brouillard. Le nombre de gouttelettes activés n'est pas relié linéairement au nombre d'aérosols et l'interaction entre les deux est complexe. Pour un environnement fortement pollué (supérieur à 10000 part.cm⁻³), le brouillard aura des difficultés à se former et à évoluer. Au contraire pour des concentrations en nombre d'aérosols plus faibles caractérisant un environnement peu pollué (1000 part.cm⁻³), le brouillard se formera plus facilement durant les toutes premières minutes mais sera ensuite limité au fur et à mesure que le taux de refroidissement augmentera. De plus, les interactions se produisant entre la concentration en nombre d'aérosols, les processus microphysiques et radiatifs mis en évidence précédemment sont déterminants pour l'évolution de la couche de brouillard.

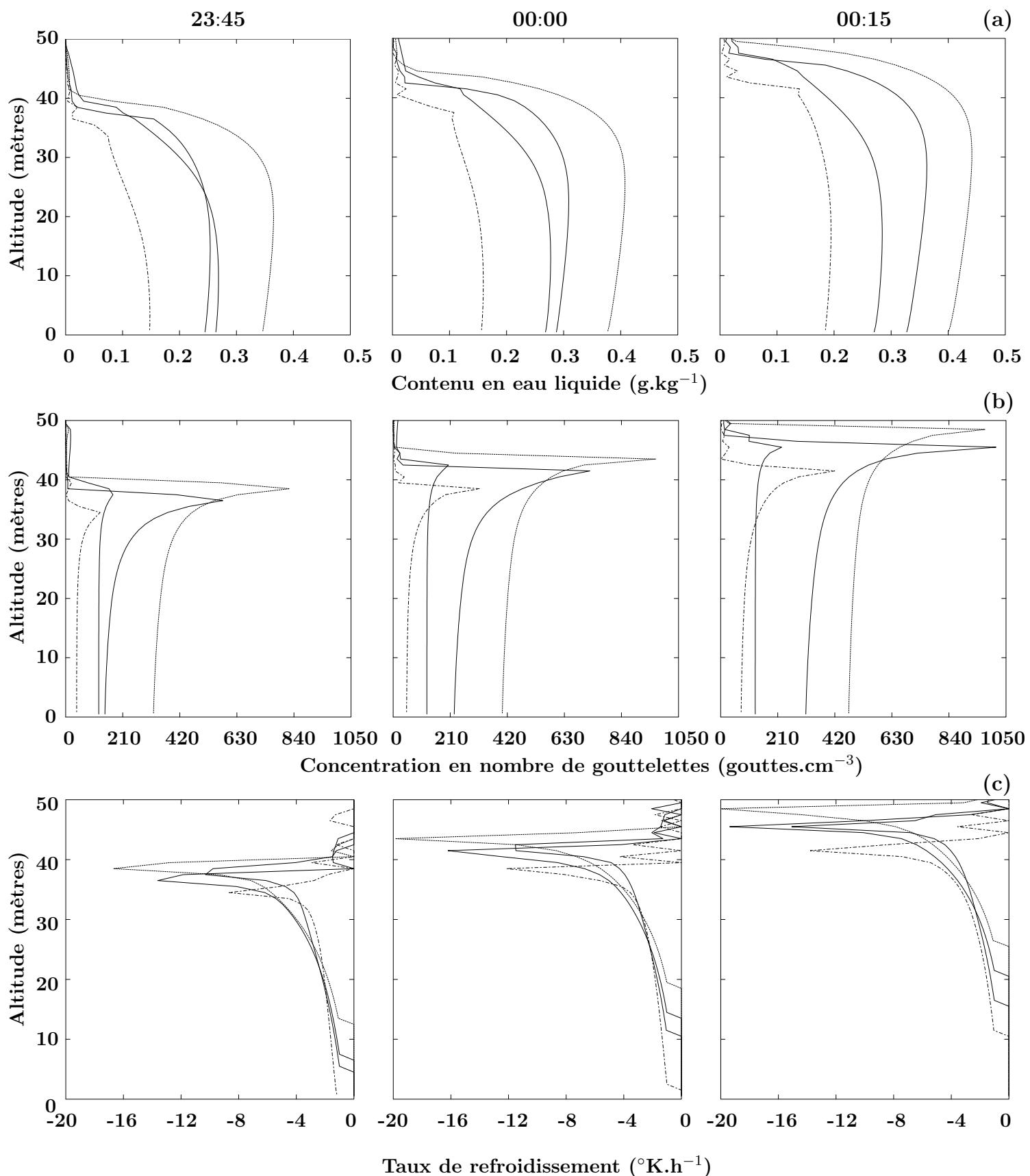


FIGURE 5.6 – *Idem Figure 5.4 mais à 23:45, 00:00 et 00:15 UTC.*

5.5 Conclusions

Cette étude a évalué l'impact de l'aérosol (concentration en nombre, spectre granulométrique et composition chimique) durant les étapes de formation et de développement du brouillard radiatif.

Dans un premier temps, la sensibilité de l'activation des CCN a été traité en imposant un taux de refroidissement et des caractéristiques de l'aérosol (nombre, taille et composition chimique) dans le cadre de simulations appelées "off-line". Ce travail simple nous a permis d'étudier la sensibilité de l'activation des CCN à différents paramètres clefs tels que le taux de refroidissement, la concentration en nombre d'aérosols, la taille et la composition chimique de l'aérosol. Le taux de refroidissement est le processus clef dans la formation et le développement du brouillard radiatif. Il a été montré que le transfert de l'eau sur les aérosols peut limiter le processus d'activation en milieux très pollués. Dans le cas où les aérosols sont très nombreux, la sursaturation maximale atteinte dans la masse d'air reste faible empêchant les particules de franchir leur diamètre critique d'activation. De plus, pour un spectre granulométrique d'aérosol fixé, il est possible de déterminer une valeur critique de la concentration en nombre d'aérosols qui dépend du taux de refroidissement. Si la concentration est plus faible que cette valeur critique, le nombre de CCN activés (nombre de gouttelettes nuageuses) augmente avec le nombre d'aérosols. Le maximum de taux d'activation est atteint à cette valeur critique. Ensuite, le nombre de gouttelettes nuageuses diminue lorsque la concentration en nombre d'aérosols augmente.

Un épisode de brouillard radiatif observé et correspondant à la Période d'Observation Intensive 13 de la campagne ParisFOG a été étudiée en détail en utilisant des résultats de simulations 1D. Celles-ci ont été réalisées en utilisant le couplage du modèle météorologique Méso-NH avec le module d'aérosol ORILAM. Cette configuration prend en compte les propriétés des aérosols observées (concentration en nombre, taille et composition chimique) dans le calcul de l'activation des CCN ainsi que les processus microphysiques et dynamiques se produisant dans le cycle de vie du brouillard. Des comparaisons entre la simulation de référence et les observations montrent que le modèle peut simuler cet événement de brouillard de manière réaliste.

Des études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols et à la composition chimique ont été réalisées. Il a été trouvé que la concentration et la composition chimique de l'aérosol n'influencent pas l'heure de formation du brouillard. Cependant, un impact sur les propriétés microphysiques et sur le développement vertical du brouillard a été mis en évidence. Pour des environnements fortement pollués (concentration en nombre d'aérosols supérieure à $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), la concentration en nombre d'aérosols limite l'augmentation de la sursaturation de la masse d'air (qui dépend également de l'intensité du taux de refroidissement). Ceci conduit à un nombre de gouttelettes plus faible mais de tailles plus importantes et augmente ainsi le dépôt en surface. Dans les environnements pollués (entre 1000 et $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), la fraction en nombre de CCN activés diminue quand le nombre d'aérosols augmente et la quantité d'eau créée au sommet du brouillard diminue. Cette diminution conduit à une réduction du taux de refroidissement et donc de la sursaturation durant la phase de développement. Cette interaction entre les proces-

sus microphysiques et radiatifs explique également la diminution de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses au cours de cette phase de développement.

La phase de formation a été étudiée de manière approfondie à partir des études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols. Le nombre d'aérosols est un paramètre extrêmement important à considérer. Il joue un rôle primordial lors des phases de formation et de développement car il agit directement sur le nombre de gouttelettes nuageuses créées et donc sur le taux de sédimentation et le contenu en eau liquide. Ce dernier est déterminant pour l'évolution du taux de refroidissement lorsque le brouillard va se développer. Les interactions entre le nombre d'aérosols, le nombre et la taille des gouttelettes nuageuses, le taux de sédimentation, le contenu en eau liquide et le taux de refroidissement se produisant lors de la phase de formation vont piloter la formation du brouillard et vont être déterminants pour l'évolution verticale de la couche de brouillard.

