



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

**Délivré par :**

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

**Discipline ou spécialité :**

Océan, atmosphère, climat

---

**Présentée et soutenue par :**

Mme MARINE CLAEYS

le mercredi 7 décembre 2016

**Titre :**

MODELISATION DES AEROSOLS MARINS ET DE LEUR IMPACT  
RADIATIF DIRECT SUR LE BASSIN MEDITERRANEEN DANS LE  
CADRE DU PROJET CHARMEX

---

**Ecole doctorale :**

Sciences de l'Univers de l'Environnement et de l'Espace (SDUEE)

**Unité de recherche :**

Groupe d'étude de l'Atmosphère Météorologique (CNRM-GAME)

**Directeur(s) de Thèse :**

M. JEAN-LOUIS BRENGUIER

M. GREGORY ROBERTS

**Rapporteurs :**

M. JACQUES PIAZZOLA, UNIVERSITE DE TOULON

M. LAURENT MENUT, ECOLE POLYTECHNIQUE

**Membre(s) du jury :**

Mme CELINE MARI, OBSERVATOIRE MIDI PYRENEES, Président

M. MALIK CHAMI, UNIVERSITE PIERRE ET MARIE CURIE, Membre

Mme KARINE SELLEGRI, UNIVERSITE BLAISE PASCAL, Membre

« Soleil, es-tu content de moi ? Regarde-moi.  
Ma métamorphose va-t-elle assez dans le sens de ta flamme ? »

Michel Tournier - *Vendredi ou les limbes du Pacifique*

## Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier mes encadrants officiels, Greg Roberts et Marc Mallet, et officieux, Pierre Tulet. Merci Greg pour m'avoir emmenée sur le terrain pendant la campagne de mesure ADRIMED, j'ai beaucoup apprécié découvrir le travail de terrain, d'avoir rencontré tout ces chercheurs/ingénieurs/thésards/stagiaires et l'ambiance des campagnes de mesure. Merci Marc pour ton accueil régulier au LA pendant les premières années, et pour ton implication plus qu'importante pendant la rédaction. Enfin, je remercie Pierre pour s'être grandement impliqué dans ma thèse, tout au long de ces trois années, sans obligation. J'espère que la collaboration continuera à La Réunion.

Je voudrais ensuite remercier les membres de mon jury de thèse pour avoir pris le temps d'évaluer le travail de ces trois années, et de s'être déplacés pour la soutenance.

Un grand merci à l'équipe MNPCA au sein de laquelle j'ai passé ces trois ans, et beaucoup de bons moments! En particulier à Sébastien, Laurent et Fred pour leur soutien administratif, et à tout ceux avec qui j'ai partagé les cafés, repas et pauses : Greg, Thierry (pour beaucoup de choses et parmi celles-ci nos nombreuses discussions BD), Brigitte, Jean-Michel (qui a fini par cuisiner ces cookies!), Joël et Eric, Cyrielle, Pierre, Marie, Kevin, Radiance, Grégoire, José, Céline, Pierre-Etienne, Marius, Fayçal, Géraud, Fred, ...

Je remercie toutes les personnes qui ont à un moment ou un autre de cette thèse passé du temps à m'aider, que ce soit au niveau technique (l'équipe CTI), informatique, modélisation (l'équipe Mésio-NH, Christine Lac, Gaëlle Delautier, Jeanine Payart, Valéry Masson, Bastien Sauvage), analyse des données (Thierry Bourrianne entre autre).

Merci à ma famille et mes copains du Nord d'être venu m'écouter. Merci pour le soutien la veille et le jour-même.

Parce qu'une thèse ce n'est pas forcément qu'un sacrifice et que la vie en dehors du travail est au moins aussi importante, merci à tout ceux qui ont partagé mon quotidien, les soirées, les week-ends. Pour commencer, la grosse équipe de thésard (et assimilés) du CNRM/Cerfacs : Adrien, Maxime et Laura pour notamment ces dimanches autour d'un poulet rôti et d'une tarte au citron et ces randos (plus ou moins éprouvantes) dans les Pyrénées; Marie Maz, Hélène Fréville, Pierrick (ce brin! Best frisbee partner), Marie Droudrou, Pierre, Cyrielle, Léa (Un super merci aux artisans du Claeysdo!); Alex, Flore, Vincent Roman (pour les weekends EAR!), Simon, Hélène Dewaele, Jeff, PEB, José, Marius, Kevin, François, Robin, Filippa, Thomas, Gildas, Sebou, ...

Merci aux mazos et en particulier à Anetha et Paulin pour les soirées Catanes, et les petits déj' pré-journées de rédaction, y muchas gracias a Nicolas. Merci aux réunionnais, Brice, Pauline, Kevin, Farid, Thomas et John pour avoir fait de ce séjour un séjour inoubliable !

Merci à tous mes colocs (Thibaut, Thibault, Caro, Peha, Maurane, Valentin, Robin, Vincent) pour tous ces bons moments. Un merci à Erwann, pour les moments passés ensemble et ces week-ends parisiens.

Un merci spécial aux deux meilleurs cobureaux du monde, Marie Mazoyer et Cyrielle Denjean. Merci pour votre aide au niveau scientifique, relectures et disponibilité ! Il est une anthologie que je garderai précieusement ! Marie, pas besoin d'en dire trois tonnes, merci pour tout. Je t'attends de pied ferme pour une revanche à l'extrême coinche à La Réunion ! 116/118 forever.

Et enfin, merci à Adrien Napoly, compagnon de galère de thèse, du premier au dernier jour. Merci pour ton soutien sans faille, les pauses quotidiennes et ton oreille attentive. Je n'aurai pas voulu célébrer la fin sans toi, merci d'avoir accepté de faire jouer Cumbia al Pobre (et merci à Cumbia al Pobre !) pour cette soirée grave cool !

## Résumé long

Les océans couvrant plus de 70 % de la surface de la Terre, les aérosols marins sont une des composantes les plus importantes en terme de concentration atmosphérique. De part leur large gamme de taille, ils interagissent à la fois dans les courtes et grandes longueurs d'onde et impactent ainsi le bilan radiatif à la surface et au sommet de l'atmosphère. Cependant, l'amplitude de cet impact climatique est encore soumise à de nombreuses incertitudes. Actuellement en modélisation, il existe très peu de cas d'études centrés sur les aérosols marins au niveau régional, la plupart étant réalisés au niveau global. Dans ce cadre et afin d'améliorer la connaissance des propriétés des aérosols marins et leurs effets radiatifs dans le bassin Méditerranéen, le projet ChArMEx qui s'est déroulée pendant les étés 2013 et 2014, a permis la mise en place de plusieurs sites de mesures, notamment à Ersa (Cap Corse), ainsi que des observations aéroportées. Les observations réalisées à Ersa ont permis de repérer dans une première étude une période (22-26 juin) influencée majoritairement par les aérosols marins lors de l'été 2013 et de caractériser leurs propriétés physico-chimique, optiques et radiatives. De plus, l'impact de ces aérosols marins a pu être comparé à l'influence d'autres types d'aérosols présents dans le bassin Méditerranéen (poussières désertiques, aérosols anthropiques et issus de feux de biomasse) également observés pendant la campagne de mesure. L'étude combinée de la composition chimique des aérosols marins et des rétro-trajectoires issues du modèle FLEXPART a permis également de mettre en évidence les multiples origines des aérosols marins, avec des émissions locales et des aérosols âgés associés à du transport longue distance. En se basant sur cette analyse, le modèle Méso-NH a été utilisé pour étudier dans un premier temps les émissions, le transport et la concentration atmosphérique des aérosols marins à l'échelle régionale, sur cette période d'étude. Pour cela, un nouveau schéma d'émission basé sur une paramétrisation récente (Ovadnevaite et al., 2014) a été implémenté dans le modèle. Celle-ci dépend, en plus de la vitesse du vent à la surface, de l'état de la mer (représenté par la hauteur des vagues, la température de surface de l'eau ainsi que la salinité). Une première simulation tri-dimensionnelle comprenant trois domaines imbriqués a donc été réalisée sur un domaine méditerranéen du 12 au 27 juin 2013. Les observations réalisées pendant la campagne de mesure ChArMEx-ADRI-MED ont permis d'évaluer la capacité du modèle à simuler la concentration en masse et en nombre des aérosols marins ainsi que leur distribution granulométrique. Un deuxième cas d'étude, se déroulant pendant un cas de mistral/tramontane dans le golfe du Lion en juillet 2014, a également été simulé afin d'évaluer dans un second temps les effets radiatifs directs à la surface et au sommet de l'atmosphère (dans les courtes et grandes longueurs d'ondes). Cette simulation est supportée par des observations aéroportées réalisées dans le cadre de la campagne SAFMED+ ainsi que par des observations satellitaires et de télédétection (réseau AERONET). Ce travail indique un forçage radiatif direct négatif des aérosols marins à la surface, qui est compensé, pour une très faible part, par le forçage radiatif positif exercé dans les grandes longueurs d'ondes.

## English long abstract

As the oceans cover more than 70 % of the surface area of the Earth, marine aerosols compose one the most important aerosol types in term of atmospheric burden. As their size distribution comprises submicron and supermicron ranges, marine aerosol interacts with both shortwave and longwave radiation, leading to a radiative impact at the surface, within the atmosphere, and at the top of the atmosphere. However, the magnitude of its climatic impact is still subject to many uncertainties. Most model studies of marine aerosol emissions and their radiative impacts have focused on the global scale rather than the regional scale. In this context and in order to improve the knowledge of aerosol properties in the Mediterranean, and in particular, their impact on regional climate, the ChArMEx-ADRI-MED field campaign took place in the Western Mediterranean Basin during the summer 2013. Several ground-based stations were operated throughout the Mediterranean Basin, including a station in Erba (Corsica). During the ChArMEx-ADRI-MED observation period, a major influence of marine aerosols was detected (22-26 June), allowing the characterization of their physical, chemical, optical and radiative properties. Moreover, the radiative impact of marine aerosols was compared to the influence of other types of aerosols usually present in the Mediterranean Basin (desert dust, anthropogenic and biomass burning aerosols) also observed during the field campaign. The combined study of the chemical composition of marine aerosols and backward trajectories using the FLEXPART model was used to characterize aging and origins of marine aerosols observed at the Erba Station. For this work, the regional scale Meso-NH model has been modified to study the radiative effect of marine aerosols on the Mediterranean Basin using a new marine aerosol emission scheme based on a recent parameterization (Ovadnevaite et al., 2014). This parameterization depends not only on the wind speed but also on the sea state (represented by wave height, sea surface temperature and the surface water salinity). A three-dimensional simulation including three nested domains was then conducted on a Mediterranean domain from 12 to 27 June 2013. The observations made during the ChArMEx-ADRI-MED field campaign were used to evaluate this parameterization, via comparisons of the modeled and measured mass and number concentration of marine aerosols, as well as their size distribution. Another case study was conducted to assess the shortwave and longwave direct radiative effect, at the surface and top of the atmosphere, of marine aerosol during a period of strong winds ( $> 20 \text{ m s}^{-1}$ ; Mistral) in the Gulf of Lion (Western Mediterranean Basin). This simulation was conducted in conjunction with airborne observations (during the SAFMED+ field campaign), satellite and remote sensing (AERONET network) observations. This work indicates a negative direct radiative effect at the surface, only partly counterbalanced by a positive forcing in the longwave radiation.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1.1	Introduction générale . . . . .	1
1.2	Objectifs de la thèse, méthodologie et plan du manuscrit . . . . .	5
<b>2</b>	<b>Etat de l’art</b>	<b>9</b>
2.1	Les aérosols en milieu méditerranéen . . . . .	9
2.1.1	Caractéristiques du bassin méditerranéen . . . . .	9
2.1.2	Aérosols désertiques . . . . .	11
2.1.3	Aérosols anthropiques . . . . .	14
2.1.4	Aérosols issus des feux de biomasse . . . . .	15
2.2	Aérosols marins - Emissions et paramétrisations . . . . .	17
2.2.1	Formation et émissions des aérosols marins . . . . .	17
2.2.2	Paramétrisations des émissions . . . . .	20
2.3	Aérosols marins - Observations et caractéristiques . . . . .	24
2.3.1	Concentrations en aérosols marins . . . . .	24
2.3.2	Distribution verticale des aérosols marins . . . . .	27
2.3.3	Distribution en taille des aérosols marins . . . . .	28
2.3.4	Vieillessement et hygroscopicité des aérosols marins . . . . .	29
2.3.5	Epaisseur optique et forçage radiatif direct . . . . .	32
<b>3</b>	<b>Caractérisation des aérosols marins primaires pendant la campagne de mesures ChArMEx-ADRIMED</b>	<b>35</b>
3.1	Campagne de mesures ChArMEx-ADRIMED . . . . .	35
3.2	Résumé de l’article . . . . .	37
3.3	Optical, physical and chemical properties of aerosols transported to a coastal site in the Western Mediterranean : Focus on primary marine aerosols . . . . .	38
3.4	Conclusion . . . . .	82
<b>4</b>	<b>MesoNH - Présentation et développements</b>	<b>85</b>
4.1	Le modèle MesoNH . . . . .	86
4.1.1	Schéma de Surface . . . . .	87

4.1.2	Schéma aérosols . . . . .	87
4.1.3	Dépôt des aérosols marins . . . . .	91
4.1.4	Schéma radiatif . . . . .	92
4.2	Développements apportés au modèle . . . . .	92
4.2.1	Schéma d'émission d'Ovadnevaite et al. (2014) . . . . .	92
4.2.2	Croissance hygroscopique des aérosols marins . . . . .	94
4.3	Tests de Sensibilité . . . . .	95
4.3.1	Viscosité cinématique de l'eau . . . . .	95
4.3.2	Contribution de la hauteur significative des vagues et de la vitesse du vent à la fonction source . . . . .	98
4.3.3	Comparaison entre deux schémas d'émission : Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014) . . . . .	102
4.4	Nesting et Forçage . . . . .	107
4.4.1	Grid nesting . . . . .	107
4.4.2	Forçages météorologiques . . . . .	111
4.5	Conclusion . . . . .	112
<b>5</b>	<b>Etude numérique</b>	<b>115</b>
5.1	Présentation des simulations ADRIMED et SAFMED+ . . . . .	116
5.1.1	Configuration des simulations . . . . .	116
5.1.2	Représentation de la dynamique . . . . .	118
5.1.3	Origine des aérosols marins . . . . .	131
5.2	Evaluation du schéma d'émission d'aérosols marins primaires et propriétés physiques (ADRIMED) . . . . .	150
5.2.1	1 <sup>er</sup> épisode (19 juin - 22 juin) . . . . .	150
5.2.2	2 <sup>eme</sup> épisode (22 juin - 26 juin) . . . . .	154
5.3	Etudes des propriétés optiques et effet radiatif direct des aérosols marins . . . . .	160
5.3.1	Caractérisation générale des aérosols marins pendant SAFMED+ . . . . .	160
5.3.2	Extinction du rayonnement . . . . .	164
5.3.3	Epaisseur optique atmosphérique . . . . .	170
5.3.4	Effet radiatif direct . . . . .	179
5.4	Conclusion . . . . .	186
<b>6</b>	<b>Conclusion et perspectives</b>	<b>189</b>
6.1	Conclusion . . . . .	189
6.2	Perspectives . . . . .	192
	<b>Acronymes</b>	<b>195</b>
<b>A</b>	<b>SAFMED</b>	<b>197</b>

B Scores statistiques	199
-----------------------	-----

C Overview de la campagne ADRIMED	201
-----------------------------------	-----

Bibliographie	270
---------------	-----



# Table des figures

1.1	Représentation schématique des effets indirects, directs et semi-directs des aérosols. Extrait de IPCC Fourth Assessment Report (AR4), basé sur Haywood et Boucher (2000). . . . .	2
1.2	Concentrations en aérosols marins normalisées, observées et modélisées, avec 21 paramétrisations différentes, en fonction de la vitesse du vent (jusqu'à $16 \text{ m s}^{-1}$ ). Extrait de Grythe et al. (2014). . . . .	3
2.1	Carte représentant les différents types d'aérosols ainsi que leurs régions sources affectant le bassin méditerranéen. . . . .	10
2.2	Représentation schématique de l'émission des aérosols marins par gouttes de film (d) et gouttes de jet (f). Extrait de Lewis et Schwartz (2004). . . . .	18
2.3	A gauche, photo représentant l'écrêtage au sommet des vagues par vents forts. A droite, photo représentant le déferlement des vagues en zone de surf. . . . .	19
2.4	Dépendance des flux d'émissions à la température de surface de l'eau pour deux paramétrisations (Jaeglé et al. (2011) et Ovadnevaite et al. (2014)) pour une vitesse de vent de $9 \text{ m s}^{-1}$ et un diamètre $D_p=1 \text{ }\mu\text{m}$ . Extrait d'Ovadnevaite et al. (2014). . . . .	23
2.5	Composition chimique de la partie inorganique des aérosols marins. . . . .	30
2.6	Croissance, transformation de phase et évaporation des particules de sels marins (générées à partir d'un échantillon d'eau de mer de l'océan Atlantique) en fonction de l'humidité relative. Le comportement théorique des particules composées de NaCl sont représentées en ligne pointillée. Extrait de Tang (1997) . . . . .	31
3.1	Localisation du site de mesure d'Ersa. Cartes extraites de Google Map. . . . .	36
3.2	Photos du site de mesures installé à Erså. A gauche vue globale du site depuis une éolienne, à droite les containers contenant les instruments avec au premier plan celui de Météo-France et en arrière-plan, celui du LSCE. . . . .	37
4.1	Distribution de taille en nombre (figure du haut), en surface (figure du milieu) et en volume (figure du bas) d'une population d'aérosols (Seinfeld et Pandis, 2016). . . . .	88
4.2	Facteur de croissance (GF) en fonction de l'humidité relative (RH) pour les modes 1 (a), 3 (b) et 5 (c) de la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014). . . . .	95