Pour un environnement fortement pollué (concentration en nombre d'aérosols supérieure à $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), le brouillard aura des difficultés à se former et à se développer verticalement. Au contraire pour des concentrations en nombre d'aérosols plus faibles caractérisant un environnement peu pollué à pollué (de 1000 à $5000 \text{ part.cm}^{-3}$), le brouillard se formera plus facilement durant les toutes premières minutes. De plus, les interactions se produisant entre la concentration en nombre d'aérosols, les processus microphysiques (notamment le processus de sédimentation) et radiatifs seront déterminants sur l'évolution de la couche de brouillard.

Chapitre 6

Conclusions et Perspectives

6.1 Conclusions générales

De nos jours, le brouillard continue à perturber fortement la vie socio-économique, en particulier au niveau des transports routiers et aériens. Le thème du brouillard répond à un besoin fort en prévision météorologique. La prédition du plafond nuageux et de la visibilité à la surface est un formidable défi pour les services de prévisions météorologiques. Malgré des modèles de plus en plus performants et des calculateurs de plus en plus puissants, la prévision du brouillard, même à très courte échéance, reste un problème délicat. La prévision du brouillard ne peut être améliorée qu'à travers l'amélioration de la modélisation des processus physiques. En effet, le brouillard constitue un phénomène météorologique complexe mettant en jeu des interactions entre les processus microphysiques, radiatifs, turbulents, physico-chimiques et d'échanges avec la surface. Un des buts essentiel de la modélisation du brouillard est alors de bien comprendre et simuler le cycle de vie du brouillard.

Notre étude s'est consacrée ici essentiellement à l'impact de l'aérosol sur le cycle de vie du brouillard et plus particulièrement pendant les phases de formation et de développement du brouillard radiatif. La particularité du brouillard radiatif par rapport aux autres types de nuage réside dans le fait qu'il se forme dans les basses couches de l'atmosphère directement en contact avec la surface où les concentrations en particules d'aérosols sont les plus élevées. De plus, le taux de refroidissement est essentiellement radiatif contrairement aux autres nuages de couche limite qui sont associés à des taux de refroidissement adiabatiques associés à des vitesses verticales. Ceci nous a conduit à étudier en détail la capacité de l'aérosol à s'activer en gouttelette nuageuse en condition de brouillard et ainsi à essayer de comprendre comment les caractéristiques de l'aérosol pouvaient influencer les propriétés microphysiques d'une couche de brouillard radiatif. Notre approche se base à la fois sur un volet expérimental et sur un volet de modélisation numérique. Nous avons pu montrer au cours de cette étude que les deux volets étaient nécessaire à la compréhension détaillée des processus microphysiques intervenant au sein d'une couche de brouillard.

Deux campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG ont été réalisées. La campagne de mesures ParisFOG s'est déroulée sur le site du Sirta à Palaiseau au cours de l'hiver

2006-2007 et la campagne de mesures ToulouseFOG s'est déroulée sur le site de Météo-France à Toulouse durant l'hiver 2007-2008. Une importante banque de données a ainsi pu être obtenue notamment pour les données microphysiques. Les mesures concernant les propriétés des aérosols et des gouttelettes ont pu être analysées en détail. Plus de 9 mois de données microphysiques pour deux environnements différents ont ainsi été présentées. Les caractéristiques de l'aérosol (taille et concentration) ont été analysées avant, pendant et après certains épisodes de brouillard sélectionnés au cours des deux campagnes de mesures. Ce volet observation nous a permis de mettre en évidence des variations journalières importantes de la concentration en nombre d'aérosols ainsi que les évolutions des spectres granulométriques des aérosols. En effet, les concentrations en nombre de particules augmentent brutalement entre celles observées en début d'après midi et celles observées en première partie de nuit. Cette forte augmentation de concentration est due à la diminution de l'épaisseur de la couche et aux émissions locales de polluants. De même, le rayon sec des particules augmente également. Il est important de bien connaître les caractéristiques du mode le plus grossier des particules car celui-ci correspond au mode activable des aérosols. La grande majorité des cas de brouillard observés au cours des deux campagnes se forment systématiquement dans des milieux relativement pollués. Nous avons réussi également à mettre en évidence une influence du brouillard sur les propriétés des aérosols. Le brouillard agit comme un "nettoyeur" de l'atmosphère conduisant à un fort dépôt des aérosols en surface et donc à une diminution importante de la concentration en aérosols. La concentration et la taille de l'aérosol sont par conséquent deux propriétés importantes de l'aérosol qui peuvent varier fortement avant la formation du brouillard. La composition chimique de l'aérosol précise également le type d'environnement dans lequel le brouillard peut se former.

Les propriétés des gouttelettes (taille et concentration) ont également été analysées au cours de certains épisodes de brouillards radiatifs. L'application de la théorie de Köhler a permis de discriminer les gouttelettes nuageuses des aérosols humides. Cependant, cette discrimination dépend de la sursaturation qui varie fortement lors du cycle de vie du brouillard. Ainsi, les particules enregistrées par l'OCP (modèle Pallas Welas 2000) qui présentaient systématiquement un mode centré sur un diamètre de $1 \mu m$, représentent essentiellement des aérosols humides non activés. Un deuxième mode centré sur un diamètre de $3 \mu m$ a également été observé. Ce deuxième mode correspond à des gouttelettes. Nous avons observé que ces particules possédaient une très forte variabilité en concentration au cours du cycle de vie du brouillard. En effet, les concentrations en nombre de gouttelettes nuageuses dépendent fortement de la valeur de la sursaturation. Il existe donc une incertitude importante sur la mesure du nombre de gouttelettes nuageuses. De plus, nous avons mis en évidence qu'il fallait utiliser un autre instrument microphysique, un FSSP (Forward Scattering Spectrometer Probe modèle 100) en complément de l'OCP (modèle Pallas Welas 2000), pour mieux caractériser les gouttelettes nuageuses et notamment les gouttelettes de tailles supérieures à $10 \mu m$. L'approche expérimentale seule ne permet pas de documenter ni de quantifier un impact de l'aérosol sur le cycle de vie du brouillard. En effet, il n'est pas possible dans l'évolution observé du système nuageux de différencier l'impact de l'aérosol de celui des autres processus se produisant dans le nuage (évolution du taux de refroidissement et donc de la sursaturation par exemple). C'est pourquoi une approche de modélisation numérique a été utilisée afin de mieux analyser ces différents processus qui interagissent entre eux dans une couche de brouillard.

Dans l'approche de modélisation numérique, la paramétrisation d'activation des aérosols de Abdul-Razzak et Ghan (2004) a été implémentée et validée au cours de ce travail. Cette paramétrisation permet de prendre en compte la distribution granulométrique et la composition chimique des aérosols. Nous avons poursuivi en isolant le processus d'activation des aérosols des autres processus tels que dynamiques, microphysiques, radiatifs prenant place dans le brouillard. Ces études "off-line", utilisant seulement la paramétrisation de l'activation de l'aérosol de Abdul-Razzak et Ghan (2004), ont alors permis d'étudier la sensibilité de l'activation des CCN à différents paramètres clefs tels que le taux de refroidissement, la concentration en nombre d'aérosols, la taille et la composition chimique de l'aérosol. Les résultats de ces simulations "off-line" montrent que le nombre d'aérosols activés pour un taux de refroidissement donné est fortement dépendant de la concentration totale en nombre d'aérosols. Le transfert de l'eau sur les aérosols peut limiter le processus d'activation en milieux fortement pollués. Lorsque la concentration en nombre d'aérosols est élevée, l'augmentation de la sursaturation de la masse d'air est limitée empêchant les particules de franchir leur diamètre critique d'activation. De plus, pour un spectre granulométrique d'aérosol fixé, il est possible de déterminer une valeur critique de la concentration en nombre d'aérosols qui dépend du taux de refroidissement. Tant que la concentration reste plus faible que cette valeur critique, le nombre de CCN activé (nombre de gouttelettes nuageuses) augmente avec le nombre d'aérosols. Le maximum de taux d'activation est atteint à cette valeur critique. Une fois que la concentration dépasse cette valeur critique, le nombre de gouttelettes nuageuses créées diminue lorsque la concentration en nombre d'aérosols augmente.

Des simulations 1-D ont ensuite été réalisées en utilisant le modèle Méso-NH couplé au module d'aérosol ORILAM à travers la paramétrisation de l'activation de l'aérosol de Abdul-Razzak et Ghan (2004) et du schéma microphysique à deux-moments KHKO (Khairoutdinov et Kogan, 2000). Ce couplage permet une représentation réaliste de la nature chimique et de la granulométrie des particules d'aérosols observés. Les simulations 1-D prennent en compte les processus microphysiques, dynamiques et radiatifs se produisant dans le cycle de vie du brouillard en plus des propriétés des aérosols.

L'événement de brouillard radiatif étudié s'est produit lors de la Période d'Observation Intensive 13 de la campagne de mesure ParisFOG. Une première simulation initialisée à l'aide des observations (granulométrie et chimie de l'aérosol, structure verticale de l'atmosphère) a été réalisée représentant la simulation de référence. Des comparaisons entre la simulation 1-D de référence et les observations montrent que le modèle peut simuler cet événement de brouillard de manière réaliste malgré une concentration en nombre de gouttelettes nuageuses légèrement trop élevée lors de la phase de développement. Cependant, une incertitude sur les concentrations en gouttelettes nuageuses mesurées en surface a été mise en évidence lors du traitement des observations et il est donc très difficile de conclure sur ce point.

Des études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols et à la composition chimique ont ensuite été réalisées. Ces simulations ont montré que l'heure d'apparition du brouillard n'est pas influencée par la concentration et la composition chimique de l'aérosol.

Cependant, la concentration en nombre d'aérosols est un paramètre crucial pour les caractéristiques microphysiques du brouillard, ce qui confirme les résultats obtenus lors des

simulations "off-line". Selon le type d'environnement considéré, les propriétés microphysiques et le développement vertical du brouillard sont différents. Pour des environnements fortement pollués (supérieur à $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), la concentration en nombre d'aérosols limite l'augmentation de la sursaturation de la masse d'air. Ceci conduit à un nombre de gouttelettes plus faible mais qui deviennent alors plus grosses augmentant ainsi le dépôt en surface. Ceci conduit également à un nombre d'aérosols humides non activés plus élevé. Dans les environnements pollués (entre 5000 et $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), la fraction en nombre de CCN activés diminue quand le nombre d'aérosols augmente et la quantité d'eau créée au sommet du brouillard diminue. Cette diminution conduit à une réduction du taux de refroidissement durant la phase de développement. Cette interaction entre les processus microphysiques et radiatifs explique également la diminution de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses dans la suite de la phase de développement lorsque la concentration totale en nombre d'aérosols augmente.

Une étude de sensibilité à la composition chimique de l'aérosol montre que le nombre d'aérosols activés est peu influencé par la composition chimique de l'aérosol si le pourcentage de matériel soluble est suffisant (supérieur à 50 %). Dans notre cas, les études de sensibilité sur le type de matière organique (organique primaire, aérosols organiques secondaires hydrophiles ou hydrophobes) ne modifient la fraction d'aérosols activés de moins de 10 %. Néanmoins, une plus forte sensibilité apparaît lorsque l'aérosol n'est composé que de matières hydrophobes capable d'inhiber l'activation. Dans ce cas, on remarque une diminution de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses et de la quantité d'eau condensée.

Enfin, une attention plus particulière a été portée sur la phase de formation d'une couche de brouillard à partir des études de sensibilité à la concentration en nombre d'aérosols faites précédemment. La concentration en nombre d'aérosol est un paramètre important à considérer. Il joue un rôle crucial lors des premières heures du cycle de vie du brouillard car il agit directement sur le nombre de gouttelettes nuageuses et indirectement sur le taux de sédimentation et le contenu en eau liquide. Ce dernier est déterminant pour l'évolution du taux de refroidissement lorsque le brouillard va se développer. Les interactions entre le nombre d'aérosols, le nombre et la taille des gouttelettes nuageuses, le taux de sédimentation, le contenu en eau liquide et le taux de refroidissement se produisant lors de la phase de formation vont piloter l'évolution du brouillard et vont être déterminants pour l'extension verticale de la couche de brouillard.

Pour un environnement fortement pollué (pour une concentration totale en nombre d'aérosols supérieure à $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), le brouillard aura des difficultés à se développer. Au contraire pour des concentrations en nombre d'aérosols plus faibles caractérisant un environnement peu pollué à pollué (de 1000 à $10000 \text{ part.cm}^{-3}$), le brouillard se développera plus facilement durant les toutes premières heures mais sera ensuite limité par le nombre d'aérosols au fur et à mesure que le taux de refroidissement augmentera. De plus, les interactions se produisant entre la concentration totale en nombre d'aérosols, les processus microphysiques et radiatifs seront déterminants pour l'évolution de la couche de brouillard.

6.2 Perspectives

Une des premières limites de ce travail concerne la paramétrisation d'activation des aérosols de Abdul-Razzak et Ghan (2004) qui ne prend pas en compte les limitations cinétiques pouvant expliquer une concentration en nombre de gouttelettes trop importante lors de la phase de développement. En effet, la paramétrisation fait l'hypothèse que les particules sont à l'équilibre avec la concentration de vapeur d'eau ambiante (sursaturée) jusqu'à être activées en CCN. Le nombre de gouttelettes formées peut donc être estimé à partir du nombre de CCN activés à une sursaturation maximale dans le nuage. Le problème de la paramétrisation de la nucléation des gouttelettes nuageuses est alors réduit au problème de la détermination de la sursaturation maximale atteinte dans le nuage. Cependant, Chuang *et al.* (1997) ont montré que sous certaines conditions, les limitations de transfert de masse sur le grossissement des CCN peuvent avoir un impact sur le nombre de gouttelettes nuageuses qui se forment au sein d'un nuage. L'hypothèse que les particules restent en équilibre jusqu'à être activées n'est donc pas toujours appropriée. En comparant le temps du grossissement de la particule avant activation (temps nécessaire pour que celle-ci reste à l'équilibre lorsque la sursaturation ambiante augmente comme décrit par la théorie de Köhler) avec le temps nécessaire au changement de taille de la goutte à partir du grossissement par condensation, Chuang *et al.* (1997) concluent que les particules ayant une sursaturation critique inférieure à une valeur seuil n'ont pas le temps de grossir pour atteindre leur taille critique et donc ne s'activent pas. La prise en compte de la limitation cinétique, dans le calcul de la sursaturation maximale de la masse d'air en considérant le transfert de vapeur d'eau sur les gouttelettes nuageuses déjà formées au sein de la couche de brouillard dans la paramétrisation, pourrait alors améliorer la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses en limitant ainsi l'activation des CCN.

Dans un second temps, nous insistons sur le fait que ce travail de recherche s'est focalisé autour de cas d'étude se produisant en milieu pollué. Il serait donc nécessaire de poursuivre ce travail sur d'autres cas d'étude en sélectionnant des épisodes de brouillards radiatifs se formant dans des environnements spécifiques plus particulièrement en terme de concentrations en nombre et de composition chimique d'aérosol différents. Il est important de souligner également que chaque épisode de brouillard a des caractéristiques physiques différentes. La simulation du brouillard dépend fortement des conditions initiales ainsi que de l'état de l'atmosphère au moment où le brouillard va se former. Il serait donc intéressant de poursuivre cette étude sur d'autres cas/types de brouillard.

L'influence des caractéristiques de l'aérosol sur la phase de dissipation du brouillard radiatif n'a pas été étudiée. La particularité de la phase de dissipation est l'interaction des aérosols et du brouillard avec le rayonnement solaire. Une piste d'étude est de pouvoir prendre en compte les caractéristiques des aérosols interstitiels non-activés en considérant notamment leurs propriétés optiques en fonction de leur composition chimique mais aussi de considérer les aérosols contenus dans les gouttelettes pouvant modifier les propriétés optiques de celles-ci. L'impact de ces aérosols non-activés ainsi que des aérosols contenus dans les gouttelettes sur la phase de dissipation semble nécessaire pour continuer l'étude des interactions entre les aérosols et une couche de brouillard. Cette voie pourra alors compléter ce travail effectué ici et pourra permettre de mieux comprendre les interactions

se produisant en fin de brouillard. Cependant, ceci demandera de forts développements pour aboutir à des paramétrisations capables de bien aborder la phase de dissipation et demandent un travail de longue haleine pour ainsi mieux prévoir la disparition d'une couche de brouillard radiatif. De plus, il sera nécessaire de pouvoir observer et mesurer les propriétés (concentration, taille et chimie) des aérosols interstitiels non-activés, des gouttelettes nuageuses ainsi que celles des aérosols contenus dans les gouttelettes.

Un autre aspect qui n'a pas été traité dans ce travail est l'effet de la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses sur le calcul de la visibilité. Gultepe *et al.* (2006) et Gultepe *et al.* (2007) montrent que la prédiction de la visibilité est directement liée à la concentration en nombre de gouttelettes nuageuses et au contenu en eau liquide, qui dépendent fortement des conditions environnementales. Cependant, compte tenu de leur nombre élevé dans un brouillard radiatif, la concentration en nombre d'aérosols hydratés non activés devra être utilisée dans la détermination des variations de la visibilité au sein des couches de brouillard afin d'établir une paramétrisation utilisable pour des applications opérationnelles.