4.3	Carte représentant la salinité en surface moyenne de la mer Méditerranée pour les années 1980-2012 et les mois d'été (JAS), simulée par le modèle CNRM-RCSM4. Figure extraite de Sevault et al. (2014). . . . .	96
4.4	Viscosité cinématique de l'eau de mer en fonction de la température de l'eau de mer (de 0°C à 40°C) et pour des salinités de 28, 30, 35 et 39 ‰. . . . .	97
4.5	Nombre de Reynolds représenté en fonction de valeurs $u_*$ et $H_w$ croissantes, pour trois viscosités cinématiques différentes. En rouge $\nu(T_{40}, S_{10})$ , en vert $\nu(T_{20}, S_{30})$ et en bleu $\nu(T_0, S_{39})$ . . . . .	97
4.6	Cartes présentant la vitesse et direction du vent à la surface ((a) et (b)) ainsi que la hauteur significative des vagues ((c) et (d)) sur les deux domaines d'étude : Océan Atlantique (22 juin 1800 UTC) et mer Méditerranée (24 juin 0600 UTC). . . . .	99
4.7	Les figures (a) et (b) présentent la hauteur significative des vagues en fonction de la vitesse du vent pour le domaine Océan Atlantique et bassin méditerranéen Ouest respectivement. Les figures (c) et (d) présentent les flux totaux d'émission en fonction de la vitesse du vent pour le domaine Océan Atlantique et bassin méditerranéen Ouest respectivement. Les figures (a) et (c) correspondent au 22 juin 1800 UTC et les figures (b) et (d) au 24 juin 0600 UTC. . . . .	101
4.8	Comparaison entre les flux d'émission en masse modélisés pendant la simulation ADRIMED avec les schémas d'émission Schulz et al. (2004) ((a), (b), (c) et (d)) et Ovadnevaite et al. (2014) ((e), (f), (g) et (h)). Les différences entre les flux d'émissions du schéma de Schulz et al. (2004) et d'Ovadnevaite et al. (2014) sont représentées figures (i), (j), (k) et (l). Les quatre dates représentées sont les 18, 20, 22 et 24 juin 2013 1200 UTC. Les échelles de couleur sont différentes pour les deux simulations et pour la différence des flux d'émission. . . . .	104
4.9	Comparaison entre la concentration en masse des aérosols marins observée à Ersa et la concentration en masse simulée par les deux schémas : Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014) à Ersa. . . . .	106
4.10	Domaines père (a), fils (b) et petit-fils (c) utilisés pour la simulation ADRIMED, de résolution horizontale respective de $15 \times 15$ km, $3 \times 3$ km et $0.5 \times 0.5$ km. . . . .	108
4.11	Comparaison de la représentation de la température (a), de l'humidité relative (b) et de la vitesse (c) et direction du vent (d) à la station d'Ersa pour les simulations à 15 km et 500 m de résolution horizontale avec les observations. . . . .	110
4.12	Température de surface de l'eau utilisée pour la simulation ADRIMED. . . . .	111
5.1	Domaines père, fils et petit-fils utilisés pour la simulation ADRIMED, utilisant une résolution horizontale de $15 \times 15$ km, $3 \times 3$ km et $0.5 \times 0.5$ km, respectivement. . . . .	116

5.2	A gauche, le domaine utilisé pour la simulation SAFMED+, utilisant une résolution horizontale de $5 \text{ km} \times 5 \text{ km}$ . La trajectoire de l'avion est représentée en noir. A droite, la trajectoire de l'avion est représentée en fonction de son altitude. . . . .	118
5.3	Position des trois bouées du réseau Météo-France, situées dans le golfe de Gascogne, le golfe du Lion et proche de la côte d'Azur. . . . .	119
5.4	Cartes issues des analyses ECMWF représentant le vent à 10 m et à 100 m et la hauteur significative des vagues pendant la période ADRIMED. A gauche le vent à 10 m, au centre le vent à 100 m et à droite les hauteurs de vagues. (a), (b) et (c) pour le 13 juin 0000 UTC, (d), (e) et (f) pour le 19 juin 0000 UTC, (g), (h) et (i) pour le 22 juin 0000 UTC et (j), (k) et (l) pour le 26 juin 0000 UTC. Les observations de hauteurs de vagues issues des bouées du réseau Météo-France ont été ajoutées sur les cartes, au niveau du golfe de Gascogne, du golfe du Lion et de la côte d'Azur. . . . .	121
5.5	Vitesse et direction du vent au niveau de la bouée du Golfe du Lion, comparaison entre le modèle et les observations. . . . .	122
5.6	Vitesse et direction du vent à la station d'Ersa, comparaison entre le modèle et les observations. . . . .	123
5.7	Cartes représentant le vent à 10 m à trois dates différentes. A gauche les analyses ECMWF et à droite la sortie du modèle. (a) et (b) pour le 24 juin 0000 UTC, (c) et (d) pour le 24 juin 1200 UTC et (e) et (f) pour le 25 juin 0000 UTC. . . . .	125
5.8	Hauteur significative des vagues aux trois bouées situées dans le Golfe du Lion (a), le Golfe de Gascogne (b) et proche de la côte d'Azur (c). La simulation est représentée en rouge et les observations en bleu. . . . .	126
5.9	Carte représentant l'emplacement des positions choisies dans le panache d'aérosols marins. En blanc : $8.26^\circ\text{N}$ $41.79^\circ\text{E}$ . En rouge : $8.97^\circ\text{N}$ $41.89^\circ\text{E}$ , $\sim 700 \text{ m}$ asl. . . . .	128
5.10	Cartes représentant le vent à 10 m à trois dates différentes : le 8 Juillet à 0600 UTC, en début de simulation, le 10 juillet à 0600 UTC et à 1800 UTC avant et après le vol. A gauche les analyses ECMWF et à droite les simulations MesoNH. . . . .	129
5.11	Concentration en masse des aérosols marins calculée à partir des mesures PILS-IC à Ersa. Les deux périodes où Ersa est impactée par des aérosols marins sont respectivement encadrées en vert et orange. . . . .	132
5.12	Cartes indiquant la position des 3 transects, tracés en rouge. a) Mer d'Alboran - Ersa, b) Golfe de Gascogne - Ersa, c) Golfe du Lion - Ersa. . . . .	133

5.13	Pour quatre dates, les flux d'émission d'aérosols marins ( $\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ), la masse totale ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) à 10 m et la charge massique en aérosols marins sur la colonne atmosphérique sont représentés. (a), (b) et (c) pour le 18 juin à 1500 UTC ; (d), (e) et (f) pour le 19 juin à 1500 UTC ; (g), (h) et (i) pour le 20 juin à 1500 UTC ; (j), (k) et (l) pour le 21 juin à 1500 UTC. Sur les cartes représentant la masse à 10 m, les cercles indiquent les mesures in-situ réalisées à Barcelone ( $\text{PM}_{10}$ ), Ersà ( $\text{PM}_{10}$ ) et à Fos-sur-mer ( $\text{PM}_{2.5}$ ). . . . .	135
5.14	Cartes représentant les flux d'émission d'aérosols marins sur le domaine à 3 km de résolution horizontale du 18 juin 1200 UTC (a) au 22 juin 0000 UTC (h). Un pas de temps de 12 h sépare chaque carte. . . . .	137
5.16	Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect mer d'Alboran-Ersà (détails de la coupe sur la figure 5.15 (a)), au centre les flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 18 juin 1200 UTC au 20 juin 1200 UTC, toutes les 12 h. . . . .	139
5.15	Détail des transects : (a) mer d'Alboran - Ersà, (b) Golfe de Gascogne - Ersà et (c) Golfe du Lion - Ersà . . . . .	139
5.17	Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect golfe de Gascogne-Ersà (détails de la coupe sur la figure 5.15 (b)), au centre le flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 18 juin 1200 UTC au 20 juin 1200 UTC, toutes les 12 h. . . . .	140
5.18	Pour quatre dates, les flux d'émission, la masse totale à 10 m et la charge en aérosols marins sur la colonne atmosphérique sont représentés. (a), (b) et (c) pour le 22 juin à 1200 UTC ; (d), (e) et (f) pour le 23 juin à 1200 UTC ; (g), (h) et (i) pour le 24 juin à 1200 UTC ; (j), (k) et (l) pour le 25 juin à 1200 UTC. Sur les cartes représentant la masse à 10 m, les cercles représentent les mesures in-situ réalisées à Barcelone ( $\text{PM}_{10}$ ) et Ersà ( $\text{PM}_{10}$ ). . . . .	143
5.19	Cartes représentant les flux d'émission sur le domaine à 3 km de résolution horizontale, du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 0000 UTC. Le site de mesure d'Ersà est indiqué par la croix rouge. . . . .	144

5.20	Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect golfe du Lion-Ersa, au centre les flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 1200 UTC, toutes les 12 h. . . . .	146
5.21	Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect golfe de Gascogne-Ersa, au centre les flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 1200 UTC, toutes les 12 h. . . . .	148
5.22	Concentration massique en aérosols marins primaires inorganiques observée à Ersa par le PILS-IC (courbe bleue) et simulée par MesoNH (courbe rouge) pendant l'épisode 1. . . . .	151
5.23	(a) Contribution de chaque mode à la concentration massique totale pendant l'épisode 1. (b) Concentration massique totale. . . . .	152
5.24	(a) Contribution de chaque mode à la concentration en nombre totale pendant l'épisode 1. (b) Concentration en nombre totale modélisée (courbe rouge), et mesurée par l'OPS (courbe bleue marine, $0.3 < d < 10 \mu\text{m}$ ) et par le SMPS (courbe bleu roi, $10 < d < 500 \text{ nm}$ ) (échelle log). (c) Concentration en nombre simulée de chaque mode. (d) Concentration en nombre totale (courbe rouge) et cumulée pour les modes 4 et 5 (courbe orange) par le modèle, concentration mesurée par l'OPS (courbe bleue). . . . .	154
5.25	Comparaison entre la concentration en masse des aérosols marins observée à Ersa et la concentration en masse simulée par le modèle en différents points : (a) Ersa, (b) en Mer à l'ouest de la Corse (MER) et (c) au sud-ouest de la Corse (SOC). Sur la figure (a), en plus des mesures du PILS-IC, les mesures sur filtres dekati sont représentées en traits pointillés noirs. . . . .	155
5.26	Comparaison de la distribution de taille en masse observée par les filtres sur l'impacteur Dekati (courbe bleue) et modélisée à Ersa (courbe rouge) et à la position au SOC (courbe orange). Les résultats du modèles ont été moyennés du 22/06/13 1300 UTC au 25/06/13 1200 UTC pour correspondre à la durée d'échantillonnage des filtres. . . . .	158
5.27	Cartes représentant la concentration en masse et en nombre, ainsi que la charge atmosphérique des aérosols marins simulées à la surface le 10 juillet à 0900 UTC (a), (d) et (i), à 1200 UTC (b), (e) et (j) et à 1517 UTC (c), (f) et (k). . . . .	161

5.28	Cartes représentant le vol instrumenté. A gauche l'altitude (observations, SAFIRE), au milieu et à droite les concentrations en masse et en nombre totales modélisées, respectivement. . . . .	163
5.29	Série temporelle du vol instrumenté représentant la concentration en nombre totale modélisée en rouge et la concentration en nombre mesurée par le GRIMM ( $0.25 < d < 32 \mu\text{m}$ ) en bleu. . . . .	164
5.30	Extinction due aux aérosols marins à trois altitudes différentes dans la CLM, 10 m, 370 m et 1000 m, le 10 juillet 2014 à 1200 UTC. . . . .	165
5.31	Axe du transect "mistral". Ce transect débute à Frioul, passe par Carloforte (Sardaigne) et se termine à Tunis. . . . .	166
5.32	Extinction due aux aérosols marins, hauteur de CLA et humidité relative sur l'axe du transect mistral pour trois dates : 10 juillet 2014 0900 UTC ((a) et (d)), 1200 UTC ((b) et (e)) et 1517 UTC ((c) et (f)). . . . .	166
5.33	(a) Altitude de l'avion pendant le vol, (b) Extinction modélisée à 550 nm due aux aérosols marins primaires . . . . .	167
5.34	(a) Comparaison entre l'extinction des aérosols marins modélisée (courbe rouge), l'extinction totale mesurée par le CAPS et corrigée en fonction de l'humidité relative pour des conditions « océaniques » et « océaniques modifiées ». (b) Humidité relative ambiante pendant le vol. . . . .	169
5.35	Epaisseur optique atmosphérique due aux aérosols marins en début de simulation (08 juillet 1200 UTC et 09 juillet 1200 UTC) et pendant le vol avion (10 juillet 0900 UTC, 10 juillet 1200 UTC, 10 juillet 1500 UTC . . . . .	171
5.36	(a) Altitude de l'avion pendant le vol, (b) AOD des sels marins . . . . .	172
5.37	AOD due aux aérosols marins pour le 10 juillet 2014 : (a) simulation MesoNH, (b) réanalyses MACC, (c) différence MACC-MNH et (d) AERUS-GEO. . . .	173
5.38	Positions des quatre stations AERONET utilisées pour cette étude; Frioul, Porquerolles, Carloforte et Tunis. . . . .	175
5.39	Comparaison de l'AOD (comprenant tous les aérosols) mesurée par le réseau AERONET sur quatre sites (Frioul (a), Porquerolles (b), Carloforte (c) et Tunis (d)) (croix bleues marines) et observée par SEVIRI (AERUS en violet), l'AOD due aux aérosols marins issue des réanalyses MACC (ligne verte) et MesoNH (étoiles rouges) le 10 juillet 2014. L'échelle des valeurs d'AOD est différente sur les quatre figures. . . . .	177
5.40	Distributions de taille issues des inversions AERONET aux trois stations; Frioul (level 1.5, (a)), Porquerolles (level 1.5, (b)) et Tunis (level 2, (c)). . . .	178
5.41	Forçage radiatif direct dans les courtes longueurs d'onde dû aux aérosols marins le 10 juillet 2014 à la surface et au sommet de l'atmosphère : (a) et (d) Simulation Méson-NH ( $\text{TOA} = 12000 \text{ m}$ ), (b) et (e) Simulation MACC, (c) et (f) Différence entre MACC et MesoNH . . . . .	181

---

5.42	Forçages radiatifs directs SW BOA et TOA observés par les stations AERONET (croix bleues) à Frioul (a) et (d), Porquerolles (b) et (e) et Tunis (c) et (f). Les sorties du modèles sont représentées en rouge et les réanalyses MACC en vert. . . . .	183
5.43	ERD LW du aux aérosols marins pour le 10 juillet 2014 : (a) Simulation Méson-NH en BOA et (b) en TOA. . . . .	186
A.1	Comparaison des hauteurs significatives de vagues, de la vitesse et de la direction du vent aux bouées situées dans le golfe du Lion ((a), (b) et (c)), le golfe de Gascogne ((d), (e) et (f)) et au large de la Côte d’Azur ((g), (h) et (i)) entre le modèle et les observations. . . . .	198



# Liste des tableaux

2.1	Coefficients $\alpha$ et $\beta$ des paramétrisations définissant le taux de déferlement en fonction de la vitesse du vent à 10 m. . . . .	21
2.2	Résumé des différentes variables prises en compte dans quelques paramétrisation d'émissions d'aérosols marins. . . . .	23
4.1	Diamètre et écart-type modaux de la distribution de taille lognormale des paramétrisations de Schulz et al. (2004) et Vignati et al. (2001) . . . . .	90
4.2	Diamètre modal, écart-type modal et le flux total en nombre en fonction du nombre de Reynolds ( $Re_{Hw}$ ) de la distribution de taille lognormale utilisés dans la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014). . . . .	93
4.3	Valeurs des constantes valides pour les aérosols marins utilisées pour la croissance hygroscopiques des aérosols selon la paramétrisation de Gerber (1985). . . . .	94
4.4	Viscosité cinématique $\nu_w$ de l'eau de mer pour différentes températures de l'eau de mer ( $T_w$ ) et pour une salinité de $35 \text{ g.kg}^{-1}$ selon la paramétrisation de Sharqawy et al. (2010). . . . .	96
4.5	Statistiques (moyenne, écart-type, valeur maximal) de la vitesse du vent, de la hauteur des vagues et des flux d'émissions sur les deux zones ; océan Atlantique et mer Méditerranée. . . . .	102
4.6	Statistiques (moyenne, écart-type et valeur maximal) des flux d'émissions des deux schémas (Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014)) pour quatre dates : 18, 20, 22 et juillet à 1200 UTC. . . . .	103
4.7	Corrélations et biais entre la concentration en masse mesurée par le PILS-IC à Ersa et les concentrations en masse simulées par le modèle à Ersa avec les schémas d'émission de Schulz et al. (2004) et d'Ovadnevaite et al. (2014) . . . . .	106
4.8	Scores entre la modélisation de la température, de RH, ainsi que de la vitesse et de la direction du vent à Ersa simulées à 15 km et 500m de résolution, en comparaison avec les observations . . . . .	111
5.1	Hauteur significative des vagues, vitesse et direction du vent : Comparaison entre modèle et observations sur quatre sites de mesure ; Golfe du Lion, Golfe de Gascogne, Côte d'Azur et Ersa. . . . .	127

5.2	Hauteur significative des vagues ( $H_w$ ), Vitesse et direction du vent (WS et WD) : Comparaison entre modèle et observations sur trois sites de mesure ; Golfe du Lion, Golfe de Gascogne et Côte d’Azur. . . . .	131
5.3	Récapitulatif des zones d’émission d’aérosols marins pendant les deux épisodes de la simulation ADRIMED. . . . .	150
5.4	Diamètre modal, écart-type modal de la distribution de taille lognormale utilisés dans la paramétrisation de Ovadnevaite et al. (2014). . . . .	151
5.5	Corrélations et biais entre la concentration en masse mesurée par le PILS-IC à Ersa et les concentrations en masse simulées par le modèle à Ersa, pour MER et SOC. . . . .	155
5.6	Diamètres aérodynamiques et géométriques des niveaux de l’impacteur Dekati	156
5.7	Caractéristiques (masse, diamètre modal sec et écart-type) de l’ajustement des modes lognormaux simulés par le modèle à la station d’Ersa et au SOC et mesuré par les filtres Dekati . . . . .	159
5.8	Comparaison entre la concentration en nombre mesurée par le GRIMM ( $0.25 < d < 32 \mu\text{m}$ ) installé dans l’avion et la concentration en nombre en aérosols marins modélisée. . . . .	164
5.9	Coefficients de la paramétrisation du facteur d’accroissement de la diffusion à 550 nm en fonction de l’humidité relative issus de Hervo (2013). . . . .	168
5.10	Scores obtenus entre l’extinction modélisée et observée sans correction de l’humidité relative (CAPS) et avec correction pour des masses d’air océaniques (CAPS O) et océaniques modifiées (CAPS OM). . . . .	170
5.11	Moyenne, écart-type et valeur maximale d’AOD simulée par le modèle, pour les réanalyses MACC et pour les données AERUS. . . . .	174
5.12	Moyenne et écart-type des AOD simulées par le modèle (due aux aérosols marins) et observées par les stations AERONET (tous les aérosols) à quatre stations ; Frioul, Porquerolles, Carloforte et Tunis, ainsi que les observations satellitaires SEVIRI. . . . .	178
5.13	Moyenne et écart-type des forçages radiatifs directs à la surface et au sommet de l’atmosphère simulés par MesoNH et issus des réanalyses MACC (du aux aérosols marins) et observés par les stations AERONET (tout aérosols) à trois stations ; Frioul, Porquerolles et Tunis. . . . .	184
5.14	Moyenne et écart-type des forçages radiatifs directs à la surface et au sommet de l’atmosphère simulés par le modèle (SW (0090 UTC à 1800 UTC pour MesoNH) et LW) et pour les réanalyses MACC (SW). . . . .	185

# Chapitre 1

## Introduction

### Sommaire

1.1	Introduction générale . . . . .	1
1.2	Objectifs de la thèse, méthodologie et plan du manuscrit . . .	5

### 1.1 Introduction générale

Les aérosols marins sont émis dans l'atmosphère par l'interaction entre le vent et les vagues. Etant donné que les océans recouvrent plus de 70 % de la surface de la Terre, ces particules représentent un constituant majeur de l'atmosphère, particulièrement en milieu marin. Au niveau global, les estimations de flux d'émissions en masse les considèrent d'ailleurs comme la plus importante contribution, avec les poussières désertiques (Andreae, 1995; Penner et al., 2001; Andreae et al., 2007). Ces aérosols sont présents sur une majeure partie du globe et leurs émissions sont fortement contraintes par les conditions météorologiques locales et régionales qui induisent une variabilité spatiale et temporelle forte. On rencontre ainsi des variations importantes entre des périodes où l'impact des aérosols marins est très faible, car leurs émissions ainsi que leur charge atmosphérique sont négligeables, en alternance avec des périodes où l'impact des aérosols marins est significatif. Leur spectre de taille est très large et recoupe toutes les gammes de tailles, des plus petites particules (quelques nanomètres) aux plus grossières (quelques dizaines de micromètres) (Resch et al., 1986; Blanchard, 1963; Monahan et al., 1986). Cela implique certaines conséquences. Tout d'abord, les processus de transport et de dépôt des particules sont différents selon leur taille, les plus petites sont perdues par coagulation (mode Aitken), les particules ayant un rayon de quelques centaines de nanomètres (mode d'accumulation) sont particulièrement impactées par le dépôt humide alors que les plus grosses particules (mode grossier) sont essentiellement déposées par sédimentation (Leeuw et al., 2011). Le temps de résidence dans l'atmosphère est donc variable, compris entre quelques secondes pour les plus grosses particules à quelques

jours pour celles du mode d'accumulation. Leur large gamme de taille permet ensuite aux aérosols marins d'interagir directement avec le rayonnement solaire dans les courtes (visible) et grandes (infra-rouge) longueurs d'ondes, contrairement à d'autres types de particules (feux de biomasse, pollution) localisées dans la fraction fine du spectre granulométrique et interagissant majoritairement avec le rayonnement du domaine visible. Dans cette gamme de longueurs d'ondes, les aérosols marins diffusent majoritairement le rayonnement solaire incident et participent ainsi au refroidissement de l'atmosphère (Effet Radiatif Direct, ERD). Ils sont identifiés comme les principaux contributeurs, parmi tous les aérosols, à la diffusion du rayonnement au dessus des océans (Quinn et al., 1996; Li et al., 1996; Murphy et al., 1998; Haywood et al., 1999). Dans les grandes longueurs d'ondes et au sommet de l'atmosphère, l'effet radiatif est positif mais de moindre envergure que celui exercé dans les courtes longueurs d'ondes. En plus de leurs effets radiatifs directs et de par leur taille, les aérosols marins ont aussi la particularité de pouvoir agir en tant que noyau de condensation nuageux (CCN) et d'impacter les propriétés microphysiques des nuages, en modifiant leur albedo (premier effet indirect), et les processus de précipitations (second effet indirect) (O'Dowd et Smith, 1993; Ma et al., 2008; Ovadnevaite et al., 2011; Partanen et al., 2014). Ces différents effets radiatifs sont présentés sur la figure (Fig. 1.1).

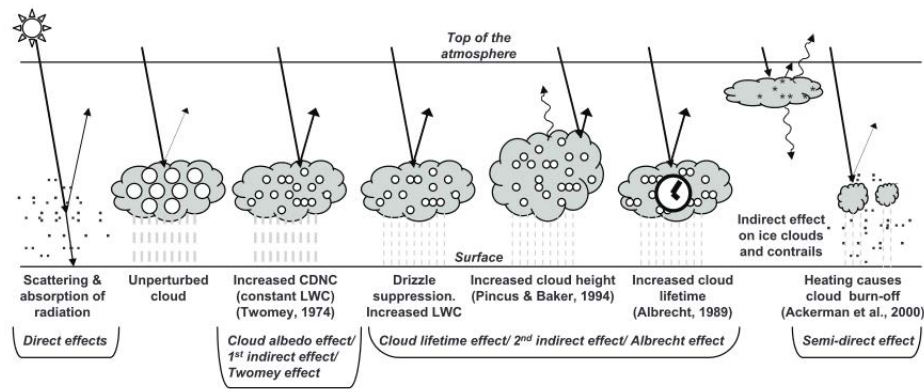


FIGURE 1.1 – Représentation schématique des effets indirects, directs et semi-directs des aérosols. Extrait de IPCC Fourth Assessment Report (AR4), basé sur Haywood et Boucher (2000).

Cependant, à l'heure actuelle, l'amplitude de l'ERD exercé par les aérosols marins est encore soumise à de nombreuses incertitudes (Lewis et Schwartz, 2004; Satheesh et Moorthy, 2005; Gantt et Meskhidze, 2013; Partanen et al., 2014). De plus, ses conséquences sur la dynamique des basses couches de l'atmosphère et du cycle de l'eau sont encore mal estimées.

Au tout premier niveau, cette incertitude provient de la grande difficulté à représenter les émissions des particules marines dans les modèles climatiques. En effet, une mauvaise représentation des émissions, de la concentration atmosphérique des aérosols marins, ainsi que de leur distribution en taille, conduit à une représentation biaisée de leurs différents impacts radiatifs. Il existe à ce jour de nombreuses paramétrisations, dépendant au minimum

de la vitesse du vent (Monahan et al., 1986), et pour certaines prenant en compte d'autres paramètres comme la température de surface de l'eau (SST pour Sea Surface Temperature) (Mårtensson et al., 2003; Jaeglé et al., 2011; Grythe et al., 2014), la salinité (Sofiev et al., 2011) ou l'état de la mer via la hauteur des vagues (Ovadnevaite et al., 2014). Ces paramétrisations ont des domaines de validité variés (spectre de taille, vitesse de vent, SST et salinité, zones côtières ou pleine mer) et induisent des différences significatives sur les émissions et concentrations simulées dans l'atmosphère. Une étude réalisée par Grythe et al. (2014), comparant 21 paramétrisations, a d'ailleurs démontré que les concentrations émises pouvaient différer de plus d'un ordre de grandeur pour les mêmes conditions météorologiques (Fig. 1.2).

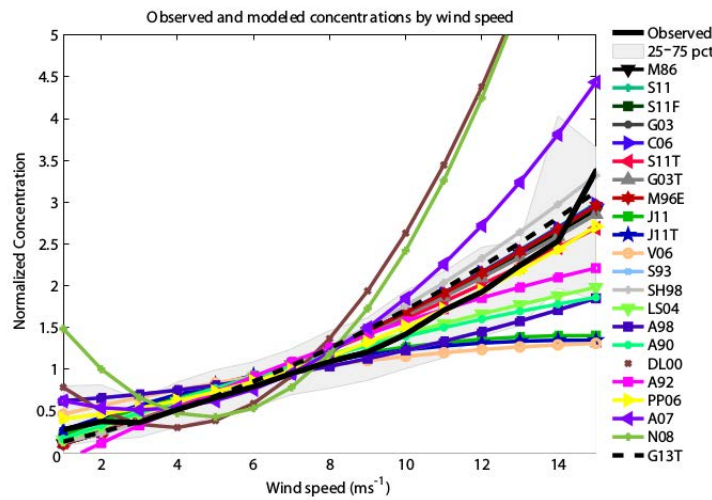


FIGURE 1.2 – Concentrations en aérosols marins normalisées, observées et modélisées, avec 21 paramétrisations différentes, en fonction de la vitesse du vent (jusqu'à  $16 \text{ m s}^{-1}$ ). Extrait de Grythe et al. (2014).

Bien que la vitesse du vent soit l'élément principal affectant l'émission des aérosols marins (Monahan et al., 1986), la dépendance des émissions à la SST a également été identifiée récemment, bien que ses mécanismes ne soient pas encore clairement compris (Mårtensson et al., 2003; Sellegri et al., 2006; Jaeglé et al., 2011; Grythe et al., 2014; Sofiev et al., 2011). Enfin, l'état de la mer est également un facteur important, principalement lié au déferlement des vagues. Celui-ci dépend en partie de la hauteur de ces dernières, qui ne se développent pas à l'identique selon la longueur de fetch (distance en mer au-dessus de laquelle souffle un vent sans rencontrer d'obstacle) ou la vitesse du vent lors de leur formation et de leur parcours. Ainsi, les flux d'émissions sont différents selon que le vent se lève ou décroît (Callaghan et al., 2008; Goddijn-Murphy et al., 2011; Ovadnevaite et al., 2012). Pour une vitesse de vent à  $10 \text{ m}$  donnée, le stress engendré à la surface peut varier d'un facteur 2 (Drennan et al., 2005) et la surface de moutonnement de plus d'un facteur 10 (Lewis et Schwartz, 2004; Anguelova et Webster, 2006). La paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014) provient donc du besoin de représenter les flux d'émissions avec une approche permettant de mieux les

contraindre qu'en utilisant uniquement la vitesse du vent. Les modèles actuels ne prennent pas en compte toutes les variables intervenant (vitesse du vent, état de la mer, longueur de fetch, SST, salinité, bathymétrie, conditions particulières des zones côtières). Cependant, l'augmentation des capacités de calcul, ainsi que le couplage des modèles océaniques et atmosphériques permettra certainement à l'avenir de prendre en compte plus d'interactions entre ces deux milieux (notamment entre le vent à la surface et les vagues). Cela, afin de représenter les émissions d'aérosols marins de la façon la plus réaliste possible.

Une fois émis, les aérosols marins ont des propriétés hygroscopiques fortes et leur diamètre peut doubler en fonction de l'humidité relative (Tang, 1997), modifiant leur capacité d'interaction avec le rayonnement solaire. Ils sont aussi fortement réactifs avec les autres espèces présentes dans l'atmosphère, notamment avec les acides nitriques et sulfuriques qui conduit à une perte de l'espèce chlore en particulier. Leur composition chimique peut donc être modifiée pendant leur transport (Sturges et Shaw, 1993; Johansen et al., 1999; Turšič et al., 2006; Kumar et al., 2008). De plus, les aérosols marins ne sont pas uniquement composés de matière inorganique (à plus de 85 % de chlorure de sodium NaCl) mais également de matière organique (Blanchard, 1964; Hoffman et Duce, 1976), dont la concentration subit des variations saisonnières dues à l'activité biologique de surface (Yoon et al., 2007; Sciare et al., 2009; O'Dowd et al., 2004). La composition chimique variable des aérosols modifie donc leurs propriétés hygroscopiques (Randles et al., 2004; Ovadnevaite et al., 2011) et optiques (Vaishya et al., 2013), ce qui fait l'objet d'études récentes (Lundgren et al., 2013).

Tous ces processus complexes participent à l'incertitude liée à la quantification des différents effets radiatifs des aérosols marins, que ce soit à l'échelle régionale ou globale. Ainsi, afin d'améliorer notre connaissance sur les différentes propriétés physiques et optiques des aérosols marins et leur impact sur le bilan radiatif, la mise en place d'observations pertinentes sur des sites influencés par les émissions marines, associées à des simulations numériques à l'échelle régionale sont nécessaires. Ce travail de thèse s'inscrit dans ce contexte en se focalisant spécifiquement sur le bassin méditerranéen. Il s'est déroulé principalement dans le cadre du programme ChArMEx mis en place pendant les étés 2013 et 2014 (Mallet et al., 2016) et dont l'un des objectifs était de documenter les propriétés physique, chimiques et optiques des aérosols et leur impact sur le bilan radiatif et le climat régional de cette région. En effet, le bassin méditerranéen est considéré comme un carrefour de masses d'air transportant différents types d'aérosols qui se mélangent et interagissent entre eux.

Enfin, il faut mentionner que l'estimation du forçage radiatif des aérosols marins a surtout été étudié jusqu'à présent au niveau global, et très peu d'études ont été réalisées au niveau régional, en particulier en milieu méditerranéen (Lundgren et al., 2013), motivant d'autant plus cette étude.

## 1.2 Objectifs de la thèse, méthodologie et plan du manuscrit

Les principaux objectifs scientifiques de cette thèse sont donc de caractériser les propriétés physiques et optiques des aérosols marins et d'évaluer leur impact radiatif direct (dans les courtes et grandes longueurs d'ondes) à l'échelle du bassin méditerranéen. Ce travail de thèse a la particularité d'associer une analyse de mesures expérimentales à des simulations numériques. Les données in-situ apportant une information au niveau local, les modèles permettent d'étendre les études à une échelle régionale.

### Méthodologie

Afin d'atteindre ces objectifs scientifiques, j'ai donc utilisé dans une première partie les observations in-situ réalisées à la station de mesure d'Ersa (Cap Corse) pendant la campagne de mesures ChArMEx-ADRI-MED. Les concentrations en masse des principaux composants inorganiques des aérosols  $PM_{10}$  ont tout d'abord montré une influence majeure des aérosols marins du 22 au 26 juin 2013. De plus, les observations des propriétés physiques et optiques des particules ont confirmé cette influence marine. Une analyse chimique comparative des instruments PILS-IC et ATOFMS a permis de qualifier le vieillissement des aérosols marins observés à la station d'Ersa. Outre les observations in-situ, j'ai également réalisé différentes simulations à l'aide du modèle FLEXPART qui ont complété cette étude en apportant des informations sur l'origine et le transport des masses d'air. Les observations de télédétection du réseau AERONET ont aussi fourni des informations sur les impacts radiatifs des différents aérosols. Cette première partie m'a donc permis de caractériser les propriétés importantes des aérosols marins et de qualifier une période d'étude intéressante sur laquelle je me suis basée pour effectuer des simulations numériques à l'aide du modèle MesoNH. Les résultats de cette étude ont été valorisés par un article en cours de discussion (Claeys et al., 2016).

Les résultats obtenus dans cette première partie m'ont ensuite permis d'évaluer la capacité du modèle MesoNH à représenter la concentration en masse ainsi que la distribution granulométrique des aérosols marins. Pour cela, j'ai intégré dans le modèle un nouveau schéma d'émission des aérosols marins en me basant sur les travaux d'Ovadnevaite et al. (2014). Le choix de cette paramétrisation utilisée pour ce travail de thèse s'est basé sur les particularités de la zone d'étude, à savoir le bassin méditerranéen, où les longueurs de fetch sont moins importantes que dans les océans et subissent beaucoup de variation selon la direction du vent.

Enfin, dans la dernière partie de mon travail, j'ai réalisé une seconde simulation me permettant d'étudier l'effet radiatif direct des aérosols marins dans des conditions de vents forts, pour un cas d'étude supporté ici par des observations aéroportées (campagne de mesure SAFMED+). L'extinction due aux aérosols marins simulée par le modèle a notamment été

comparée avec les observations de l’extinction du rayonnement, obtenues à bord de l’avion de recherche ATR-42 avant de quantifier l’impact des aérosols marins sur le bilan radiatif à différents niveaux atmosphériques, dans les courtes et grandes longueurs d’ondes.

### Plan du manuscrit

La première partie de ce manuscrit s’attache à établir un état de l’art des propriétés physico-chimiques et optiques ainsi que des impacts radiatifs des différents types d’aérosols que l’on retrouve sur le bassin méditerranéen, en se focalisant plus particulièrement sur les aérosols marins. Les processus liés à l’émission de ces aérosols ainsi que leur représentation dans les modèles numériques sont également présentés.

La deuxième partie de ce manuscrit présente l’étude effectuée à partir des observations in-situ acquises sur le site d’Ersa (Cap Corse) lors de la campagne ChArMEx-ADRIMED (juin et juillet 2013). L’analyse des propriétés physiques, chimiques et optiques des aérosols marins réalisée pendant cette période à la station de mesure d’Ersa est présentée. Le vieillissement des aérosols marins, en relation avec leurs origines, est également analysé. Enfin, une étude comparative focalisée sur les propriétés physiques et optiques ainsi que le forçage radiatif direct exercé dans les courtes longueurs d’ondes, pour différents types d’aérosols (particules d’origines anthropiques et de combustion de feux de biomasse) est exposée dans cette partie.

La troisième partie présente le modèle numérique MesoNH utilisé pour cette étude et plus spécifiquement, les schémas d’aérosols, de rayonnement et de surface ainsi que les développements apportés au modèle en ce qui concerne l’émissions des aérosols marins et leur hygroscopicité. Les tests de sensibilité liés au nouveau schéma d’émission implémenté et testé pour la première fois à l’échelle régionale sur cette région y sont également présentés. Les particularités de la simulation, c’est-à-dire l’imbrication des domaines et les forçages météorologiques utilisés sont ensuite décrites.

Enfin, la quatrième partie présente les résultats des simulations numériques réalisées sur deux situations différentes, pour les cas d’études ADRIMED et SAFMED+. La première simulation bénéficie des mesures in-situ réalisées à la station de mesure d’Ersa comme principale évaluation. La seconde simulation qui se déroule pendant la campagne de mesure SAFMED+ (juillet 2014), pendant un cas de vents forts (mistral/tramontane) est documentée par des mesures réalisées à bord de l’avion de recherche ATR-42. Comme présenté dans cette introduction, la période ADRIMED a principalement permis d’évaluer la nouvelle paramétrisation en terme de propriétés physico-chimiques des aérosols marins. Les propriétés optiques, ainsi que le forçage radiatif direct exercé par ces particules sont analysés principalement pour la période SAFMED+.