Enfin, une approche tri-dimensionnelle serait extrêmement intéressante afin d'évaluer l'impact de l'hétérogénéité spatiale de la concentration en nombre et de la composition chimique de l'aérosol sur le cycle de vie du brouillard. Cette étude montre que la concentration totale en nombre d'aérosols est le facteur le plus important qui influencent le plus les propriétés microphysiques d'une couche de brouillard radiatif. Une stratégie rigoureuse doit alors être mise en place afin d'évaluer seulement l'impact de la concentration en nombre d'aérosols. En effet, le brouillard est un phénomène météorologique extrêmement sensible à d'autres paramètres tels que le taux de refroidissement, échanges surface-atmosphère, advection, etc.).

Nous pouvons nous interroger sur la façon de prendre en compte les aérosols dans le cadre d'une approche de prévision numérique. Deux pistes différentes sont proposées selon la vision que l'on veut considérer comme illustrée par la Figure 6.1 :

- Premièrement, pour une prévision à l'échelle de la France de type Arome par exemple, la stratégie possible serait d'utiliser le module d'aérosol ORILAM (ou un autre module d'aérosols comme MOCAGE par exemple) en "off-line". Il fournirait au modèle Méso-NH, tout au long de la simulation 3D, les propriétés de l'aérosol c'est à dire la concentration en nombre N , le rayon R , l'écart-type σ et la composition chimique en tant que forçages externes (Figure 6.1a). L'inconvénient de cette stratégie est l'absence d'interactions de la couche de brouillard sur les propriétés des aérosols. Cette approche ne permettra pas par exemple de simuler l'effet de lessivage des aérosols par le brouillard. Elle permettra cependant de prendre en compte l'effet de la concentration en nombre d'aérosols sur la granulométrie des gouttelettes dans la couche de brouillard et donc sur la visibilité.
- Deuxièmement, une autre stratégie peut être envisagée en considérant une vision à l'échelle locale comme par exemple à l'échelle de la ville, ou d'une région (Figure 6.1b). Cette stratégie permettrait de prendre en compte des effets très locaux en utilisant un cadastre d'émissions d'aérosols. Cette approche pourrait être utile pour effectuer des prévisions pour des sites spécifiques (centrales thermiques, usines

polluantes, etc.). Il serait alors indispensable de prendre en considération l'effet du brouillard sur la pollution à l'échelle locale (blocage des polluants au sein de la couche de brouillard, chimie en phase aqueuse, etc.) Les rétro-actions entre les propriétés de l'aérosol (concentration, taille et composition chimique) et la couche de brouillard doivent donc être considérées dans cette étude. Par conséquent, une interaction complète entre le module ORILAM et le modèle Méso-NH est nécessaire. L'interaction de la couche du brouillard sur les propriétés des aérosols doit être considérée si l'on veut reproduire les réelles caractéristiques atmosphériques après la phase de dissipation du brouillard (flèche rouge sur la figure 6.1b). Il est évident que cette deuxième stratégie sera numériquement plus coûteuse que la première.

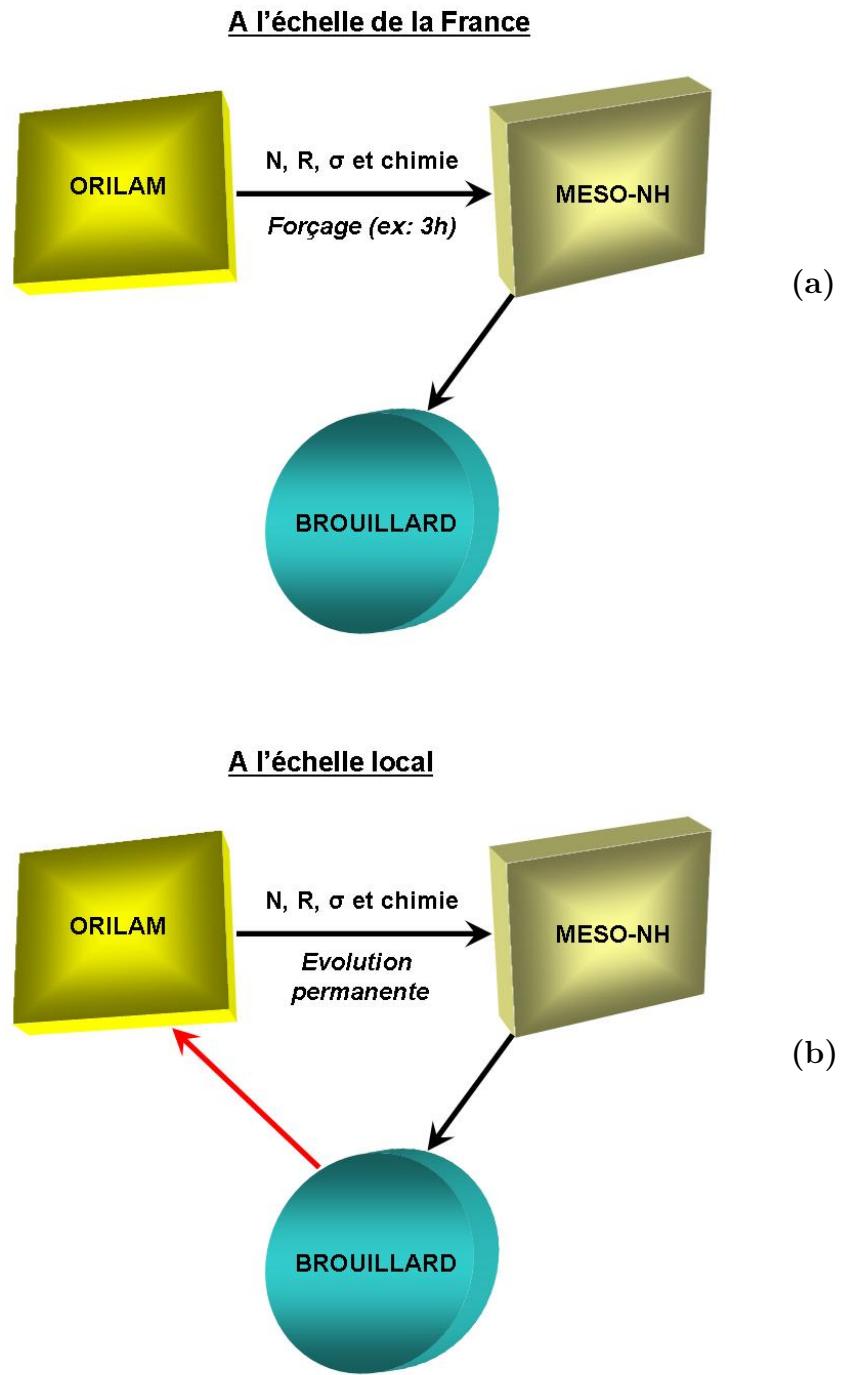


FIGURE 6.1 – Deux stratégies possibles pour la réalisation de simulations tri-dimensionnelles avec la prise en compte des aérosols

Acronymes

Dans l'ordre d'apparition dans le texte...

RAD :	Brouillard radiatif
ADV :	Brouillard d'advection
PCP :	Brouillard précipitant
EVP :	Brouillard d'évaporation
CBL :	Cloud-Base Lowering (brouillard d'affaissement de stratus)
CCN :	Cloud Condensation Nuclei
ORILAM :	ORganic Inorganic Log-normal Aerosol Model
Meso-NH :	Non-Hydrostatic Mesoscale atmospheric Model
BC :	Black Carbon (carbone-suie)
OC :	Carbone Organique
EC :	Carbone Élémentaire
CNRM :	Centre National de Recherches Météorologiques
GAME :	Groupe d'étude de l'Atmosphère MÉtéorologique
ISPL :	Institut Pierre-Simon-Laplace
CEREA :	Centre d'Enseignement et Recherches en Environnement Atmosphérique
LRPC :	Laboratoire Régional des Ponts et Chaussée
POI :	Période d'Observation INTensive
SMPS :	Scanning Mobility Particle Sizer
OCP :	Optical Counter Particle
FSSP :	Forward Scattering Spectrometer Probe
PSL :	Latex polystyrènes
POM :	Particulate Organic Matter
COV :	Composés Organiques Volatils
TKE :	Turbulent Kinetic Energy
LES :	Large-Eddy Simulation
RS81 :	Modèle de turbulence 3D développé par Redelsperger et Sommaria (1981)
KHKO :	Schéma microphysique à deux-moments développé par Khairoutdinov et Kogan (2000)
C2R2 :	Schéma microphysique à deux-moments développé par Cohard et Pinty (2000b); Cohard <i>et al.</i> (2000)
LW :	Long-Wave radiation : rayonnement infrarouge
SW :	Short-Wave radiation : rayonnement solaire
ECMWF :	Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme
RRTM :	Rapid Radiation Transfer Model (Code de transfert radiatif développé par (Morcrette, 1991))
ARM :	Atmospheric Radiation Measurement
LBLRTM :	Line-By-Line Radiation Transfer Model
SOA :	Aerosols Organiques Secondaires
CACM :	Caltech Atmospheric Chemistry Mechanism
MPMPO :	Model to Predict the Multiphase Partitioning of Organics
EQSAM :	Equilibrium Simplified Aerosol Module
SDS :	Sodium Dodecyl Sulfate

Notations

Pour les processus microphysiques...