Une première sous-partie décrit la configuration de ces deux simulations. La représentation par le modèle de la dynamique régionale et locale ainsi que l’étude de l’origine des aérosols marins transportés dans le bassin méditerranéen, en complément de l’analyse du vieillissement réalisée avec les mesures in-situ pendant la campagne ChArMEx-ADRIMED,

y sont exposées. Une deuxième sous-partie présente l'évaluation de la paramétrisation implémentée dans Meso-NH dans le cas de la simulation ADRIMED, comprenant notamment les périodes où les concentrations en aérosols marins observées à Erso étaient importantes. Cette évaluation du schéma d'émission se base ici essentiellement sur des comparaisons de concentrations et de granulométries en masse. La troisième et dernière sous-partie présente plus spécifiquement l'étude des propriétés optiques (extinction et épaisseur optique) et de l'effet radiatif direct des aérosols marins, pour un cas de vents forts (mistral/tramontane).

Pour finir, dans la dernière partie du manuscrit, les résultats sont résumés, la complémentarité des observations in-situ et de la modélisation numérique ainsi que l'impact radiatif direct des aérosols marins dans le bassin méditerranéen sont discutés et les perspectives de ce travail sont présentées.



# Chapitre 2

## Etat de l'art

### Sommaire

---

<b>2.1 Les aérosols en milieu méditerranéen . . . . .</b>	<b>9</b>
2.1.1 Caractéristiques du bassin méditerranéen . . . . .	9
2.1.2 Aérosols désertiques . . . . .	11
2.1.3 Aérosols anthropiques . . . . .	14
2.1.4 Aérosols issus des feux de biomasse . . . . .	15
<b>2.2 Aérosols marins - Emissions et paramétrisations . . . . .</b>	<b>17</b>
2.2.1 Formation et émissions des aérosols marins . . . . .	17
2.2.2 Paramétrisations des émissions . . . . .	20
<b>2.3 Aérosols marins - Observations et caractéristiques . . . . .</b>	<b>24</b>
2.3.1 Concentrations en aérosols marins . . . . .	24
2.3.2 Distribution verticale des aérosols marins . . . . .	27
2.3.3 Distribution en taille des aérosols marins . . . . .	28
2.3.4 Vieillissement et hygroscopicité des aérosols marins . . . . .	29
2.3.5 Epaisseur optique et forçage radiatif direct . . . . .	32

---

*Dans cette partie sont rappelés les caractéristiques physiques et optiques des principaux types d'aérosols que l'on observe dans le bassin méditerranéen, i.e poussières désertiques, aérosols anthropiques et issus de combustions de biomasse ainsi que leur effet sur le bilan radiatif. Une partie spécifique est dédiée aux aérosols marins, sujet d'étude de ce travail de thèse, en précisant notamment les paramètres intervenant dans leur émission.*

## 2.1 Les aérosols en milieu méditerranéen

### 2.1.1 Caractéristiques du bassin méditerranéen

L'une des particularité forte du bassin méditerranéen est sa diversité importante de types de surface ; surfaces marines, espaces urbanisés, désertiques et forestiers, conduisant à une

hétérogénéité importante en terme de sources d'aérosols. En particulier au sud du bassin, le désert du Sahara est une région émettrice de poussières désertiques impactant le bassin méditerranéen, alors que les côtes du Maghreb sont plutôt industrialisées (Valenzuela et al., 2014). Au nord du bassin, les côtes espagnoles, françaises et italiennes sont fortement anthropisées, avec notamment la zone de l'étang de Berre proche de Marseille (Cachier et al., 2005), la vallée du Rhône ainsi que la vallée du Pô (Biagio et al., 2015). Ces régions sont émettrices d'aérosols primaires et secondaires liés principalement à la pollution. On trouve également des zones forestières dans le sud du continent Européen, en Espagne (Sicard et al., 2012), Portugal et Grèce, qui peuvent être sujettes à des incendies gigantesques, notamment l'été pendant la saison sèche. Ces combustions produisent des aérosols carbonés et organiques. De plus, la mer Méditerranée est émettrice d'aérosols marins. Enfin, le bassin méditerranéen est aussi impacté par le transport longue distance des aérosols émis plusieurs jours auparavant et qui peuvent provenir de toute la surface du globe, en majorité de l'hémisphère Nord, comme montré récemment pour le cas de grands feux Canadiens (Ancellet et al., 2016). Les principales sources d'aérosols dans le bassin méditerranéen sont représentées sur la figure 2.1.

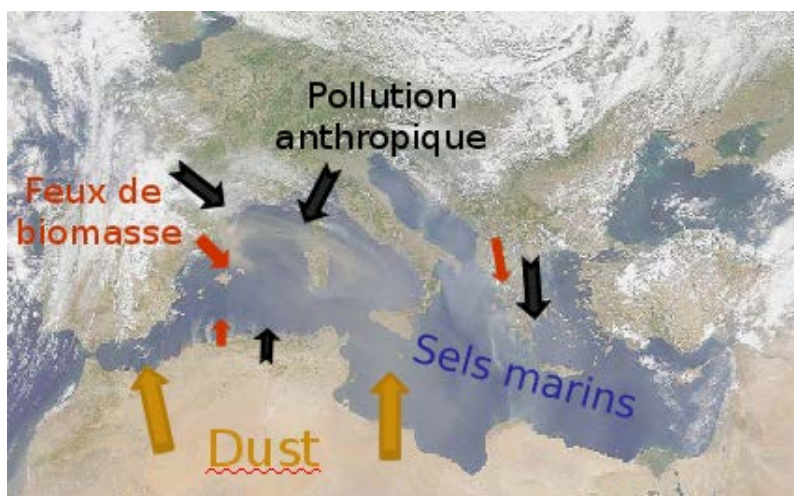


FIGURE 2.1 – Carte représentant les différents types d'aérosols ainsi que leurs régions sources affectant le bassin méditerranéen.

Tous ces aérosols, de part leur charge atmosphérique, leurs propriétés optiques et leur répartition verticale, modifient le budget radiatif du bassin méditerranéen. Tout d'abord, en diminuant la part de rayonnement solaire incident atteignant la surface dans les courtes longueurs d'onde, et d'autre part en augmentant ou diminuant les flux sortants au sommet de l'atmosphère dans les courtes longueurs d'onde en fonction de l'albedo de surface (Nabat et al., 2015b). En absorbant le rayonnement solaire, quelques types d'aérosols peuvent également augmenter localement la température dans certaines couches atmosphériques, modifiant ensuite la dynamique atmosphérique. Ce forçage radiatif direct dû aux aérosols est à l'échelle régionale beaucoup plus important que celui dû aux gaz à effet de serres d'origine

anthropique.

Des études lors de campagnes de mesures ont été réalisées dans le bassin méditerranéen. On peut citer notamment FETCH (Flux, Etats de la mer, Télédétection en Conditions de fetch variable) au printemps 1998 focalisée en partie sur la composition chimique des aérosols marins (Sellegrì et al., 2001) ainsi que la campagne MINOS (Mediterranean Intensive Oxidant Study) réalisée en août 2001 en Crète (Lelieveld et al., 2002) et focalisée sur la contribution anthropique des aérosols observés sur le bassin Est méditerranéen. De nombreuses stations d'observations de l'atmosphère ont également été installées dans cette région, comme à Ersa (Cap Corse, Nicolas (2013)), Finokalya (Crète, Mihalopoulos et al. (1997)), Lampedusa (Di Sarra et al., 2002; Meloni et al., 2004), Barcelone, Montseny (Espagne), Porquerolles (Piazzola et Despiiau, 1997) ou Majorque (Pey et al., 2009).

Plus récemment, le programme de recherche ChArMEx (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment) a été mis en place dans le but de quantifier les impacts radiatifs dus aux aérosols et aux espèces gazeuses ainsi que leurs conséquences sur la dynamique atmosphérique et le climat. Les impacts sur la qualité de l'air du transport longue distance et des échanges verticaux de ces espèces a également été un but important de ce programme. Parmi les différents enjeux de ChArMEx, le projet ADRIMED (Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean region) avait pour objectif de documenter précisément les aérosols en Méditerranée et leurs impacts actuels sur le climat régional. La campagne de mesure regroupait des stations de mesures in-situ au sol installées dans le bassin (Ersa, Lampedusa, Majorque, Minorque), ainsi que des mesures aéroportées réalisées à l'aide d'avions multi-instrumentés, qui apportaient notamment une information sur la distribution verticale des aérosols. Une revue détaillée de la campagne décrite par Mallet et al. (2016) est disponible en annexe C. Un second projet, SAFMED (Secondary Aerosol Formation in the Mediterranean), mené pendant les étés 2013 et 2014 avait quant à lui pour objectif de mieux comprendre l'origine des concentrations importantes en AOS (aérosols organiques secondaires) observées dans le bassin ouest méditerranéen en été.

Ainsi, le bassin méditerranéen est considéré comme un carrefour de masses d'air caractérisées par différents types d'aérosols qui se mélangent et interagissent ensemble, ce qui en fait une zone d'étude des aérosols particulièrement intéressante. Dans la suite de cette partie, les différentes propriétés physiques, optiques et radiatives des aérosols désertiques, anthropiques et issus des feux de biomasse sont présentés.

### 2.1.2 Aérosols désertiques

Les aérosols désertiques sont présents en grande partie au-dessus des déserts mais peuvent aussi être transportés sur de grandes distances. Les situations synoptiques amenant les panaches de poussières désertiques au-dessus du bassin méditerranéen Ouest sont présentées dans Salvador et al. (2014). Ces occurrences se produisent plus généralement au printemps

et en été. L'été, les fortes températures de surface au niveau des zones sources conduisent à l'injection des poussières désertiques en altitude, qui sont ensuite transportées au-dessus de la péninsule ibérique et des îles Baléares, par un système de haute pression situé en Atlantique Nord ou par une combinaison de ce système avec des basses pressions situées à l'ouest de la péninsule ibérique. Au printemps, c'est plutôt le déplacement vers l'est du système de haute pression Nord Atlantique et par un gradient de pression plus important que lors des situations rencontrées l'été, qui va favoriser le transport des aérosols désertiques.

Ces aérosols sont caractérisés par des tailles comprises entre quelques centaines de nanomètres et plusieurs centaines de micromètres, ce qui leur confère la possibilité d'interagir avec les courtes et grandes longueurs d'onde. Ce sont les particules localisées dans le mode d'accumulation et les plus grosses particules qui vont avoir un effet prépondérant sur l'absorption et la diffusion du rayonnement (McConnell et al., 2008; Otto et al., 2009; Sicard et al., 2014).

### **Altitude de transport**

Au niveau du bassin méditerranéen, les panaches de poussières désertiques se situent principalement en altitude et non pas à la surface. Ainsi Hamonou et al. (1999) ont étudié la structure verticale des panaches de poussières désertiques transporté sur le bassin méditerranéen en 1997 à l'aide d'observations LIDAR. La plupart des panaches observés étaient localisés dans la troposphère libre, à des altitudes comprises entre 1.5 et 5 km. On peut aussi noter l'étude de Kushta et al. (2014) qui ont simulé avec le modèle RAMS/ICLAMS un cas d'étude se déroulant du 15 au 19 avril, 2004 et pendant lequel un épisode intense de soulèvement de poussières désertiques atteint le sud de la Grèce. Ce panache de poussières désertiques a été modélisé à une altitude comprise entre 3 et 12 km. En mai 2008, l'étude d'un panache de poussière désertique observé au niveau du nord-ouest de l'Europe par Bègue et al. (2012) a mis en évidence l'altitude de ce panache, comprise entre 2.5 et 5.2 km asl. Enfin, plus récemment, Denjean et al. (2016) indiquent que les panaches de poussières désertiques qui ont été observés pendant la campagne aéroportée ChArMEx-ADRIMED étaient localisés à une altitude comprise entre 1 et 6 km asl.

### **Distribution de taille**

On distingue ici la distribution de taille des poussières désertiques proches de leur source et après quelques jours de transport. Pour la distribution de taille en masse, c'est le mode supermicronique qui est majoritaire, que les mesures soient faites proche des sources ou après transport (Seinfeld et Pandis, 2016; Rosenberg et al., 2014). Récemment, Denjean et al. (2016) ont montré que le mode grossier des poussières désertiques était conservé même

après cinq jours de transport au dessus du bassin méditerranéen, contrairement aux études réalisées au niveau de l’Océan Atlantique. La distribution de taille volumique pour le mode grossier s’étend pour des diamètres effectifs de 3.8 à 14.2  $\mu\text{m}$ .

### Propriétés optiques et radiatives

Les panaches d’aérosols désertiques sont souvent caractérisés par une épaisseur optique forte dans le visible, due à des charges très importantes. Dans le bassin méditerranéen central, à Lampedusa, des épaisseurs optiques atmosphériques (AOD) comprises entre 0.23 et 0.26 (à 500 nm) et un évènement plus important caractérisé par un AOD (à 415 nm) de 0.51 ont été observés (Meloni et al., 2003, 2004). Pour des cas extrêmes, Guerrero-Rascado et al. (2009) rapportent des valeurs d’AOD (à 500 nm) supérieures à 1 pendant un épisode intense au niveau de la péninsule Ibérique en septembre 2007. Di Sarra et al. (2011) indiquent même des valeurs d’AOD (à 500 nm) supérieures à 2 lors d’un évènement intense survenu les 25 et 26 Mars 2010 à Lampedusa. En Turquie, des évènements de dust ont également été observés. Ces intrusions augmentent de manière significative l’AOD, jusqu’à des valeurs atteignant 1.8 (Kubilay et al., 2003). Ainsi, selon l’intensité des évènements de poussières désertiques, l’AOD peut atteindre des valeurs modérées (inférieures à 0.5) mais peut également dépasser l’unité lors de cas extrêmes. Les AOD liées aux poussières désertiques sont les plus importantes sur le bassin comparativement aux autres types de particules.

En outre, les propriétés d’absorption du rayonnement des particules sont renseignées par l’albedo de simple diffusion (SSA pour Single Scattering Albedo en anglais). Les poussières désertiques sont globalement diffusantes avec des SSA observés proches de 1. Cependant, dans le bassin méditerranéen, une grande variabilité a été observée pour différents épisodes de poussières désertiques. En effet, des valeurs de 0.81 (à 415.5 nm) ont été ainsi reportées à Lampedusa (Meloni et al., 2003). Des valeurs encore plus faibles (0.75-0.80) ont été observées sur un site de mesure en altitude, à la station Alpine de Jungfraujoch, lors d’un épisode de poussières désertiques alors qu’habituellement, leur SSA est supérieur à 0.9 sur ce site (Collaud Coen et al., 2004). La large gamme des valeurs de SSA observées lors d’épisodes de poussières désertiques dénote la variabilité des origines de ces poussières ainsi que le possible mélange de ces aérosols avec d’autres espèces.

Enfin, en terme de forçage radiatif direct, les aérosols désertiques ont, comme les aérosols marins, un impact à la fois dans les courtes (SW) et les grandes (LW) longueurs d’onde. Les modèles numériques permettent d’obtenir une estimation au niveau global ou régional. Ainsi, l’effet radiatif direct (ERD) à la surface (BOA) SW mensuel moyen au-dessus de l’Afrique du Nord a ainsi été estimé à environ  $-17 \text{ W m}^{-2}$  à la surface pour la période 2003-2009 (Nabat et al., 2015a). En se basant sur des mesures de télédétection à la surface et par satellite entre 2004 et 2007, Di Biagio et al. (2010) indiquent un ERD SW de  $-69 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de

$-46 \text{ W m}^{-2}$  au sommet de l'atmosphère (TOA) à Lampedusa. Pour un cas extrême (AOD de 1.9) un forçage radiatif instantané (SW) de  $-209 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de  $-116 \text{ W m}^{-2}$  au TOA a été observé (Di Sarra et al., 2011). Dans le spectre LW, l'effet radiatif est moindre mais néanmoins significatif. Les valeurs obtenues par Di Sarra et al. (2011) à Lampedusa pendant un épisode intense en mars 2010, sont en effet de  $+41.5 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de  $+20 \text{ W m}^{-2}$  au TOA qui contrebalancent, en partie, la diminution du rayonnement observé dans les courtes longueurs d'ondes.

### 2.1.3 Aérosols anthropiques

On parle d'aérosols anthropiques pour les particules issues des activités humaines en général. Cela comprend les combustions fossiles, les transports, les industries (Seinfeld et Pandis, 2012). Le pourtour méditerranéen est particulièrement impacté par ces émissions, notamment sur les côtes française, dans la vallée du Rhône, en Italie dans la vallée du Pô, sur les côtes espagnoles et dans les zones urbanisées des côtes d'Afrique du Nord (Cachier et al., 2005; Biagio et al., 2015). De plus, Biagio et al. (2015) ont observé, à l'aide de mesures aéroportée dans le bassin ouest, l'export des aérosols de pollution émis autour du bassin.

Les aérosols anthropiques sont majoritairement composés de nitrate, sulfate, matière organique, carbone-suie et ammonium et on distingue les émissions primaires et secondaires (par conversion gaz-particules). Les aérosols anthropiques regroupent donc une grande diversité de sources (Seinfeld et Pandis, 2016) et révèlent des compositions chimiques ainsi que des propriétés physiques différentes. Ces aérosols font l'objet de recherches en matière de santé publique et plusieurs campagnes de mesures ont été réalisées en milieu urbain telles que CAPITOUL à Toulouse (Masson et al., 2008), ESCOMPTE dans le sud-est de la France (Cros et al., 2004), EUCAARI sur la région parisienne (Kulmala et al., 2009), MINOS en Crète (Lelieveld et al., 2002) ou encore SAFMED dans le bassin méditerranéen ouest (Biagio et al., 2015).

#### Distribution de taille

Contrairement aux aérosols désertiques, les aérosols anthropiques sont principalement localisés dans la fraction fine du spectre granulométrique. Ainsi, la distribution de taille en nombre des aérosols anthropique est dominée par des particules inférieures à 100 nm. La distribution en taille des aérosols anthropiques dépend fortement de la distance à la source. En effet, on observe une concentration très élevée de particules fines très proche des sources qui décroît rapidement en s'éloignant (Seinfeld et Pandis, 2016), principalement dû au phénomène de coagulation. On observe également la formation d'aérosols de pollution secondaires, situés dans le mode ultra-fin (Pandis et al., 1992). En ce qui concerne le bassin méditerranéen ouest, Biagio et al. (2015) ont observé, dans les panaches de pollution, des

aérosols surtout compris dans le mode Aitken ( $0.004\text{--}0.1\ \mu\text{m}$ ) et accumulation ( $0.1\text{--}1.0\ \mu\text{m}$ ). La présence de couches d'aérosols très concentrées (entre  $10\ 000\ \text{cm}^{-3}$  et  $15\ 000\ \text{cm}^{-3}$ ) proches de la surface et en troposphère libre, sont probablement liées à la formation de nouvelles particules.