N_a :	Concentration totale en nombre de particules d'aérosol
r_{ap} :	Rayon de la particule d'aérosol
r_m :	Rayon géométrique moyen du mode d'aérosol considéré
σ :	Dispersion de la distribution du mode d'aérosol considéré
S :	Sursaturation de la masse d'air
A :	Terme de Kelvin intervenant dans l'équation de Köhler
B :	Terme de Raoult intervenant dans l'équation de Köhler
e_{goutte} :	Pression de vapeur autour de la goutte
e_{sat} :	Pression de vapeur saturant autour de la goutte
τ :	Tension de surface de la particule
M_w :	Poids moléculaire de l'eau
ρ_w :	Densité de l'eau
R :	Constante des gaz parfaits
T :	Température ambiante
v :	Nombre d'ions dissociés
ϕ :	Coefficient osmotique (unité dans notre étude)
ρ_{ap} :	Densité de la particule d'aérosol sec
M_{ap} :	Poids moléculaire de la particule d'aérosol sec
r ou r_m :	Rayon de la goutte
a_c :	Rayon critique d'activation des CCN
D_c :	Diamètre critique d'activation des CCN
d_o :	Diamètre sec critique de l'aérosol
S_c :	Sursaturation critique de la particule
ρ_s :	Densité de la fraction soluble
ρ_u :	Densité de la fraction insoluble
ϵ_m :	Fraction en masse de matériel soluble dans une particule d'aérosol mélangée de masse m _{ap} et de rayon r _{ap} ³
B_{sal} :	Contributions des sels inorganiques sur l'hygroscopicité de l'aérosol
B_{sft} :	Contributions des surfactants sur l'hygroscopicité de l'aérosol
S_{max} :	Sursaturation maximale de la masse d'air
r_e :	Rayon effectif de la goutte
$\frac{N}{N_a}$:	Fraction d'aérosols activés
S_m :	Sursaturation critique des particules activables

Bibliographie

H. ABDUL-RAZZAK et S. GHAN : A parameterization of aerosol activation 2. multiple aerosol types. *Journal of Geophysical Research*, 105:6837–6844, 2000.

H. ABDUL-RAZZAK et S. GHAN : Parameterization of the influence of organic surfactants on aerosol activation. *Journal of Geophysical Research*, 109:1–11, 2004.

H. ABDUL-RAZZAK, S. GHAN et C. RIVERA-CARPIO : A parameterization of aerosol activation 1. single aerosol type. *Journal of Geophysical Research*, 103:6123–6131, 1998.

I. ACKERMANN, H. HASS, M. MEMMESHEIMER, A. EBEL, F. BINKOWSKI et U. SHANKAR : Modal aerosol dynamics model for europe : Development and first applications. *Atmospheric Environment*, 32(17):2981–2999, 1998.

E. ANDREWS, A. SAXENA, L. MUSARRA, L. HILDEMANN, P. KAUTRAKIS, P. McMURRY, I. OLMEZ et W. WHITE : Concentration and composition of atmospheric aerosols from the 1995 seavs experiment and a review of the closure between chemical and gravimetric measurements. *Journal of Air Waste Management Association*, 50(5):648–664, 2000.

S. BALLARD, B. GOLDING et R. SMITH : Mesoscale model experimental forecasts of the haar of northeast scotland. *Monthly Weather Review*, 119:2107–2123, 1991.

T. BERGOT et D. GUEDALIA : Numerical forecasting of radiaton fog. part1 : Numerical model and sensitivity tests. *Monthly Weather Review*, 122:1218–1230, 1994.

T. BERGOT, M. HAEFFELIN, L. MUSSON-GENON, M. COLOMB, C. BOITEL, G. BOUHOURS, T. BOURRIANE, D. CARRER, J. CHALLET, P. CHAZETTE, P. DROBINSKI, E. DUPONT, J. DUPONT, T. ELIAS, C. FESQUET, O. GARROUSTE, L. GOMES, A. GUEGIN, F. LAPOUGE, Y. LEFRANC, D. LEGAIN, C. PIETRAS, A. PLANAFATTORI, J. RANGOGNIO, S. REMY, B. ROMAND et X. ZHAND : Paris-fog : des chercheurs dans le brouillard. *La Météorologie*, 62:48–58, 2008.

F. BINKOWSKI et S. ROSELLE : Models-3 community multiscale air quality (cmap) model aerosol component. 1. model description. *Journal of Geophysical Research*, 108(D6):4183, doi :10.1029/2001JD001409, 2003.

F. BINKOWSKI et U. SHANKAR : The regional particulate model 1. model description and preliminary results. *Journal of Geophysical Research*, 100:26,191–26,209, 1995.

A. BOTT, U. SIEVERS et W. ZDUNKOWSKI : A radiation model with a detailed treatment of the interaction between radiative transfert and fog microphysics. *Journal of the Atmosphere Sciences*, 47:2153–2166, 1990.

A. BOTT et TRAUTMANN : Pafog - a new efficient forecast model of radiation fog and low-level stratiform clouds. *Atmospheric Research*, 64:191–203, 2002.

P. BOUGEAULT et P. LACARRÈRE : Parameterization of orography-induced turbulence in a mesobeta-scale model. *Mon. Wea. Rev.*, 117:1872–1890, 1989.

R. BROWN : A numerical study of radiation fog with an explicit formulation of the microphysics. *Q. J. R. Meteorological Society*, 106:781–802, 1980.

R. BROWN et W. ROACH : The physics of radiation fog : Ii : a numerical study. *Q. J. R. Meteorological Society*, 102:335–354, 1976.

R. CHARLSON, J. M. SCHWARTZ, J. HALES, R. CESS, J. COAKLEY, J. HANSEN et H. D.J. : Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science*, 255:423–430, 1992.

P. CHUANG, R. CHARLSON et J. SEINFELD : Kinetic limitations on droplet formation in clouds. *Nature*, 393:594–596, 1997.

J. COHARD et J. PINTY : A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. i : Description and tests. *Q. J. R. Meteorology Society*, 126:1815–1842, 2000a.

J. COHARD et J. PINTY : A comprehensive two-moment warm microphysical bulk scheme. ii : 2d experiments with a non hydrostatic model. *Q. J. R. Meteorology Society*, 126:1843–1859, 2000b.

J. COHARD, J. PINTY et C. BEDOS : Extending twomey's analytical estimate of nucleated cloud droplet concentrations from ccn spectra. *Journal of the Atmosphere Sciences*, 55:3348–3357, 1998.

J. COHARD, J. PINTY et K. SUHRE : On the parameterization of activation spectra from cloud condensation nuclei microphysical properties. *Journal of geophysical Research*, 105:11.753–11.766, 2000.

D. CRONN : *Analysis of atmospheric aerosols by high resolution mass spectrometry*. Thèse de doctorat, University of Washington, 1975.

C. CRUZ et S. PANDIS : A study of the ability of pure secondary organic aerosol to act as cloud condensation nuclei. *Atmospheric Environment*, 31:2205–2214, 1997.

C. CRUZ et S. PANDIS : The effect of organic coatings on the cloud condensation nuclei activation of inorganic atmosphere aerosol. *Journal of geophysical Research*, 103:13,111–13,123, 1998.

J. CUXART, P. BOUGEAULT et J.-L. REDELSPERGER : A turbulence scheme allowing for mesoscale and large-eddy simulations. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 126:1–30, 2000.

J. DEARDORFF : Cloud top entrainment instability. *Journal of Atmospheric Sciences*, 37:131–147, 1980.

P. DECESARI, F. M.C., E. MATTA, L. F., M. MIRCEA, S. FUZZI, E. TAGLIAVINI et J.-P. PUTAUD : Chemical featuires and seasonal variation of fine aerosol water-solble compunds in the po valley, italy. *Atmospheric Environment*, 35:3691–3699, 2001.

R. DELMAS, G. MÉGIE et V.-H. PEUCH : *Physique et chimie de l'atmosphère*. Echelles, 2005.

P. DUYNKERKE : Radiation fog : A comparison of model simulation with detailed observations. *Monthly Weather Review*, 119:324–341, 1991.

C. EICHEL, M. KRAMER, L. SCHULTZ et S. WURZLER : The water-soluble fraction of atmospheric aerosol particles and its influence on cloud microphysics. *Journal of Geophysical Research*, 101(D23):29449–29510, 1996.

M. FACCHINI, S. DECESARI, M. MIRCEA, S. FUZZI et G. LOGLIO : Surface tension of atmospheric wet aerosol and cloud/fog droplets in relation to their organic carbon content and chemical composition. *Atmospheric Research*, 24:4853–4857, 2000.

B. FINLAYSON-PITTS et J. PITTS : *Atmospheric Chemistry*. Jonh Wiley and Sons, New-York, 1986.

Y. FOUQUART et B. BONNEL : Computations of solar heating of the earth's atmosphere : A new parameterization. *Beitr. Phys. Atmosph.*, 53:35–62, 1980.

G. FRANK, B. G. MARTINSSON, S. CEDERFELT, O. H. BERG, E. SWIETLICK, M. WENDISCH, B. YUSKIEWICZ, J. HEITZENBERG, A. WIEDENSOHLER, A. ORSINI, F. STRATMANN, P. LAJ et L. RICCI : Droplet formation and growth in polluted fogs. *Contr. Atmos. Phys.*, 71:65–85, 1998.

S. FRIEDLANDER : *Smoke, Dust, and Haze, Fundamentals of aerosol dynamics*. Oxford University Press, 1977.

G. FU, J. GUO, S. XIE, Y. DUAN et M. ZHANG : Analysis and high-resolution modeling of a dense sea fog event over the yellow sea. *Atmospheric Research*, 81:293–303, 2006.

Q. FU et K.-N. LIOU : On the correlated k-distribution method for radiative transfer in non-homogeneous atmosphere. *Journal of atmospheric Sciences*, 49:2139–2156, 1992.

S. FUZZI, P. LAJ, L. RICCI, G. ORSI, J. HEINTZENBERG, M. WENDISCH, B. YUSKIEWICZ, S. MERTES, D. ORSINI, M. SCHWANZ, A. WIEDENSOHLER, F. STRATMANN, O. BERG, E. SWIETLICKI, F. GÖRAN, B. MARTINSSON, A. GÜNTHER, J. DIERSSEN, D. SCHELL, W. JAESCHKE, A. BERNER, U. DUSEK, Z. GALAMBOS, C. KRUISZ, N. MESFIN, W. WOBROCK, B. ARENDS et H. BRINK : Overview of the po valley fog experiment 1994. *Contr. Atmos. Phys.*, 71:3–19, 1998.

G. GARLAND LALA, E. MANDEL et J. JIUSTO : Numerical evaluation of radiation fog variables. *Journal of Atmospheric Sciences*, 3:720–728, 1975.

O. GEOFFROY : *Modélisation des précipitations dans les nuages de couche limite et paramétrisation pour les modèles de circulation générale*. Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier, 2007.

S. GHAN, C. CHUANG et J. PENNER : A parameterization of cloud droplet nucleation, part i, single aerosol type. *Atmospheric Research*, 30:197–221, 1993.

S. GHAN, C. CHUANG et J. PENNER : A parameterization of cloud droplet nucleation, part ii, multiple aerosol type. *Atmospheric Research*, 36:39–54, 1995.

S. GHAN, G. GUZMAN et H. ABDUL-RAZZAK : Competition between sea salt and sulfate particles as cloud condensation nuclei. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 55:3340–3347, 1998.

P. GILL, T. GRAEDEL et C. WESCHLER : Organic films on atmospheric aerosol particles, fog droplets, cloud droplets, raindrops and snowflakes. *Reviews of Geophysics and Space Physics*, 21:903–920, 1983.

L. GOMES, M. MALLET, J. ROGER et P. DUBUISSON : Effects of the physical and optical properties of urban aerosols measured during the capitoul summer campaign on the local direct radiative forcing. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 102:289–306, 2008.

R. GRIFFIN, D. DABDUB et J. SEINFELD : Secondary organic aerosol : 1. atmospheric chemical mechanism for production of molecular constituents. *Journal of Geophysical Research*, 107(D17):4332, doi :10.1029/2001JD000541, 2002.

R. GRIFFIN, K. NGUYEN, D. DABDUB et J. SEINFELD : A coupled hydrophobic-hydrophilic model for predicting secondary organic aerosol formation. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 44:171–190, 2003.

D. GUEDALIA et T. BERGOT : Numerical forecasting of radiation fog : Part ii : A comparison of model simulation with several observed fog events. *Monthly Weather Review*, 122:1231–1246, 1994.

I. GULTEPE, M. MULLER et Z. BOYBEYI : A new visibility parameterization for warm fog applications in numerical weather prediction models. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 45:1469–1480, 2006.

I. GULTEPE, R. TARDIF, S. C. MICHAELIDES, J. CERMAK, A. BOTT, J. BENDIX, M. D. MULLER, M. PAGOWSKI, B. HANSEN, G. G. ELLROD, W. JACOBS, G. TOTH et S. G. COBER : Fog research : A review of past achievements and future perspectives. *Pure and Applied Geophysics*, 164:1121–1159, 2007.

M. HAEFFELIN, L. BARTHÈS, O. BOCK, C. BOITEL, S. BONY, D. BOUNIOL, H. CHEPFER, M. CHIRIACO, J. CUESTA, J. DELANOË, P. DROBINSKI, J.-L. DUFRESNE, C. FLAMANT, M. GRALL, A. HODZIC, F. HOURDIN, F. LAPOUGE, Y. LEMAÎTRE, A. MATTHIEU, Y. MORILLE, C. NAUD, V. NOËL, W. O'HIROK, J. PELON, C. PIETRAS, A. PROTAT, B. ROMAND, G. SCIALOM et R. VAUTARD : Sirta, a ground-based atmospheric observatory for cloud and aerosol research. *Annales Geophysicae*, 23:253–275, 2005.

F. HERBERT : Aerosol number-size distributions during clear and fog periods in the summer high arctic : 1991, 1996 and 2001. *Meteorol. Rundsch.*, 65:82–87, 1986.

A. HILL et S. DOBBIE : The impact of aerosols on non-precipitating marine stratocumulus ii : the semi-direct effect. *Q. J. R. Meteorology Society*, 33:1155–1165, 2008.

G. HÄNEL : The properties of atmospheric aerosol particles as functions of the relative humidity at thermodynamic equilibrum with the surrounding moist air. *Advanced Geophysic*, 19:73–188, 1976.

R. JAENICKE : Tropospheric aerosol. aerosol-cloud climate interactions. *P. V. Hobbs. San Diego, Academic Press*, 32:1–31, 1993.

J. JOSEPH, W. WISCOMBE et J. WEINMAN : The delta-eddington approximation for radiative flux transfer. *Journal Atmospheric Sciences*, 33:2452–2459, 1976.

C. JUNGE : The size distribution and aging of natural aerosols as determined from electrical and optical data on the atmosphere. *Journal Meterology*, 12:13, 1955.

C. JUNGE : *Air chemistry and radioactivity*. Academic, San Diego, Calif., 1963.

J. JUSTIO et G. LALA : Ccn-supersaturation spectra slopes (k). *Journal of Atmospheric Research*, 15:303–311, 1981.

E. KESSLER : On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulation. *Meteor. Monogr.*, 32:84 pp, 1969.

M. KHAIROUTDINOV et Y. KOGAN : A new cloud parameterization in a large-eddy simulation model of marine stratocumulus. *Mon. Weather Rev.*, 128:229–243, 2000.

Y. KOGAN, M. KHAIROUTDINOV, D. LILLY, Z. KOGAN et Q. LIU : Modeling of stratocumulus cloud layers in a large eddy simulation model with explicit microphysics. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 52:2923–2940, 1995.

H. KÖHLER : The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. *Trans. Faraday Soc.*, 32:1152–1161, 1936.

H. KOKKOLA, S. ROMAKKANIEMI et A. LAAKSONEN : On the formation of radiative fogs under heavily polluted conditions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3:581–589, 2003.

A. KOLMOGOROV : The equations of turbulent motion in an incompressible fluid. *Isvestiya USSR Academic Sciences Physics*, 6:56–58, 1942.

Z. KRIVACSY, G. KISS, B. VARGA, I. GALAMBOS, Z. SARVARI, A. GELENCSER, A. MOLNAR, S. FUZZI, M. FACCHINI, S. ZAPPOLI, A. ANDRACCHIO, T. ALSBERG, H.-C. HANSSON et L. PERSSON : Study of humic-like substances in fog and interstitial aerosol by size-exclusion chromatography and capillary electroporesis. *Atmospheric environment*, 34:4273–4281, 2000.