### Propriétés optiques et radiatives

Dans le bassin méditerranéen, des observations réalisées dans le sud-est de la France (Roger et al., 2006; Mallet et al., 2006), en Espagne (Horvath et al., 2002; Alados-Arboledas et al., 2003), en Italie (Tafuro et al., 2007; Ciardini et al., 2012), en Grèce (Chazette et Liousse, 2001; Gerasopoulos et al., 2003), en Crête (Fotiadi et al., 2006) et dans le bassin ouest (Lyamani et al., 2015) pour des conditions atmosphériques polluées, ont rapporté des AOD faibles ou modérées, comprises entre 0.1 et 0.5 (dans les courtes longueurs d'onde). Ces ordres de grandeur sont souvent moins importants que pour les poussières désertiques ou encore les feux de biomasse. En parallèle, les aérosols anthropiques sont caractérisés par des albedo de simple diffusion (SSA) très variables (entre 0.8 et 1) (Mallet et al., 2003, 2004; Biagio et al., 2015). Cette variabilité est due aux nombreuses sources d'émission sur le bassin (industries, transport, ...) et aux différentes voies et temps de transport des aérosols anthropiques. Par exemple, les particules de carbone-suie ont la capacité d'absorber fortement le rayonnement solaire tandis que les sulfates sont purement diffusant. Tout comme les poussières désertiques, les aérosols anthropiques ont un effet de diminution du rayonnement solaire à la surface significatif. Ainsi leur ERD SW atteint des valeurs comprises entre  $-20$  et  $-30\ \text{W m}^{-2}$  en moyenne journalière. Ces valeurs ont été estimées sur différents sites pollués en Espagne (Almeria), en Italie, en Crête (Finokalia), à Lampedusa et dans le sud-est de la France (Marseille et Toulon) ainsi qu'à Toulouse (Aouizerats et al., 2012).

#### 2.1.4 Aérosols issus des feux de biomasse

Sur le bassin méditerranéen, les épisodes de feux de biomasses sont majoritairement observés en juillet et août, pendant la saison sèche (Pace et al., 2005). Ils peuvent durer jusqu'à quelques semaines, impacter significativement la qualité de l'air et perturber la composition chimique de l'atmosphère sur une échelle globale et inter-annuelle (Wotawa et al., 2001). En particulier, l'été 2007 a subi un des pires incendies des dernières décennies dans le bassin méditerranéen et notamment en Grèce. On détecte également dans le bassin méditerranéen des aérosols provenant de feux de biomasse ayant été transportés sur de longues distances avant d'atteindre la Méditerranée (Formenti et al., 2002; Ancellet et al., 2016). Dans un contexte de réchauffement climatique, avec des périodes estivales plus sèches et des épisodes de canicules plus fréquents selon les scénarios futurs (Meehl et Tebaldi, 2004), les événements de feux de biomasses intenses risquent de s'amplifier. On distingue ces aérosols généralement

à l'aide des observations satellites et de l'utilisation des modèles de rétrotrajectoire (Hysplit (Stein et al., 2015), FLEXPART (Stohl et al., 1998)), ou encore à l'aide de la détection de potassium qui est un traceur de feux de biomasse (Andreae et al., 1998; Pio et al., 2008). Ces aérosols sont aussi caractérisés par une concentration forte en matière organique et carbone élémentaire submicroniques ( $PM_1$ ) (Ripoll et al., 2015). Les feux de forêts constituent en effet une des sources majeure d'aérosols primaires organiques (Sapkota et al., 2005; Ward et Smith, 2005; Zheng et al., 2002).

### Distribution de taille

Concernant la distribution en taille des aérosols issus de feux de biomasse, Clarke et al. (2004) ont montré que les aérosols primaires issus de combustion peuvent représenter jusqu'à 85% de la concentration en nombre d'aérosols dans le mode d'accumulation. De plus, Andreae et Merlet (2001) estiment qu'environ deux tiers des émissions globales en masse dues aux feux de biomasse sont des émissions d'aérosols  $PM_{2.5}$ . Sakamoto et al. (2015) ont également mis en avant que le mode fin pouvait être dominant pour des aérosols fraîchement émis. Les aérosols issus de ces combustions sont par conséquent caractérisés par un coefficient d'angstrom (inversement proportionnel à la taille des aérosols) élevé. Pace et al. (2005) a ainsi observé, à Lampedusa, un coefficient d'angstrom supérieur à 1.5 (calculé à partir des observations d'AOD à 415.6 et 868.7 nm) en été 2003 pendant des épisode de feux de forêt originaires du sud de l'Europe (Portugal, France, Balkans).

### Propriétés optiques et radiatives

Les aérosols issus de combustions de biomasse sont caractérisés par des AOD que l'on peut qualifier d'intermédiaires par rapport aux poussières désertiques ou aux aérosols anthropiques. En effet, des AOD comprises entre 0.3 et 0.8 (à 495.7 nm) ont ainsi été observées à Lampedusa en août 2003 par Pace et al. (2005), correspondant à d'intenses feux qui s'étaient développés pendant cette période dans le sud de l'Europe. Les aérosols issus de ces combustions ont été transportés dans le bassin méditerranéen pendant une vague de chaleur. De même, la campagne de mesure STAAARTE-MED qui s'est déroulé en août 1998, au niveau de la mer Egée, indique un AOD moyen de 0.39 (à 550 nm) caractéristique d'un panache de fumée originaire du Canada (Formenti et al., 2002). Le forçage radiatif à la surface dû au passage de ce panache originaire du Canada a été estimé à  $-60 \text{ W m}^{-2}$  par Formenti et al. (2002). La capacité absorbante forte des aérosols de feux de biomasse conduit à un forçage radiatif atmosphérique important. Ainsi, à Lampedusa, pendant l'épisode de feux de biomasse détecté lors la canicule de l'été 2003, le forçage atmosphérique a été estimé entre  $+22 \text{ W m}^{-2}$  et  $+26 \text{ W m}^{-2}$  pour des valeurs de SSA de 0.89 (à 550 nm). Ainsi, bien que plus rares, les aérosols issus de feux de biomasse dans le bassin méditerranéen peuvent avoir un effet radiatif important, équivalent à des épisodes modérés de poussières désertiques. Cependant,

ils sont essentiellement observés pendant l'été qui est la saison la plus sèche en Méditerranée.

## 2.2 Aérosols marins - Emissions et paramétrisations

On parle de sea spray pour nommer tous les aérosols (primaires) qui sont directement émis par la surface des eaux marines. Cela comprend les aérosols marins inorganiques qui sont l'objet de cette thèse, les aérosols marins organiques ainsi que tous les aérosols qui ont pu se déposer sur la surface de l'eau comme les bactéries. Par abus de langage, dans la suite de ce manuscrit, on parlera d'aérosols marins pour parler des aérosols marins inorganiques primaires.

La partie suivante se focalise sur les principaux processus d'émissions des aérosols marins généralement utilisés dans les modèles numériques.

### 2.2.1 Formation et émissions des aérosols marins

Les embruns sont formés par interaction océan-atmosphère et plus précisément par l'interaction du vent avec les vagues. De petites gouttelettes d'eau sont éjectées de la surface de l'océan et sont ensuite transportées en majorité dans la couche limite marine de l'atmosphère. Une partie de ces gouttelettes peut également être transportée sur de longues distances et rester dans l'atmosphère pendant plusieurs jours (Gong et al., 1997). Les plus grosses gouttelettes vont rester plus proches de leur zones d'émission.

Le vent exerce un stress sur la surface de l'océan, conduisant à la formation et au déferlement de vagues. La force qu'exerce le vent sur la surface de l'océan augmente fortement et non linéairement avec la vitesse du vent (Garratt, 1977). Quand une vague déferle, de l'air est entraîné sous la surface de l'eau et forme, en remontant à la surface sous forme de nuage de bulles, ce qu'on appelle la couverture moutonneuse. Ces bulles sont les premières responsables des émissions d'aérosols marins en éclatant à la surface (Blanchard et Woodcock, 1957).

Trois mécanismes, illustrés sur la figure 2.2, produisent des embruns de tailles différentes.

- Le premier processus produisant des gouttelettes est l'éclatement du film des bulles. Ces particules sont les plus petites produites et leur diamètre est typiquement inférieur à  $2\ \mu\text{m}$ . Ces gouttelettes sont éjectées dans toutes les directions à environ 1 cm de hauteur (Resch et al., 1986) (Fig. 2.2 d).
- Le deuxième processus produit ce qu'on appelle des gouttes de jet. En éclatant, les bulles laissent un vide à la surface qui se remplit par ces gouttelettes qui sont ensuite éjectées verticalement dans l'atmosphère. Ces gouttelettes atteignent des diamètres compris entre 2 et  $20\ \mu\text{m}$  (Blanchard, 1963) (Fig. 2.2 f).

- Enfin, les plus grosses particules sont émises pour des conditions de vents forts ( $> 9 \text{ m s}^{-1}$ ). Elles sont directement arrachées à la crête des vagues par le vent pour former ce qu'on appelle des gouttes d'écrêtage (Monahan et al., 1986) (Fig. 2.3 à gauche).

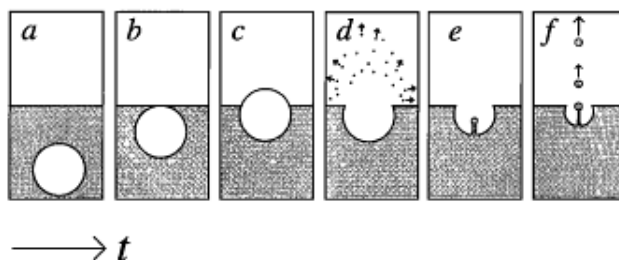


FIGURE 2.2 – Représentation schématique de l'émission des aérosols marins par gouttes de film (d) et gouttes de jet (f). Extrait de Lewis et Schwartz (2004).

Les plus grosses particules, dont le diamètre est supérieur à  $1 \mu\text{m}$ , sont celles qui ont le temps de résidence dans l'atmosphère le plus court, en particulier pour les aérosols géants, d'un diamètre de plusieurs dizaines de micromètres. Elles sont déposées essentiellement par sédimentation. Les particules situées dans le mode d'accumulation (d'un diamètre proche de quelques centaines de nanomètres) vont être essentiellement éliminée par dépôt humide (nuages et précipitations) et sont peu sensibles aux effets de la gravité. Ce sont ces particules qui vont donc avoir le plus long temps de résidence dans l'atmosphère. Les plus petites particules sont plus sensibles à la diffusivité, et d'autant plus que leur diamètre diminue. Elles sont ainsi plus sujettes à l'élimination par coagulation avec d'autres particules et par le dépôt sec (Leeuw et al., 2011).

Ensuite, on peut distinguer le déferlement en pleine mer et le déferlement côtier qui ne sont pas du aux mêmes processus. Sur les zones de surf (région proche de la rive où les vagues déferlent, formant l'écume avec une surface appelée « surf »), le déferlement bathymétrique engendre une zone presque entièrement couverte de moutonnement. La bathymétrie a majoritairement une influence sur les vagues dans les zones de surf, quand la profondeur devient inférieure à la moitié de la longueur d'onde des vagues. La dynamique des vagues en milieu côtier et en zone de surf est particulière, et nous ne nous y pencherons pas dans cette étude, l'émissions des aérosols marins dans le modèle MesoNH ne prenant pas en compte les spécificités de cette zone particulière pour les processus d'émission.

La couche atmosphérique marine s'étendant de la surface de l'eau à plusieurs centaines de mètres, peut être divisée en différentes sous-couches. Elles sont caractérisées par des vitesses de vent, un mélange, de la turbulence ainsi que des gradients de pression différents. La première, appelée sous-couche visqueuse, qui est directement en contact avec la surface, a

une épaisseur d'environ 1 mm. Ensuite, on trouve la couche de surface, qui s'élève jusqu'à une dizaine de mètres au-dessus de la surface. La turbulence, indépendamment de la hauteur, y est le processus dominant. Enfin, la couche d'Ekman s'étend jusqu'au sommet de la couche limite marine. Le mélange vertical des aérosols marins y est principalement entraîné par la convection et les mécanismes turbulents (Lewis et Schwartz, 2004).



FIGURE 2.3 – A gauche, photo représentant l'écrtage au sommet des vagues par vents forts. A droite, photo représentant le déferlement des vagues en zone de surf.

L'état de la mer peut être caractérisé par plusieurs paramètres. La longueur d'onde et l'amplitude des vagues, la profondeur de l'eau, la longueur de fetch, et la stabilité de l'atmosphère qui affecte le transport vertical des aérosols, la température de l'eau et la salinité. La hauteur des vagues ne dépend pas uniquement de la vitesse du vent au moment présent mais également à son histoire (longueur de fetch, vent s'intensifiant ou faiblissant), qui influence l'état des vagues et notamment leurs inclinaisons. Pour pallier à ces effets, Zhao et Toba (2001) ont proposé l'utilisation d'un paramètre sans unité représentant le déferlement des vagues. Ce paramètre, présenté dans la formule 4.18, similaire à un nombre de Reynolds ( $Re_{Hw}$ ), prend en compte la vitesse de friction ( $u_*$ ), la hauteur des vagues induites par le vent ( $H_w$ ) et la viscosité de l'eau ( $\nu_w$ ).

$$Re_{Hw} = \frac{u_* H_w}{\nu_w} \quad (2.1)$$

La température de l'eau (SST) et la salinité sont représentées par la viscosité de l'eau (Sharqawy et al., 2010). La pertinence de ce paramètre représentant le déferlement des vagues a été confirmée par sa bonne corrélation avec la couverture moutonneuse (Goddijn-Murphy et al., 2011).

Les émissions d'aérosols marins dépendent également de la salinité et de la température de surface de l'eau, comme indiqué précédemment. La salinité de l'eau de mer a un effet sur la viscosité de l'eau et sa tension de surface, qui vont à leur tour avoir un effet sur la quantité de couverture moutonneuse ainsi que sur le phénomène d'éclatement des bulles. De plus, la masse de sels marins contenue dans les gouttelettes de « sea spray » et donc la quantité d'aérosols marins émis dans l'atmosphère va directement dépendre de la salinité de

l'eau de mer. Cependant une étude expérimentale réalisée en laboratoire par Zábory et al. (2012) sur l'émission artificielle d'aérosols marins a démontré que l'augmentation de la salinité n'augmentait la quantité (en nombre) d'aérosols marins que jusqu'à un seuil de 18 ‰. La plupart des océans sont donc considérés comme saturés en sels puisque que leur salinité descend rarement en dessous de 30 ‰, ce qui est le cas de la mer Méditerranée dont la salinité varie de 36 à 40 ‰ (Sevault et al., 2014). De plus, une autre étude en laboratoire réalisée par Mårtensson et al. (2003) démontre également que la salinité (testée pour trois valeurs ; 0.0 ‰ (eau pure), 9.2 ‰ et 33.0 ‰) n'affecte pas le nombre de gouttelettes produite mais leur distribution de taille, pour des aérosols dont le diamètre est inférieur à 0.2  $\mu\text{m}$ . Etant donné que cette expérience ne teste pas les valeurs extrêmes de salinité de la mer Méditerranée, on ne peut pas conclure sur son effet sur la distribution de taille en méditerranéen.

La température de l'eau influe quant à elle sur la tension de surface de l'eau, sa densité et sa viscosité. Elle a donc un impact sur la production d'aérosols marins via les bulles et la formation des vagues déferlantes (Thorpe et al., 1992; Callaghan et al., 2012) ainsi que sur la couverture moutonneuse (Lewis et Schwartz, 2004). Des études en laboratoire ont investigué l'effet de la température de surface de l'eau sur la concentration en aérosols marins et leur distribution en taille (Mårtensson et al., 2003; Sellegri et al., 2006; Tyree et al., 2007; Zábory et al., 2012). Cependant, certains résultats sont contradictoires et la question de savoir si les expériences en laboratoire sont vraiment représentatives des émissions en mer n'a pas encore obtenu de consensus (Grythe et al., 2014). Ainsi, Mårtensson et al. (2003) ont observé deux comportements distincts pour l'émission des particules de diamètre inférieur et supérieur à 0.1  $\mu\text{m}$ , pour des températures de -2, 5, 15 et 25 °C. La production des plus grosses particules augmente avec la température alors que les plus petites sont émises plus efficacement quand la température décroît. Sellegri et al. (2006) ont observé une diminution des diamètres de la distribution en taille des aérosols marins pour une température de 4°C comparé à une température de 23°C alors que Zábory et al. (2012) ont observé une diminution de la production d'aérosols marins avec l'augmentation de la température de surface de l'eau ( $-1 < \text{SST} < 5^\circ\text{C}$ ), pour des eaux Arctiques.

### 2.2.2 Paramétrisations des émissions

Les premières paramétrisations d'émissions d'aérosols marins ont été développées en fonction de la surface couverte par le moutonnement. Le taux de déferlement (whitecap fraction en anglais), correspondant au rapport entre la surface moutonneuse et la surface totale. Tout d'abord, Monahan et Muircheartaigh (1980) suggérèrent, à partir d'observations photographiques que le taux de déferlement ( $W_M$ ) dépendait de la vitesse du vent à 10 m ( $U_{10}$ ) selon la loi de puissance représentée par l'équation 2.2 :

$$W_M = \alpha U_{10}^\beta \quad (2.2)$$

Ensuite, un flux d'émission (Equation 2.3) dépendant de la distribution de taille avec cette dépendance à la vitesse du vent à 10 m a été proposé par Monahan et al. (1986).

$$\frac{dF}{dr} = W_M r_{80}^{-3} (1 + 0.057 r_{80}^{1.05}) (10^{1.19 \exp(-B^2)}) \quad (2.3)$$

avec

$$B = \frac{0.38 - \log(r_{80})}{0.65} \quad (2.4)$$

Cette équation étant valide pour des diamètres ( $D_p$ ) allant de 0.1 à 10  $\mu\text{m}$ .