M. KULMALA, A. LAAKSONEN et L. PIRJOLA : Parameterization for sulfuric acid/water nucleation rates. *Annales Geophysicae*, 103(D7):8301–8307, 1998.

S. KURITA, K. OKADA, H. NARUSE, T. UENO et M. MIKAMI : Structure of a fog in the dissipation stage over land. *Atmospheric environment*, 24A:1473–1486, 1990.

A. LACIS et V. OINAS : A description of the correlated k distribution method for modeling nongray gaseous absorption, thermal emission, and multiple scattering in vertically inhomogeneous atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 96D:9027–9063, 1991.

J. LAFORE, J. STEIN, N. ASENCIO, P. BOUGEAULT, V. DUCROCQ, J. DURON, C. FISCHER, P. HÉREIL, P. MASCART, V. MASSON, J. PINTY, J. REDELSPERGER, E. RICHARD et J. Vilà-Guerau de ARELLANO : The meso-nh atmospheric simulation system. part i : adiabatic formulation and control simulations. *Annales Geophysicae*, 16:90–109, 1998.

W. LANGLOIS : A rapidly convergent procedure for computing large-scale condensation in a dynamical weather model. *Tellus*, 25:86, 1973.

Z. LI, A. WILLIMANS et J. ROOD : Influence of soluble properties on the activation of aerosol particles containing inorganic solute. *Journal of Atmospheric Sciences*, 55:1859–1866, 1998.

B. MASON : *The physics of clouds*. Clarenden press, Oxford, 1971.

V. MASSON : A physically-based scheme for the urban energy balance in atmospheric models. *Boundary Layer Meteorology*, 94:357–397, 2000.

S. METZGER, F. DENTENER, S. PANDIS et J. LELIEVELD : Gas/aerosol partitioning : 1. a computationally efficient model. *Journal of Geophysical Research*, 107(D16):4312, doi :10.1029/2001JD001102, 2002.

M. MEYER et G. GARLAND LALA : Climatological aspects of radiation fog occurrence at albany, new-york. *Journal of Climate*, 3:577–586, 1989.

N. MILES, J. VERLINDE et E. CLOTHIAUX : Cloud droplet size distribution in low-level stratiform cloud. *Montly Weather Review*, 57:295–311, 2000.

M. MIRCEA, M. FACCHINI, S. DECESARI, S. FUZZI et R. CHARLSON : The influence of the organic aerosol component on ccn supersaturation spectra for different aerosol types. *Tellus*, 54B:74–81, 2002.

E. MLAWER, S. TAUBMAN, M. BROWN, M. IACONO et S. CLOUGH : Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres : Rrtm, a validation correlated-k model for the longwave. *Journal of Geophysical Research*, 102D:16662–16682, 1997.

J. MORCRETTE : Radiation and cloud radiative properties in the ecmwf operational weather forecast model. *Journal of Geophysical Research*, 96D:9121–9132, 1991.

L. MUSSON-GENON : Numerical simulations of a fog event with a one-dimensional boundary layer model. *Monthly Weather Review*, 115:592–607, 1987.

M. NAKANISHI : Large-eddy simulation of radiation fog. *Boundary-Layer Meteorology*, 94:461 – 493, 2000.

A. NENES et J. SEINFELD : Parameterization of cloud droplet formation in global climate models. *Journal of Geophysical Research*, 108(D14):4415, doi :10.1029/2002JD002911, 2003.

J. NOILHAN et J. MAHOUF : The isba land surface parameterisation scheme. *Global Planetary Change*, 13:145–159, 1996.

T. NOVAKOV et J. PENNER : Large contribution of organic aerosols to cloud condensation nuclei concentration. *Nature*, 365:823–826, 1993.

M. PAGOWSKI, I. GULTEPE et P. KING : Analysis and modeling of an extremely dense fog event in southern ontario. *Journal of Applied Meteorology*, 43:3–16, 2004.

J. PENNER, R. DICKINSON et C. O’NEILL : Effects of aerosol from biomass burning on the global radiation budget. *Science*, 256:1432–1434, 1992.

M. PETTERS et S. KREIDENWEIS : A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7:1961–1971, 2007.

W. PRESS, S. TEUKOLSKY, W. VETTERLING et B. FLANNERY : *Numerical recipes in FORTRAN : The art of scientific computing*. 2nd Ed. Cambridge University Press, 1992.

H. PRUPPACHER et J. KLETT : *Microphysics of clouds and precipitation*. D. Reidel, Norwell, Mass, 1978.

H. PRUPPACHER et J. KLETT : *Microphysics of Clouds and Precipitation*. Kluwer Acad., Norwell, Mass, 1997.

J.-P. PUTAUD, R. VAN DINGENEN, M. MANGONI, A. VIRKKULA, F. RAES, H. MARING, J. PROSPERO, S. E., O. BERG, R. HILLAMO et T. MAKKELA : Chemical mass closure and assessment of the origin of the submicron aerosol in the marine boundary and the free troposphere at tenerife during ace2. *Tellus*, 52B(2):141–168, 2000.

J.-L. REDELSPERGER et G. SOMMARIA : Méthode de représentation de la turbulence d’échelle inférieur à la maille pour un modèle tri-dimensionnel de convection nuageuse. *Boundary Layer Meteorology*, 21:509–530, 1981.

S. REMY : Amélioration des paramétrisations microphysiques de meso-nh et arome pour le brouillard. Rapport de stage de fin d’études, numéro 1032 à l’Ecole Nationale de la Météorologie de Météo-France, 2006.

W. ROACH, B. BROWN, J. CAUGHEY, J. A. GARLAND et C. READINGS : The physics of radiation fog : I - a field study. *Q.J.R. Meteorological Society*, 102:313–333, 1976.

I. SANDU, J. BRENGUIER, O. GEOFFROY, O. THOURON et V. MASSON : Aerosol impacts on the diurnal cycle of marine stratocumulus. *Journal of Atmospheric Sciences*, 65: 2705–2718, 2008.

P. SAXENA et L. HILDEMANN : Water-soluble organics in atmosperic particles : a critical review of the literature and application of thermodynamics to identify candidate compounds. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 24:57–109, 1996.

P. SAXENA, L. HILDEMANN, P. McMURRY et J. SEINFELD : Organics alter hygroscopic behavior of atmospheric particles. *Journal of Geophysical Research*, 100:18,755–18,770, 1995.

J. SEINFELD et S. PANDIS : *Atmospheric chemistry and physics*. John Wiley, New-York, 1998.

K. SELLEGRI : *Etude du processus d'activation des particules d'aérosol en gouttelettes de nuage : Implication en chimie multiphasées*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier, 2002.

M. SHULMAN, M. JACOBSON, R. CARLSON, R. SYNOVEC et T. YOUNG : Dissolution behavior and surface tension effects of organic compounds in nucleating cloud droplets. *Geophysical Research Letters*, 23:277–280, 1996.

E. SMITH et L. SHI : Surface forcing of the infrared cooling profile over the tibetan plateau. part i : Influence of relative longwave radiative heating at high altitude. *Journal of Atmospheric Sciences*, 49:805–822, 1992.

P. SQUIRES : The microstructure and colloidal stability of warm clouds, ii, the cause of the variations in microstructure. *Tellus*, 10:262–271, 1958.

P. SQUIRES et S. TWOMEY : The relation between cloud droplet spectra and the spectrum of cloud nuclei. *Physics of precipitation, Geophysic Monogr. edited by H. Weickmann, AGU, Washington, D.C.*, 5:211–216, 1960.

R. TARDIF et R. M. RASMUSSEN : Event-based climatology and typology of fog in the new york city region. *Journal of applied meteorology and climatology*, 46:1141–1168, 2007.

D. TEMESI, A. MOLNAR, E. MESZAROS, T. FECZKO, A. GELENCSER, G. KISS et Z. KRI-VACSY : Size resolved chemical mass balance of aerosol particles over rural hungary. *Atmospheric Environment*, 35:4347–4355, 2001.

P. TULET, V. CRASSIER, F. COUSIN, K. SUHRE et R. ROSSET : Orilam, a three-moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model : Online coupling into the meso-nh-c model and validation on the escompte campaign. *Journal of Geophysical Research*, 110:D18201–1/D18201–13, 2005.

P. TULET, A. GRINI, J. GRIFFIN et S. PETITCOL : Orilam-soa : A computationally efficient model for predicting secondary organic aerosols in three-dimensional atmospheric models. *Journal of Geophysical Research*, 111:D23208, doi :10.1029/2006JD007152, 2006.

S. TWOMEY : The nuclei of natural cloud formation. ii. the supersaturation in natural clouds and the variation of cloud droplet concentration. *Geophysical Pure Application*, 43:243–249, 1959.

S. TWOMEY : *Atmospheric Aerosols*. Elsivier, New-York, 1977.

K. Von der EMDE et U. WACKER : Comments on the relationship between aerosol spectra, equilibrium drop size spectra, and ccn spectra. *Beitr. Phys. Atmos.*, 66:157–162, 1993.

J. WALDMAN et M. HOFFMANN : Depositional aspects of pollutant behavior in fog and intercepted clouds. *Sources and Fates of Aquatic Pollutants*, 216:79–129, 1987.

M. WENDISH, S. MERTES, J. HEINTZENBERG, A. WIEDENSOHLER, D. SCHELL, W. WOBROCK, B. FRANK, G. Martinsson, S. FUZZI, G. ORIS, G. KOS et A. BERNER : Drop size distribution and lwc in po valley fog. *Contribution to Atmospheric Physics*, 71/1:87–100, 1998.

E. WHITBY, P. McMURRY, U. SHANKAR et F. BINKOWSKI : Modal aerosol dynamics modeling. *Atmos Res. and Exposure Asses. Lab., U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C.*, 1991.

K. WHITBY : The physical characteristics of sulfur aerosol. *Atmospheric Environment*, 12:135–159, 1978.

G. WILEMSKI : Composition of the critical nucleus in multicomposition and atmospheric aerosol. *Journal of Chemistry and Physics*, 80:1370–1372, 1984.

S. YU : Role of organic acids (formic, acetic, pyruvic and oxalic) in formation of cloud condensation nuclei (ccn) : a review. *Atmospheric Research*, 53:185–217, 2000.

B. YUSKIEWICZ, D. ORSINI, F. STRATMANN, M. WENDISCH, A. WIEDENSOHLER, J. HEINTZENBERG, B. MARTINSSON, F. GÖRAN, W. WOBROCK et D. SCHELL : Changes in submicrometer particles distributions and light scattering during haze and fog events in a highly polluted environment. *Contr. Atmos. Phys.*, 71:33–45, 1998.

S. ZAPPOLI, A. ANDRACCHIO, S. FUZZI, M. FACCHINI, A. GELENCSER, G. KISS, Z. KRI-VACSY, A. MOLNAR, E. MESZAROS, H.-C. HANSSON, K. ROSMAN et Y. ZEBÜHR : Inorganic, organic and macromolecular components of fine aerosol in different areas of europe in relation to their water solubility. *Atmospheric Environment*, 33:2733–2743, 1999.

Y. ZHANG et M. KREIDENWEIS : Stratocumulus processing of gases and cloud condensation nuclei 2. chemistry sensitivity analysis. *Journal of Geophysical Research*, 104:D1316061–16 080, 1999.

TITLE :	Influence of aerosols on the life cycle of radiation fog From observation to modelling
AUTHOR :	Jérôme RANGOGNIO
ADVISOR :	Thierry BERGOT
CO-ADVISOR :	Pierre TULET
SCIENTIFIC FIELD :	Atmospheric Physics
AFFILIATION AND ADDRESS OF LABORATORY :	Centre National de Recherches Météorologiques, Météo-France, 42 Avenue Gaspard Coriolis, 31057, TOULOUSE Cedex 1, France
PLACE OF DEFENSE :	Centre National de Recherches Météorologiques, Météo-France
DATE OF DEFENSE :	14 Décember 2009

ABSTRACT

The role of the atmospheric particles in cloud droplets formation was the object of numerous works, the point of view experimental as numerical. This work is interested in the radiation fog. One of the particularities of radiation fog is its development within the surface boundary layer, directly in contact with the ground, where aerosols concentrations are the highest. To understand the influence of these particles on the fog life cycle, two fields experiments ParisFOG and ToulouseFOG were realized.

After a state of general art on the characteristics of the atmospheric particles, several cases of radiation fogs are presented, by insisting more particularly on the properties of aerosols and cloud droplets measured during these two fields experiments. It seems generally very difficult to feature the physical explications based only on the observations. To achieve this objectif, a series of 1D simulations were preformed with the Meso-NH numerical mesoscale model, in which the ORILAM aerosol scheme was coupled with the two-moment microphysical scheme. The activation scheme used was taken from the work of Abdul-Razzak et Ghan (2004). This parameterization allows to take into account the observed aerosol chemical composition and size distribution. In this approach, the necessity of a joint initiative between the observation and the modelling is clearly appeared.

"Off-line" sensitivity analysis of CCN (Cloud Condensation Nuclei) were performed on number, median diameter and chemical compounds of aerosols using only the activation scheme of Abdul-Razzak et Ghan (2004). During this "off-line" study, the interactions with the other physical processes were not taken into account. Different regimes of CCN activation and a critical value of aerosol number concentration were found. This critical aerosol number corresponds to the maximum of activated cloud droplets for a given cooling rate and given aerosol chemical properties.

1D simulations successfully reproduced the observed temporal evolution of the fog layer during an intensive observation period of the field experiment ParisFOG. These simulations confirmed that the aerosol particle number concentration is a key parameter for the accurate prediction of the microphysical properties of a fog layer and also influences the vertical development of fog. The important of the interaction between microphysical and radiative processes is illustrated, showing how the life cycle of fog is determined by the CCN number concentration and chemical properties.

KEY WORDS :

Aerosol, radiation fog, activation, cloud, field experiment, simulation, cloud condensation nuclei

TITRE :	Impact des aérosols sur le cycle de vie du brouillard De l'observation à la modélisation
AUTEUR :	Jérôme RANGOGNIO
DIRECTEUR DE THÈSE :	Thierry BERGOT
CO-DIRECTEUR DE THÈSE :	Pierre TULET
DISCIPLINE :	Physique de l'Atmosphère
INTITULÉ ET ADRESSE DU LABORATOIRE :	Centre National de Recherches Météorologiques, Météo-France, 42 Avenue Gaspard Coriolis, 31057, TOULOUSE Cedex 1, France
LIEU DE SOUTENANCE :	Centre National de Recherches Météorologiques, Météo-France
DATE DE SOUTENANCE :	14 Décembre 2009

RÉSUMÉ

Le rôle des particules atmosphériques dans la formation des gouttelettes nuageuses a fait l'objet de nombreux travaux, du point de vue expérimental comme numérique. Ce travail s'intéresse au brouillard radiatif. La particularité de ce type de nuage est qu'il se forme dans les basses couches de l'atmosphère, directement en contact avec la surface, là où les concentrations en particules d'aérosols sont les plus élevées. Pour comprendre l'impact de ces particules d'aérosols sur le cycle de vie du brouillard, deux campagnes de mesures ParisFOG et ToulouseFOG ont été réalisées.

Après un état de l'art général sur les caractéristiques des aérosols atmosphériques, plusieurs cas de brouillards radiatifs sont présentés, en insistant plus particulièrement sur les propriétés des aérosols et des gouttelettes nuageuses mesurées au cours de ces deux campagnes de mesures. Il apparaît en général très difficile de mettre en avant des interprétations physiques basées uniquement sur les observations. Pour répondre à cette problématique, des simulations numériques 1-D ont été réalisées en utilisant le modèle météorologique Meso-NH, incluant le module d'aérosol ORILAM couplé à un schéma microphysique nuageux à deux-moments. Le schéma d'activation des aérosols est basé sur les travaux de Abdul-Razzak et Ghan (2004). Ce schéma permet de prendre en compte la nature chimique et la granulométrie des particules d'aérosols observées. Dans cette approche, la nécessité d'une démarche conjointe entre l'observation et la modélisation numérique est clairement apparue.

Des études "off-line" de sensibilité de l'activation des CCN (Cloud Condensation Nuclei) à la concentration en nombre, la taille et la composition chimique des aérosols ont été réalisées en utilisant seulement le schéma d'activation de Abdul-Razzak et Ghan (2004). Les interactions avec les autres processus physiques n'ont pas été pris en compte pour ces études "off-line". Différents régimes de l'activation des CCN et une valeur critique de la concentration en nombre d'aérosols ont été mis en évidence. Ce nombre critique d'aérosols correspond au maximum de gouttelettes formées pour un taux de refroidissement et une composition chimique de l'aérosol donnés.

Des simulations 1-D ont reproduit avec succès l'évolution temporelle de la couche de brouillard observée lors d'une période d'observation intensive de la campagne de mesures ParisFOG. Ces simulations ont confirmé que la concentration en particules d'aérosols est un paramètre clef pour une prévision précise des propriétés microphysiques et du développement vertical du brouillard. Les phases de formation et de développement du brouillard sont déterminées par la concentration en nombre de CCN et par les propriétés chimiques de l'aérosol, ce qui illustre l'importance de l'interaction entre les processus microphysiques et radiatifs.

MOTS CLÉS :

Aerosol, brouillard radiatif, activation, nuage, campagne de mesure, simulation, noyaux de condensation