La classe de diamètre pour laquelle les paramétrisations du flux d'aérosols marins sont valides a ensuite évolué pour s'étendre à des gammes de tailles plus fines et plus grossières. Certaines paramétrisations plus récentes basées sur ce taux de déferlement prennent en plus en compte la température de surface de l'eau de mer (SST) et la salinité de l'eau (Sofiev et al., 2011; Gong, 2003; Clarke et al., 2006; Jaeglé et al., 2011), tout en gardant l'expression du taux de déferlement  $W_M$  de Monahan et Muircheartaigh (1980). La température de surface de l'eau ayant une influence sur l'émission des aérosols marins, plusieurs paramétrisations prennent maintenant en compte ce paramètre (Jaeglé et al., 2011; Sofiev et al., 2011; Ovadnevaite et al., 2014).

Jaeglé et al. (2011) a ensuite modifié les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  de ce taux de déferlement tout en gardant la même loi de puissance (2.2). Ces paramètres sont spécifiés dans le tableau 2.1. De plus, ils ont ajouté au flux d'émission un poids en fonction de la température suivant une loi empirique (Eq. 2.5), les émissions d'aérosols marins augmentant avec la température.

$$T_W(T) = 0.3 + 0.1T - 0.0076T^2 + 0.00021T^3 \quad (2.5)$$

	$\alpha$	$\beta$	Référence
$W_M$	$3.84 \cdot 10^{-6}$	3.41	Monahan et Muircheartaigh (1980)
$W_J$	$25.5 \cdot 10^{-6}$	2.07	Jaeglé et al. (2011)

TABLE 2.1 – Coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  des paramétrisations définissant le taux de déferlement en fonction de la vitesse du vent à 10 m.

En parallèle, d'autres paramétrisations ont également été développées, comme celles décrites par Smith et al. (1993) et Smith et Harrison (1998) (Eq. 2.6) non plus basées sur le taux de déferlement  $W_M$  de Monahan et Muircheartaigh (1980) mais sur des mesures issues directement de campagnes de mesure.

$$\frac{dF}{dr_{80}} = 0.2U_{10}^{3.5} \exp(-1.5(\log(\frac{r_{80}}{3}))^2) + 6.8U_{10}^3 \exp(-1(\log(\frac{r_{80}}{30}))^2) \quad (2.6)$$

Dans ce contexte de développement des paramétrisations, la zone de surf a également fait l'objet de travaux spécifiques. Plusieurs paramétrisations prenant en compte cette zone pour l'émission des aérosols marins sont utilisées. Ainsi, Leeuw et al. (2000) proposent une paramétrisation pour les zones de surf pour des vitesses de vent n'excédant pas  $9 \text{ m s}^{-1}$  (Eq. 2.7).

$$\frac{dF}{dD_p} = 4 \exp(0.23U_{10}) U_{10}^{3.41} r_{80}^{-1.5} \quad (2.7)$$

Des paramétrisations d'émissions d'aérosols marins spécifiques au milieu côtier, pour l'utilisation de modèle 1D ont été développées. Piazzola et al. (2002) ont ainsi modifié la paramétrisation de Monahan et al. (1986) pour prendre en compte la dépendance à la longueur de fetch.

Enfin, plusieurs méthodes de mesure ont servi à développer des paramétrisations, comme la mesure de flux sur bateau (Petelski et Piskozub, 2006), (Eq. 2.8)) à partir de mesures d'eddy correlation (Norris et al., 2008). Le détail de ces paramétrisations est disponible dans Grythe et al. (2014).

$$\frac{dF}{d \log D_p} = \frac{70 \exp(0.21U_{10}) r_{80}^3 \exp(-0.58r_{80})}{1 - \exp(-\frac{0.11r_{80}^2}{U_{10}})} \quad (2.8)$$

Enfin, récemment, Ovadnevaite et al. (2014) ont publié une paramétrisation basée à la fois sur des mesures effectuées à la station GAW de Mace Head (Irlande) et sur des mesures issues de campagnes bateau dans l'Atlantique Nord. Cette paramétrisation est dépendante de la vitesse du vent, de la SST et de la hauteur significative des vagues. De plus, contrairement aux paramétrisations existantes, les flux de chaque mode ont une dépendance différente à ces paramètres. Cette paramétrisation a été implémentée dans le modèle MesoNH et est présentée plus en détail dans la section 4.2.1. La dépendance des flux d'émissions à la température de surface de l'eau pour les paramétrisations de Jaeglé et al. (2011) et Ovadnevaite et al. (2014) est illustrée sur la figure 2.4. Pour des températures extrêmes ( $\sim 5^\circ\text{C}$  et  $\sim 30^\circ\text{C}$ ), elles sont identiques alors que pour des températures intermédiaires, la paramétrisation de Jaeglé et al. (2011) émet moins de particules.

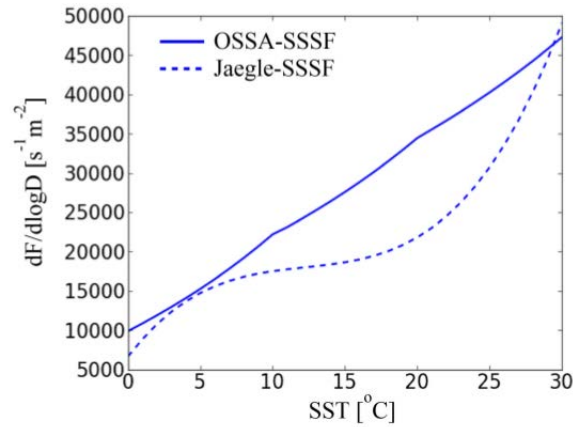


FIGURE 2.4 – Dépendance des flux d’émissions à la température de surface de l’eau pour deux paramétrisations (Jaeglé et al. (2011) et Ovadnevaite et al. (2014)) pour une vitesse de vent de  $9 \text{ m s}^{-1}$  et un diamètre  $D_p=1 \text{ }\mu\text{m}$ . Extrait d’Ovadnevaite et al. (2014).

Paramétrisation	Distribution de taille	Paramètres	Diamètres ( $\mu\text{m}$ )	Vent ( $\text{ms}^{-1}$ )	Référence
MON86	Fonction spécifique	$u_{10}$	$0.3 < r_{80} < 20$	na	Monahan et al. (1986)
VIG01	distribution lognormale	$u_{10}$	$0.04 < r_{80} < 13$	6-17	Vignati et al. (2001)
GON03	3 modes	$u_{10}$	$0.07 < r_{80} < 20$	na	Gong (2003)
SCH04	3 modes	$u_{10}$	$0.28 < D_{masse} < 15.32$	na	Schulz et al. (2004)
CLA06	distribution lognormale	$u_{10}$	$0.01 < D < 8$	na	Clarke et al. (2006)
OVA14	distribution lognormale 5 modes	$u_{10}, H_w, \text{Salinité}, \text{SST}$	$0.015 < D_{dry} < 6$	na	Ovadnevaite et al. (2014)

TABLE 2.2 – Résumé des différentes variables prises en compte dans quelques paramétrisation d’émissions d’aérosols marins.

Il existe donc un nombre important de paramétrisations, dépendant majoritairement de la vitesse du vent à 10 m, avec des facteurs différents. Ces paramétrisations sont basées sur des

observations photographiques, des campagnes de mesures ou des expériences en laboratoire. Certaines paramétrisations prennent en compte, en plus du vent à 10 m, la SST, la salinité ou l'état de la mer. La gamme de validité des diamètres des particules est également différente selon les paramétrisations.

Toutes ces différences ont un impact sur les émissions modélisées. Au premier niveau sur les concentrations en masse et en nombre, ainsi que sur la charge atmosphérique qui vont à leur tour engendrer des différences sur les propriétés radiatives (notamment l'extinction du rayonnement) des aérosols marins. Ainsi, Grythe et al. (2014) a réalisé un travail de comparaison de 21 fonctions sources, avec le modèle FLEXPART, notamment en ce qui concerne leur dépendance au vent et à la SST et leur concentration normalisée en fonction de la vitesse du vent. En résumé, la variabilité entre ces schémas d'émission est importante. En effet, en ce qui concerne la masse annuelle produite par ces différentes paramétrisations, les valeurs sont comprises entre 3 et 70 Pg an<sup>-1</sup> pour les particules dont le diamètre est inférieur à 10  $\mu\text{m}$ . Il existe donc plus d'un ordre de grandeur de différence entre deux paramétrisations pour les mêmes conditions météorologiques (Fig. 1.2).

## 2.3 Aérosols marins - Observations et caractéristiques

### 2.3.1 Concentrations en aérosols marins

#### Concentrations en masse

On distingue la concentration en aérosols marins dans une atmosphère marine, au dessus de leur milieu d'émission et la concentration au-dessus d'une surface continentale qui va être beaucoup moins importante. Les données de concentration en masse ou en nombre des aérosols marins proviennent de mesures expérimentales, sur bateau (Quinn et Bates, 2005; Sellegri et al., 2001) ou sur des stations de mesures, généralement installées sur des sites côtiers, comme à Mace Head en Irlande (O'Connor et al., 2008). En Méditerranée, on peut citer les stations de Finokalia en Crète (Mihalopoulos et al., 1997), Majorque (Pey et al., 2009), Porquerolles (Piazzola et al., 2012) ou plus récemment pendant la campagne de mesure ChArMEx à Erba en Corse, et sur l'île de Lampedusa. En général, la concentration en aérosols marins est plus importante en hiver qu'en été, à cause des conditions météorologiques (vents plus forts) qui amènent à plus d'émissions (Tsyro et al., 2011).

Les campagnes expérimentales en bateau ont permis de documenter des zones en pleine mer où peu ou pas de mesures avaient été réalisées. Ainsi la campagne ACE 1 qui s'est déroulée dans l'océan Austral, au sud de l'Australie en novembre et décembre 1995 indique une concentration en masse moyenne pour les aérosols marins ( $[\text{Cl}^-] + 1.47 \times [\text{Na}^+]$ ) sub-microniques et supermicroniques de 0.6 et 10  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour des vitesses de vent assez fortes (10 m s<sup>-1</sup> en moyenne). Ces résultats sont résumés par Quinn et Bates (2005).

La concentration en masse d'aérosols marins observées aux Canaries est d'un ordre de grandeur supérieure par rapport aux autres stations de mesures ibériques (Querol et al., 2008). La concentration moyenne annuelle mesurée dans les îles Canaries (Las Palmas (20 m asl)) est de  $11.5 \mu\text{g m}^{-3}$  sur la période 1999-2005. De même, des concentrations en  $\text{Na}^+$  et  $\text{Cl}^-$  de 9.7 et  $16.3 \mu\text{g m}^{-3}$  respectivement ont été observées sur la côte ouest du Portugal, à Areao (Pio et al., 1996). Ces concentrations correspondent à des périodes où les masses d'air étaient purement maritimes, d'origine océanique, et ces données sont issues de campagnes de mesures intensives en 1993 et 1994. Ces données sont des moyennes, les concentrations peuvent donc atteindre des valeurs plus élevées sur certaines périodes. Pour compléter ces informations avec des mesures réalisées dans d'autres parties du globe, la concentration en aérosols marins  $\text{PM}_{10}$  ( $1.17 \times ([\text{Na}^+] + [\text{Cl}^-])$ ) moyennée sur la période 2007-2011 était de  $11.11 \pm 5.5 \mu\text{g m}^{-3}$  à l'Observatoire Atmosphérique du Cap Vert (10 m asl) (Fomba et al., 2014) et la concentration maximale de  $40 \mu\text{g m}^{-3}$ . A la surface (à 4 m du sol), les observations étaient beaucoup plus importantes, étant fortement influencées par la zone de surf, et la concentration moyenne était de  $58.3 \pm 28.3 \mu\text{g m}^{-3}$ . Ces résultats indiquent que les concentrations peuvent donc atteindre des valeurs aussi importantes que 40 ou  $60 \mu\text{g m}^{-3}$  dans des conditions de vents forts, avec des masses d'air ayant traversé l'océan Atlantique.

Comparées à des mesures effectuées sur des sites côtiers ou insulaires en Atlantique, les concentrations en aérosols marins dans le bassin méditerranéen sont plus faibles. En effet, certains sites de mesures installés dans le bassin méditerranéen ne sont pas très impactés par les aérosols marins. En Espagne par exemple, sur des sites côtiers à Barcelone, Tarragone, Cartagene et Onda, les concentrations en aérosols marins observées ne dépassent pas  $2.4 \mu\text{g m}^{-3}$  (Querol et al., 2008).

D'autres sites sont néanmoins plus influencés par les aérosols marins, comme c'est le cas à la station de mesure installée à Majorque (117 m asl) (Pey et al., 2009). En effet, pendant l'année 2004, la concentration massique moyenne des aérosols marins  $\text{PM}_{10}$  ( $\text{Na}^+ + \text{Cl}^-$ ) était de  $2.9 \mu\text{g m}^{-3}$ , représentant 10 % des aérosols  $\text{PM}_{10}$ . La concentration maximale en aérosols marins pendant l'année 2004 mesurée sur ce site est de  $13.7 \mu\text{g m}^{-3}$ . Des valeurs similaires ont également été observées sur le site de Finokalia installé en Crète (150 m asl), sur la période juillet 2004 à juillet 2006 (Koulouri et al., 2008). Dans le même ordre de grandeur, des mesures effectuées à Chypre sur quatre sites entre janvier 2012 et janvier 2013 indiquent des concentrations moyennes en aérosols marins ( $\text{PM}_{10}$ ) comprises entre 2 et  $3 \mu\text{g m}^{-3}$ .

En parallèle, pendant un épisode météorologique caractéristique de la Méditerranée qu'est le mistral, des mesures à Porquerolles en mai 2007, ont rapporté une concentration moyenne en Cl et Na de 5.1 et  $3.0 \mu\text{g m}^{-3}$ , respectivement (Piazzola et al., 2012). Ces concentrations sont du même ordre de grandeur que celles observées pendant la campagne FETCH pour des conditions de vents forts de secteur sud ( $2.37 < [\text{Na}^+] < 4.51 \mu\text{g m}^{-3}$ ) (Sellegrì et al., 2001). Ceci démontre que la concentration moyenne dans le bassin méditerranéen est assez faible

mais que lors d'évènements de vents plus important comme le mistral, les concentrations en aérosols marins sont significativement plus élevées.

En plus des observations, la modélisation numérique de cas d'étude peut également nous renseigner sur la teneur en aérosols marins dans l'atmosphère sur des zones non-équipées en instruments de mesure. Tsyro et al. (2011) ont montré que la concentration en  $\text{Na}^+$  était inférieure à  $0.5 \mu\text{g m}^{-3}$  sur les continents, loin des côtes. Pour un cas d'étude de 2 jours (24-26 juillet 2007), Lundgren et al. (2013) indiquent à l'aide du modèle COSMO-ART que la concentration en masse moyenne dans les 20 premiers mètres au dessus de la surface est comprise entre 5 et  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  proche du Cap Corse. La concentration en masse atteint des valeurs beaucoup plus importantes dans la mer d'Alboran ( $\sim 50 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Au-dessus de l'Atlantique et de la mer Méditerranée, la charge en aérosols marins sur la colonne atmosphérique est comprise entre 10 et  $100 \text{ mg m}^{-2}$  selon des simulations RCFC (Kushta et al., 2014). Enfin, moyennée sur les trois mois d'été (juin, juillet et août), le modèle RegCM estime que la charge massique en Méditerranée et dans le golfe de Gascogne est à peu près similaire, d'environ  $8 \text{ mg m}^{-2}$  (Zakey et al., 2008).

Plus récemment, Menut et al. (2015) ont également réalisé une simulation avec le modèle CHIMERE pendant la période ChArMEx-ADRI-MED. Pendant la campagne, sur tout le domaine, les aérosols marins représentent la deuxième contribution (après les poussières désertiques) aux  $\text{PM}_{10}$  à la surface, en particulier sur les sites insulaires ou côtiers. Plus précisément, au niveau du site du Cap Corse, la concentration en aérosols marins modélisée à la surface atteint environ  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  pendant quelques jours, autour du 24 juin.

### Concentrations en nombre

En atmosphère marine, la concentration en nombre en aérosols au niveau de l'océan Atlantique est assez faible, de l'ordre de 300 à  $600 \text{ cm}^{-3}$  (D O'Dowd et De Leeuw, 2007; Yoon et al., 2007). Parmi ces aérosols, la concentration des aérosols marins peut atteindre 50 à  $150 \text{ cm}^{-3}$  dans des conditions de vents forts. Pour des conditions de vents faibles ou modérées, la concentration en nombre en aérosols marins est typiquement inférieure ou égale à  $50 \text{ cm}^{-3}$  (Kreidenweis et al. (1998) pendant la campagne ACE-1, Hoppel et Frick (1990), O'Dowd et al. (1997), Shinozuka et al. (2004)).

En Méditerranée, pour un cas de mistral observé en 2007 (Piazzola et al., 2012), la concentration en nombre ( $320 \text{ cm}^{-3}$ ) était du même ordre de grandeur que les mesures réalisées à Mace Head en 2007 ( $253 \text{ cm}^{-3}$  en hiver et  $469 \text{ cm}^{-3}$  en été) (Yoon et al., 2007). La différence avec la concentration observée sur le même site mais pendant un épisode caractérisé par des brises de mer est importante. En effet, dans ce cas, la concentration en nombre mesurée à Porquerolles par l'instrument SMPS était d'environ  $4000 \text{ cm}^{-3}$ , avec une large part de particules située dans le mode nucléation. Des mesures du même ordre de grandeur ont également été observées dans le bassin méditerranéen pour des masses d'air influencées par la surface marine ( $1340 \text{ cm}^{-3}$  et  $3470 \text{ cm}^{-3}$  (Eleftheriadis et al., 2006)). Ainsi, les concentrations en

nombre mesurées dans le bassin méditerranéen pour des masses d'air marines sont beaucoup plus importantes que celles mesurées en Irlande sur la côte Atlantique, sauf pendant le cas de mistral.

### 2.3.2 Distribution verticale des aérosols marins

La charge en aérosols marins est surtout comprise dans la couche limite marine (CLM) et on trouve souvent une différence de concentration entre celle-ci et la troposphère libre (FT pour free troposphere en anglais) qui peut varier d'un à deux ordres de grandeur.

Des profils verticaux de concentration d'aérosols réalisés à bord d'avions instrumentés lors de campagnes de mesure ont permis de documenter la distribution verticale des aérosols marins. Pour des conditions de vent faibles à modérés, les aérosols marins ont été principalement observés dans la CLM et peu dans la troposphère libre (Océan Pacifique Sud et Tropical). Ainsi, Shinozuka et al. (2004) ont observé des aérosols marins jusqu'à des altitudes variant entre plusieurs centaines de mètres et 2 km, en fonction de la hauteur de la CLM, et pour des conditions de vent à la surface de  $12 \text{ m s}^{-1}$  pendant la campagne ACE-1 (Bates et al., 1998). Maring et al. (2003) ont également observé des aérosols marins localisés principalement dans la CLM lors de profils verticaux effectués au-dessus de Porto Rico, pour des conditions de vent faible (vitesse moyenne à la surface de  $6 \pm 1 \text{ m s}^{-1}$ ) (campagne de mesure PRIDE, été 2000).

Cependant, des aérosols marins ont déjà été observés sur des sites en altitude. Ainsi, au Mont Cimone (2165 m asl, Italie) pendant trois mois de l'été 2004, la concentration moyenne en aérosols marins observés à la station Global Atmospheric Watch (GAW) était de  $0.2 \mu\text{g m}^{-3}$  et pouvait atteindre des valeurs de  $0.5 \mu\text{g m}^{-3}$  (Marenco et al., 2006). Même si cette concentration est faible, ces mesures indiquent que des aérosols marins peuvent être injectés dans la troposphère libre et transportés au dessus de la CLM. Des aérosols marins ont également été observés à la station de recherche du Puy de Dôme, située à 1465 m asl avec l'instrument HTDMA (Holmgren et al., 2014). Si on s'intéresse de plus près à la distribution verticale dans la CLM, on trouve un gradient entre la surface et la limite haute de la CLM. Ainsi, Shinozuka et al. (2004) indiquent que le volume des aérosols marins grossiers situé entre 600 et 1000 m était égal à 20 à 60% du volume situé entre 0 et 200 m au-dessus de la surface, pour des vitesses de vent à 10m allant de 4 à 12 m/s.

Il faut noter que peu d'études sont disponibles en milieu méditerranéen. Cependant, certaines se sont concentrées sur la concentration en aérosols marins dans les premiers mètres de la CLM et Piazzola et Despiau (1997) ont mis en évidence notamment le processus d'écrtage pour des vitesses de vent supérieures à  $9 \text{ m s}^{-1}$ . Ce processus est détecté par un maximum de concentration des particules supermicroniques à 2-3 m au dessus de la surface de l'eau. En parallèle, à l'échelle régionale et sur de longues périodes de temps, en utilisant les ob-

servations du Lidar CALIOP (moyenne de 2006 à 2010), Nabat et al. (2013) montre que les aérosols marins sont confinés dans les 1000 premiers mètres de la CLM avec un maximum observé à 200 m.

### 2.3.3 Distribution en taille des aérosols marins

La distribution en taille des aérosols marins est fortement dépendante des conditions météorologiques ou dynamiques comme la vitesse du vent, l'état de la mer ou la température de l'eau de mer. On distingue ici les mesures de distribution de taille des aérosols marins en masse et en nombre. En effet, les mesures en nombre ne permettent pas de discriminer les différents types d'aérosols et sont en partie impactées par la pollution sur les côtes et par le mélange des particules. Cependant on peut discriminer des conditions marines propres avec des masses d'air originaires de l'océan qui vont contenir en majorité des aérosols marins. D'autre part, des mesures de distribution de taille en masse sur filtres (anions et cations) permettent de discriminer les différents types d'aérosols et de retrouver une distribution massique d'aérosols marins inorganiques.

Le spectre de taille des aérosols marins est très étendu, du mode d'Aitken au mode grossier. Si les aérosols marins sont généralement caractérisés par leur mode grossier, les modes Aitken et accumulation sont dominants en nombre. Des mesures réalisées à Mace Head entre janvier 2002 et juin 2004 ont permis de caractériser la distribution granulométrique en nombre en fonction des saisons ; hiver et été (Yoon et al., 2007). Pour commencer par les inorganiques, un mode grossier dont le diamètre modal est situé à  $2\text{ }\mu\text{m}$  est observé indépendamment de la saison et de l'activité biologique. La concentration de ce mode est également plus importante en hiver qu'en été, dénotant la dépendance de l'émission des aérosols marins aux conditions météorologiques. Contrairement au mode grossier, le mode d'accumulation subit une variation à la fois sur le diamètre et la concentration. Le maximum ayant lieu l'été, pendant le maximum d'activité biologique. Ainsi le diamètre modal du mode d'accumulation est situé à 103 nm l'hiver et à 177 nm l'été. Le mode Aitken subit aussi une évolution de son diamètre, passant de 31 nm l'hiver à 49 nm l'été.

La paramétrisation d'émission d'aérosols marins proposée par Ovadnevaite et al. (2014), utilise une distribution lognormale composée de cinq modes, déterminés d'après des mesures expérimentales in-situ à Mace Head et des mesures sur bateau dans l'océan Atlantique Nord. Deux modes d'Aitken y sont représentés avec des diamètres modaux de 18 et 41 nm et deux modes d'accumulation sont représentés avec des diamètres modaux de 90 et 233 nm. Enfin, un dernier mode dans le diamètre est situé à  $0.830\text{ }\mu\text{m}$  représente les aérosols grossiers. On retrouve ici les mêmes diamètres que ceux observés par Yoon et al. (2007).

En ce qui concerne les mesures dans le bassin méditerranéen, des résultats ont été obtenus en milieu côtier à Porquerolles (Piazzola et al., 2012) et en Corse dans la baie de Calvi (Schwier et al., 2015) ainsi que pendant la campagne de mesure FETCH (Sellegri et al., 2001). A Porquerolles, la différence entre les masses d'air provenant de la mer Méditerranée et celle provenant des terres était marqué par un mode de nucléation dont le diamètre était situé autour de 50 nm pendant les brises de mer (Piazzola et al., 2012). Un mode d'accumulation de diamètre modal de 105 nm caractérisait également ces masses d'air et dominait la concentration en nombre. Les mesures effectuées dans la baie de Calvi par Schwier et al. (2015) concordent avec les observations faites à Mace Head et à Porquerolles. En effet, deux modes situés à 37.5 nm et 90 nm ont été observés pendant une campagne de mesure de flux d'aérosols marins primaires dans les eaux méditerranéennes. Enfin, en zone de surf, Clarke et al. (2003) et Clarke et al. (2006) ont observé des aérosols marins dans le mode Aitken, avec une concentration en nombre maximale autour de 30-40 nm de diamètre.

Pour conclure sur cette partie, la distribution en taille des aérosols marins observée est cohérente pour des zones différentes. Les modes principaux sont identiques dans l'océan Atlantique ou en mer Méditerranée. Effectivement, un mode fin de diamètre modal d'environ 40 nm et un mode d'accumulation situé autour de 100 nm ont été observés à Porquerolles, Calvi ou Mace Head. Une variation de ces diamètres peut être due à l'activité biologique de la surface de la mer ou au vieillissement des aérosols marins. Un mode grossier correspond aux inorganiques a également été observé, caractérisé par un diamètre d'environ 2  $\mu\text{m}$ .

### 2.3.4 Vieillissement et hygroscopicité des aérosols marins

Concernant la composition chimique des aérosols marins, la masse inorganique est constituée à plus de 85 % de chlorure de sodium (NaCl) (Blanchard, 1983). Les 15 % restants sont composés de  $\text{SO}_4^{2-}$  (8%),  $\text{Mg}^{2+}$  (4%),  $\text{Ca}^{2+}$  (1%),  $\text{K}^+$  (1%) ainsi que d'espèces mineures à moins de 1 % (Brewer, 1975). La composition chimique de la partie inorganique est représentée sur le diagramme 2.5. Les aérosols marins sont également constitués de matière organique, qui peut aussi contribuer significativement à la masse totale (Blanchard, 1964; Hoffman et Duce, 1976). Ainsi de nombreuses études ont montré que la fraction organique des aérosols marins n'était pas négligeable et pouvait même constituer la majeure partie de la masse des particules submicroniques Blanchard (1964); Hoffman et Duce (1976); Sciare et al. (2009). Ce résultat étant particulièrement remarqué si les masses d'air avaient traversé des zones de forte activité biologique marine (O'Dowd et al., 2004; Rinaldi et al., 2010; Ovadnevaite et al., 2011).

Dans l'eau de mer, le rapport massique des éléments chlore sur sodium est égal à 1.8 (Lewis et Schwartz, 2004). Une fois émis, les aérosols marins vont réagir lors de leur transport dans l'atmosphère avec d'autres espèces. Le rapport de la concentration de  $\text{Cl}^-$  sur  $\text{Na}^+$  est

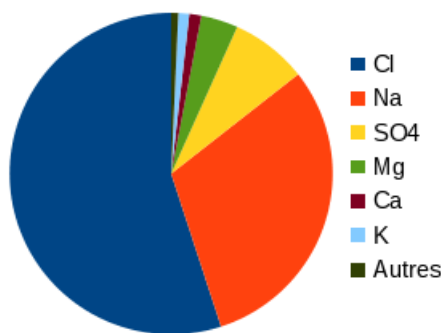
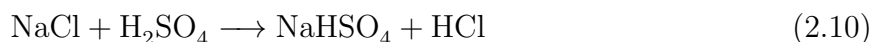
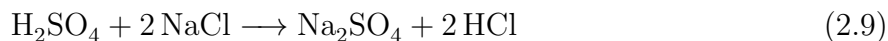


FIGURE 2.5 – Composition chimique de la partie inorganique des aérosols marins.

donc un indicateur de la déplétion du chlore quand les aérosols réagissent avec des gaz acides comme  $\text{HNO}_3$  et  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (Clegg et Brimblecombe, 1985; Quinn et Bates, 2005) selon les réactions chimiques 2.9, 2.10 et 2.11 :



Ce phénomène de déplétion du chlore augmente avec la diminution de taille des particules, en présence de polluants atmosphériques (Quinn et Bates, 2005). Ainsi, Quinn et Bates (2005) rapportent que pour les campagnes de mesures ACE-1, IND India et AA Polluted, pour des zones impactées par des masses d'air continentales, le rapport chlore/sodium pour les particules submicroniques était compris entre 0.3 et 0.9 et pouvait même atteindre une valeur nulle, signifiant la déplétion complète du chlore. Pour les particules supermicroniques, ce rapport est compris entre 0.65 et 1.9. En niveau de l'océan Arctique, pendant l'été 1996, Kerminen et al. (1998) ont noté que la déplétion du chlore était plus importante pour des masses d'air ayant été transportées plus longtemps au-dessus des continents. Kerminen et al. (1998) ont également indiqué que les masses d'air plus chargées en aérosols marins étaient moins impactées par la déplétion du chlore. Enfin, ce phénomène était plus visible pour les particules comprises entre  $0.94\text{-}1.8 \mu\text{m}$  que celles comprises entre  $1.8$  et  $7.5 \mu\text{m}$ .

Dans le bassin méditerranéen, de nombreuses études renseignent sur ce rapport. En ce qui concerne les aérosols marins submicroniques ( $\text{PM}_1$ ), Schwieter et al. (2015) rapportent un rapport égal à 1.2. En Corse, des mesures réalisées entre juillet 2012 et avril 2013 montrent un rapport de 0.6 (Nicolas, 2013) à la station de mesure d'Ersa. Dans le bassin méditerranéen

Est, à Finokalia en Crète, des rapports de 0.49, 1.00 et 1.2 pendant l'été ont été mentionnés par Mihalopoulos et al. (1997); Koulouri et al. (2008); Bardouki et al. (2003). Ces valeurs indiquent un vieillissement important des aérosols marins, en particulier pour les mesures effectuées par Mihalopoulos et al. (1997) et Nicolas (2013).

Les aérosols marins ont également des propriétés hygroscopiques importantes qui ont un impact sur leur distribution de taille et donc leur propriétés optiques et radiatives. En effet, pour des humidités relatives comprises entre 50 et 100 % leur taille peut doubler (Tang, 1996; Fitzgerald, 1989). Le comportement des aérosols marins dépend également de l'évolution de l'humidité relative (croissante ou décroissante). On observe ce comportement, illustré par le phénomène d'hystérésis, sur la figure 2.6.

Il est couramment admis que le rayon d'équilibre ( $r_0$ ) des gouttelettes marines à l'émission ( $RH \sim 98.8\%$ ) est lié aux rayons à différentes humidités relatives (80 % et 0%) selon la relation 2.12 :

$$r_{98} = 2r_{80} = 4r_{sec} \quad (2.12)$$

Les différentes paramétrisations d'émissions d'aérosols marins sont configurées en fonction de ces rayons.

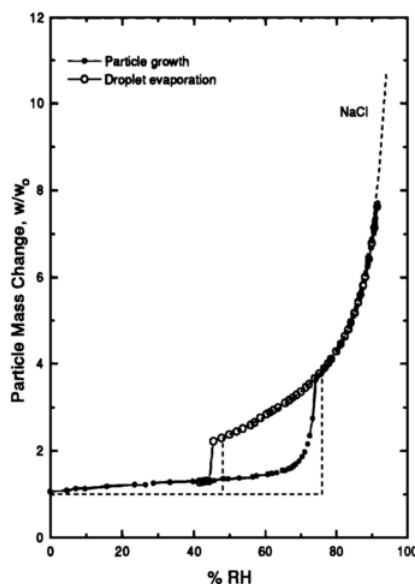


FIGURE 2.6 – Croissance, transformation de phase et évaporation des particules de sels marins (générées à partir d'un échantillon d'eau de mer de l'océan Atlantique) en fonction de l'humidité relative. Le comportement théorique des particules composées de NaCl sont représentées en ligne pointillée. Extrait de Tang (1997)

### 2.3.5 Epaisseur optique et forçage radiatif direct

#### Epaisseur optique atmosphérique

Il est difficile d'obtenir des valeurs expérimentales d'épaisseur optique atmosphérique (AOD) d'aérosols marins uniquement. En effet, il est rare que l'unique contribution des aérosols sur la colonne atmosphérique soit d'origine marine. Cependant, sous des conditions appelées « condition atmosphérique marine propre », on considère que l'influence principale est d'origine marine. Le réseau de radiomètre AERONET est la source principale de mesures d'AOD à l'échelle globale (Dubovik et King, 2000; Dubovik et al., 2002). Ses observations et inversions servent régulièrement de comparaison aux résultats de modélisation (Jaeglé et al., 2011; Spada et al., 2013; Partanen et al., 2014; Sic et al., 2015; Menut et al., 2015).

Au niveau global, les valeurs d'AOD dues aux aérosols marins sont faibles comparées aux poussières désertiques. Ainsi on retrouve des valeurs inférieures à 0.1 dans la plupart des océans « propres » avec une valeur moyenne de 0.07 (à 500nm) (Smirnov et al. (2002), données sur 2 à 5 ans, issues de trois stations AERONET situées dans l'océan Pacifique tropical et 2 stations dans l'océan Atlantique tropical et subtropical). Si la plupart des observations dénotent des valeurs inférieures ou proches de 0.1, Mulcahy et al. (2008) ont déterminé une relation entre vitesse du vent à la surface et AOD due aux aérosols marins à partir d'observations réalisées à la station GAW de Mace Head (Irlande). Pour des vitesses de vent comprises entre 4 et 18 m s<sup>-1</sup>, l'AOD (à 500 nm) varie entre 0.03 et 0.38.

Le bassin méditerranéen est bien instrumenté par ce réseau, mais on retrouve rarement des conditions atmosphériques marines propres, pour les raisons présentées dans la section 2.1.1. Cependant, on retrouve le même ordre de grandeur pour l'AOD mais avec des valeurs légèrement supérieures. En effet, Pace et al. (2006) indiquent à Lampedusa une valeur moyenne d'AOD pour des conditions marines propres de 0.11 (à 495.7 nm), de juillet 2001 à septembre 2003. De la même manière, dans le bassin méditerranéen Est, en Crète, pour les années 2003 et 2004, la valeur moyenne de bruit de fond de l'AOD, associée à des aérosols marins, est de 0.15 à 340 nm et de 0.1 à 500 nm (Fotiadi et al., 2006). Enfin, Spada et al. (2013) ont obtenu pour le mois de janvier (moyenne sur une période de 5 ans, de 2002 à 2006) un AOD d'environ 0.04 (à 500 nm). Cette valeur est assez faible, étant donné que les émissions d'aérosols marins sont favorisées l'hiver à cause des conditions météorologiques. A l'échelle climatique, Nabat et al. (2013) obtient des moyennes mensuelles inférieures à 0.05 (à 550 nm) dans le bassin méditerranéen, en utilisant des observations satellites et des données issues de simulations numériques.

Ainsi, l'impact des aérosols marins sur l'AOD est majoritairement assez faible et caractérisé par des valeurs inférieures à 0.1 dans les courtes longueurs d'ondes. Les observations et résultats de modélisation dans le bassin méditerranéen sont en accord avec ces valeurs. Cependant, les aérosols marins, lors de conditions extrêmes comme observées à Mace Head,

peuvent être caractérisées par des valeurs atteignant 0.4 (à 500 nm), du même ordre de grandeur que lors d'événements de poussières désertiques modérés ou de feux de biomasse.

### Forçage radiatif direct

Cette dernière partie se focalise sur l'effet radiatif direct des aérosols marins au niveau global et dans le bassin méditerranéen. Comme vu précédemment, de par leur spectre de taille étendu (quelques nm à plusieurs micromètres) les aérosols marins ont un impact à la fois dans les courtes et grandes longueurs d'ondes. Ils ont des propriétés majoritairement diffusantes dans la bande SW et sont la cause majeure de diffusion de la lumière dans des conditions marines propres (Quinn et Bates, 2005). Le forçage radiatif est généralement estimé à partir d'observations (algorithmes d'inversion des données observées par les radiomètres des stations AERONET (García et al., 2008)) où modélisé au niveau global ou régional, à échelle climatique ou pour des cas d'étude comme c'est le cas dans ce travail de thèse.

Au niveau global, le forçage radiatif dans les courtes longueurs d'ondes des aérosols marins au sommet de l'atmosphère (pour des conditions de ciel clair) est négatif et assez faible. Ainsi, Grini et al. (2002) ont obtenu une moyenne de  $-2.2 \text{ W m}^{-2}$ . En parallèle, Ma et al. (2008) ont modélisé un forçage radiatif direct global (TOA) de  $-1.34 \text{ W m}^{-2}$  pour les mois de Juin-Juillet-Aout (JJA) en ciel clair, avec le modèle AGCM4. Podgorny et al. (2000) obtiennent des valeurs similaires au niveau de l'océan Indien ( $-1.36 \text{ W m}^{-2}$ ). Des valeurs plus faibles ont été rapportées par Reddy et al. (2005) avec le modèle LMDZT GCM, de l'ordre de  $-0.63 \text{ W m}^{-2}$  (moyenne globale annuelle). Enfin, Partanen et al. (2014) ont simulé le forçage radiatif des aérosols marins à l'échelle global, en utilisant le schéma d'émission d'Ovadnevaite et al. (2014) dans le modèle ECHAM-HAMMOZ pour les années 2006 à 2010. Celui-ci, moyenné sur 5 ans, a été estimé à  $-0.53 \text{ W m}^{-2}$  au TOA pour des conditions de ciel clair.

Sur le bassin méditerranéen à présent, Nabat et al. (2015a) ont obtenu un forçage radiatif direct, au niveau régional, équivalent à la surface et au TOA et compris entre 0 et  $-1 \text{ W m}^{-2}$ , avec le modèle CNRM-RCSM4 pour une simulation couvrant la période de 2003 à 2009. En plus de cette simulation, le forçage radiatif journalier des aérosols marins au niveau du bassin méditerranéen Est (conditions de ciel clair), a été estimé par Mishra et al. (2014) pendant l'été 2010 en utilisant des observations satellitaires et in-situ ainsi qu'un modèle de transfert radiatif. Le forçage à la surface et au sommet de l'atmosphère est négatif et du même ordre de grandeur, avec des valeurs moyennes comprises entre -5 et  $-10 \text{ W m}^{-2}$ . Enfin, Lundgren et al. (2013) ont réalisé une simulation de trois jours, du 24 au 26 juillet 2006, sur le bassin méditerranéen, avec le modèle COSMO-ART (Vogel et al., 2009) pour des conditions météorologiques modérées (vitesse du vent en surface compris entre 5 et  $7.5 \text{ m s}^{-1}$ .) Pour des conditions de ciel clair et sur tout le domaine (surfaces continentales et océaniques), l'ERD en SW est de  $-0.62 \pm 3.71 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de  $-0.47 \pm 3.21 \text{ W m}^{-2}$

au TOA.

Comme indiqué précédemment, les aérosols marins ont la capacité d'interagir avec les courtes et grandes longueurs d'ondes mais peu d'estimations sont disponibles dans le LW. Ainsi, Ma et al. (2008) ont obtenu des valeurs de forçage radiatif direct global LW (TOA) moins importantes que dans le SW. La moyenne obtenue pour les mois JJA est de  $+0.03 \text{ W m}^{-2}$  en ciel clair. Des valeurs plus importantes ont été obtenues par Reddy et al. (2005) pour des conditions de ciel clair également, de l'ordre de  $+0.21 \text{ W m}^{-2}$ . Enfin, Lundgren et al. (2013) modélisent un forçage radiatif dans les grandes longueurs d'ondes de  $+0.19 \pm 1.08 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de  $+0.05 \pm 0.54 \text{ W m}^{-2}$  au TOA. Celles-ci représentent, à notre connaissance, la seule estimation du forçage radiatif LW à l'échelle de l'épisode, sur le bassin méditerranéen.

# Chapitre 3

## Caractérisation des aérosols marins primaires pendant la campagne de mesures ChArMEx-ADRIMED

### Sommaire

3.1	Campagne de mesures ChArMEx-ADRIMED . . . . .	35
3.2	Résumé de l'article . . . . .	37
3.3	Optical, physical and chemical properties of aerosols transported to a coastal site in the Western Mediterranean : Focus on primary marine aerosols . . . . .	38
3.4	Conclusion . . . . .	82

### 3.1 Campagne de mesures ChArMEx-ADRIMED

Le projet ChArMEx (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment) s'inscrit dans le programme international de recherche MISTRALS (Mediterranean Integrated STudies at Regional And Local Scales). Ce programme a été mis en place pour essayer de mieux comprendre le fonctionnement environnemental de la région Méditerranée dans le cadre du réchauffement climatique, afin d'améliorer la prédiction des changements futurs. MISTRALS est composé de huit programmes de recherche dont ChArMEx dans lequel s'inscrit ce travail de thèse.

ChArMEx a pour but de mieux comprendre la composition atmosphérique (gaz et aérosols) dans le bassin Méditerranéen et de ses impacts sur le climat régional, la qualité de l'air ainsi que la biogéochimie marine et continentale. En plus d'une instrumentation installée sur plusieurs sites pour plusieurs années, ce programme a fait l'objet de plusieurs campagnes de mesure dites intensives (SOP pour Special Observation Period), focalisées sur les masses

d'air polluées au dessus du bassin (TRAQA, SOP 0, juin et juillet 2012), les interactions aérosols-rayonnement-climat (ADRIMED, SOP 1a, juin et juillet 2013) ou la formation d'aérosols secondaires (SAFMED, SOP 1b, juillet et aout 2013).

Cette étude s'inscrit en particulier dans la campagne de mesure ADRIMED (Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean region) dont le résumé est présenté par Mallet et al. (2016) que l'on peut retrouver en annexe C. Cette campagne de mesure s'est déroulée en juin et juillet 2013 dans le bassin méditerranéen ouest. Différents moyens ont été mis en oeuvre pendant cette période d'observation dont les avions instrumentés pour la recherche ATR-42 et Falcon 20 (SAFIRE) basés à Cagliari (Sardaigne).



FIGURE 3.1 – Localisation du site de mesure d'Ersa. Cartes extraites de Google Map.

Deux super-sites, comprenant une instrumentation aérosols très fournie ont été installés pour la période. Ces stations étaient instrumentées pour caractériser les propriétés physiques, chimiques et optiques des aérosols ainsi que leur mélange et leur structure verticale. Le premier se situe à Ersa ( $42.9694^{\circ}\text{N}$ ,  $9.3803^{\circ}\text{W}$ ), sur la pointe nord du Cap Corse, à 533 m asl d'altitude (Fig. 3.1 et 3.2). Cette station de mesure est entourée par la mer à l'Ouest, à l'Est et au Nord, à quelques kilomètres, et par des montagnes au Sud ( $\sim 1000$  m asl). Elle est située dans une région que l'on peut appeler reculée, et n'est que très peu impactée par des sources de pollution locales, la ville la plus proche étant située à quelques kilomètres de distance. Ainsi, la concentration en nombre moyenne des aérosols mesurée pendant l'été 2013 était d'environ  $2000 \text{ cm}^{-3}$ , ce qui correspond à des concentrations d'un site reculé. Une description détaillée du site peut être trouvée dans Mallet et al. (2016). Le second site était situé à Lampedusa ( $35^{\circ}31' 5 \text{ N}$ ,  $12^{\circ}37' 51 \text{ E}$ , 45 m asl).

Les nombreuses données obtenues sur la physique, la chimie et les propriétés optiques des aérosols pendant la campagne de mesure ChArMEx-ADRIMED à Ersa, couplées avec les simulations FLEXPART ont conduit à une étude approfondie sur les aérosols marins. Cette étude a fait l'objet d'un article soumis dans le journal scientifique ACP (Atmospheric Chemistry and Physics). Cet article est actuellement en cours de discussion.



FIGURE 3.2 – Photos du site de mesures installé à Ersa. A gauche vue globale du site depuis une éolienne, à droite les containers contenant les instruments avec au premier plan celui de Météo-France et en arrière-plan, celui du LSCE.

## 3.2 Résumé de l'article

Pendant la campagne de mesure ChArMEx-ADRIED (été 2013), des observations in-situ ont été effectuées à la station de mesure d'Ersa (Cap Corse, 533 m asl) pour caractériser les propriétés physiques, chimiques et optiques des aérosols. Pendant la période d'observation (7 juin - 14 juillet 2013), trois différents régimes d'aérosols ont été identifiés ; un épisode de poussières désertiques provenant d'Algérie et Tunisie (appelé Dust) ; un épisode d'aérosols marins primaires émis dans la région du golfe du Lion et localement proche de la station de mesure (appelé PMA) ; et enfin un épisode de pollution originaire d'Europe de l'Est, incluant des sources anthropiques et de combustion de biomasse (appelé BBP). Les propriétés physiques, chimiques et optiques de ces aérosols observés ainsi que leur forçage radiatif direct local (SW DRF) dans les courtes longueurs d'ondes (pour des conditions de ciel clair) sont comparées pour ces trois périodes.

La période de PMA est caractérisée par une concentration moyenne en aérosols marins qui atteint jusqu'à  $6.5 \mu\text{g m}^{-3}$ , représentant 40% de la concentration en masse totale de  $\text{PM}_{10}$ , et un rapport Chlore sur sodium relativement faible (moyenne de 0.57), indiquant un aérosol marin généralement « âgé » observé à Ersa. Dans ce travail, une base de données originale, obtenue à partir d'instruments en ligne et en temps réel (ATOFMS, PILS-IC) a été utilisée pour caractériser le vieillissement des PMA. Les résultats indiquent que la majorité des PMA observés ont subi des réactions chimiques, ce qui représente un résultat important, et étaient donc principalement advectés par transport longue distance. Notre étude montre que les aérosols marins provenaient également d'émissions locales, constituant donc un mélange entre PMA frais et âgés. Les propriétés optiques des aérosols, obtenues sur la colonne atmosphérique et à la surface, mettent en évidence un albedo de simple diffusion (SSA) proche de 1 (à 440 nm), indiquant des particules purement diffusantes, associées à une épaisseur optique atmosphérique (AOD) relativement faible, proche de 0.1 (à 500 nm) et un exposant d'extinction d'Angstrom (AE) égal à  $1.3 \pm 0.4$  (calculé entre 440 et 870 nm), suggérant un

possible mélange des PMA avec des particules fines (probablement d'origine continentale). Les inversions AERONET indiquent un SW DRF assez faible pendant la période de PMA avec des valeurs moyennes de  $-11 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$  à la surface (BOA) et de  $-8 \pm 3 \text{ W m}^{-2}$  au sommet de l'atmosphère (TOA).

En comparaison, nos résultats indiquent que les poussières désertiques observées sur le site d'Ersa pendant la campagne de mesure, bien que d'intensité modérée (AOD de 0.3-0.4 à 440 nm et SSA intégré sur la colonne atmosphérique de 0.90-0.95), induisent un SW DRF local instantané presque trois fois supérieur au forçage calculé pendant la période de PMA, avec un maximum atteignant une valeur de  $-40 \text{ W m}^{-2}$  à la surface. En moyenne, le SW DRF était de  $-21 \pm 11$  et de  $-14 \pm 6 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et au sommet de l'atmosphère respectivement, pendant cet épisode de poussières désertiques.

Enfin, la période de BBP est caractérisée par une augmentation significative de la concentration en masse des  $\text{PM}_{10}$  (de  $3.7 \mu\text{g m}^{-3}$  à  $7.2 \mu\text{g m}^{-3}$ ) due à l'influence d'aérosols anthropiques et de feux de biomasse transportés depuis l'Europe de l'Est. Ces particules conduisent à une diminution significative du SSA (0.90 à 440 nm), dénotant leur caractéristiques d'absorption importantes. Pendant cette période, le SW DRF à la surface et au sommet de l'atmosphère indique également des valeurs moyennes plus importantes que pendant la période de PMA ( $-23 \pm 6 \text{ W m}^{-2}$  et  $-15 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$  respectivement) et similaires à celles observées pendant la période de Dust.

### 3.3 Optical, physical and chemical properties of aerosols transported to a coastal site in the Western Mediterranean : Focus on primary marine aerosols

# Optical, physical and chemical properties of aerosols transported to a coastal site in the Western Mediterranean : Focus on primary marine aerosols

Marine Claeys<sup>1</sup>, Greg Roberts<sup>1,2</sup>, Marc Mallet<sup>1</sup>, Jovanna Arndt<sup>3</sup>, Karine Sellegri<sup>4</sup>, Jean Sciare<sup>5,6</sup>, John Wenger<sup>3</sup>, and Bastien Sauvage<sup>7</sup>

<sup>1</sup>CNRM, Centre National de Recherches Météorologiques UMR 3589, Météo-France/CNRS, Toulouse, France

<sup>2</sup>Scripps Institution of Oceanography, Center for Atmospheric Sciences and Physical Oceanography, La Jolla, United States

<sup>3</sup>Department of Chemistry and Environmental Research Institute, University College Cork, Cork, Ireland

<sup>4</sup>LaMP, Laboratoire de Météorologie Physique CNRS UMR6016, Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal, Aubière, France

<sup>5</sup>LSCE, Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Unité Mixte CEA-CNRS-UVSQ, CEA/Orme des Merisiers, 91191 Gif-sur-Yvette, France

<sup>6</sup>Energy Environment Water Research Center, The Cyprus Institute, 2121 Nicosia, Cyprus

<sup>7</sup>LA, Laboratoire d'Aérodynamique, Observatoire Midi-Pyrénées, CNRS/IRD/Université de Toulouse, 14, Avenue Édouard Belin, 31400 Toulouse, France

*Correspondence to:* M. Claeys (marine.claeys@umr-cnrm.fr)

## Abstract.

As part of the ChArMEx-ADRIED campaign (summer 2013), ground-based in-situ observations were conducted at the Ersa site (northern tip of Corsica; 533 m asl) to characterize the optical, physical and chemical properties of aerosols. During the observation period, a major influence of primary marine aerosols was detected (22-26 June), with a mass concentration reaching up to  $6.5 \mu\text{g.m}^{-3}$  and representing more than 40% of the total  $\text{PM}_{10}$  mass concentration. Its relatively low ratio of chloride to sodium (average of 0.57) indicating a generally 'aged' sea salt aerosol at Ersa. In this work, an original dataset, obtained from on-line real-time instruments (ATOFMS, PILS-IC) have been used to characterize the ageing of PMA. During this PMA period, the mixing between fresh and aged PMA was found to originate from both local and regional (Gulf of Lion) emissions, according to local wind measurements and FLEXPART backtrajectories. Two different aerosol regimes have been identified, a dust outbreak (Dust) originating from Algeria/Tunisia, and a pollution period with aerosols originating from Eastern Europe, which includes anthropogenic and biomass burning sources (BBP). The optical, physical and chemical properties of the observed aerosols as well as their local shortwave (SW) direct radiative effect (DRE) in clear-sky conditions are compared for these three periods in order to assess the importance of the direct radiative impact of PMA compared to other sources above the Western Mediterranean Basin.

As expected, AERONET retrievals indicate a relatively low local SW DRF during the PMA period with mean values of  $-11 \pm 4 \text{ W.m}^{-2}$  at the surface and  $-8 \pm 3 \text{ W.m}^{-2}$  at the top of the atmosphere (TOA). In comparison, our results indicate that the dust outbreak observed at our site during the campaign, although of moderate intensity (AOD of 0.3-0.4 at 440 nm and column-integrated SSA of 0.90-0.95), induced a local instantaneous SW DRF nearly three times the effect calculated during

the PMA period, with maximum values up to  $-40 \text{ W.m}^{-2}$  at the surface. Similar range of values were found for the BBP period than during the dust period (SW DRF at the surface and TOA of  $-23 \pm 6 \text{ W.m}^{-2}$  and  $-15 \pm 4 \text{ W.m}^{-2}$ , respectively).

The multiple sources of measurements at Ersa allowed the detection of a PMA dominant period and their characterisation, in terms of ageing, origin, transport, optical and physical properties and direct climatic impact.

## 5 1 Introduction

The Mediterranean Basin is a crossroad for air masses bringing different types of aerosols, both from natural and anthropogenic origins (Lelieveld et al., 2012). Among these aerosols, primary marine aerosols (PMA) (mainly composed of sea salt and to a lesser extent of organic matter) are important because they are always present over the Mediterranean basin and compose the main part of background aerosols over the Mediterranean (Pace et al., 2006). They are able to chemically react with other aerosol species, act as cloud condensation nuclei (CCN) and also interact with solar and thermal radiations due to their large size range (Kaufman et al., 2001; Kaufman and Koren, 2006; Khain, 2009; Li et al., 2011; Seiki and Nakajima, 2014). At the global scale, Bellouin et al. (2008) estimated that the contribution of marine aerosols was equivalent to half of the total Direct Radiative Forcing (DRF), while Zhao et al. (2011) found a contribution of one third of the total DRF. However, their contribution is highly variable in time and space, due to spatial variations in wind speed and long-range transport of marine aerosols. At the regional scale and over the Mediterranean basin, Salameh et al. (2007) indicate that the contribution of sea-salt particles to the total aerosol loading and optical depth ranges from 1 to 10 %. They report Aerosol Optical Depth (AOD) around 0.15-0.20 (at 865 nm) within the sea salt aerosol plume during strong wind (e.g., Mistral and Tramontane) events. In addition, Mulcahy et al. (2008) reported a high correlation between AOD (at 500 nm) and wind-speed, with AOD values of 0.3-0.4 at moderately-high wind speed - most likely related to the increase in PMA. Consequently, the persistent and punctually elevated AOD due to PMA aerosols can have an important impact on the radiative budget of the Mediterranean basin. This high variability in terms of PMA loading and optical, physical and chemical properties leads to important uncertainties in the quantification of regional radiative impact, both for direct and indirect effects (Forster et al., 2007; Stevens and Feingold, 2009). Finally, it should be noted that most past studies have documented aerosol properties in the Eastern part of the Mediterranean Basin (Crete (Mihalopoulos et al., 1997; Bardouki et al., 2003; Sciare et al., 2003; Koulouri et al., 2008); Greece (Chabas and Lefèvre, 2000)), even though many work also took place in the Central (Meloni et al., 2004; Di Iorio et al., 2009) and Western (Sellegrì et al., 2001; Cros et al., 2004; Pey et al., 2009; Guerrero-Rascado et al., 2009) Mediterranean basin.

In that context, the aim of this study is to characterize the optical, physical and chemical properties of PMA compared to the other major aerosol sources affecting the Western Mediterranean basin.

This work has taken place in the frame of the ChArMEx-ADRIMED (Chemistry Aerosols Mediterranean Experiment - Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean region) project (<https://charmex.lsce.ipsl.fr>) that took place in the Western Mediterranean basin during the summer 2013 (Mallet et al., 2016), and we used the real-time measurements performed at the remote ground-based Ersa atmospheric station situated at Cape Corsica ( $42.9694^\circ \text{ N}$ ,  $9.3803^\circ \text{ W}$ , altitude of 533m asl.).

The first section of this manuscript (Sect. 2) describes the instrumentation deployed at the Ersa station and the FLEXPART model configuration used to identify air masses origins at the station. Periods of the field campaign affected by the major aerosol sources are then discussed (Sect. 3.1 and 3.3) using chemical and physical measurements, as well as back trajectory analysis and direct radiative effect. Finally, meteorological observations recorded near the sample site (Ersa) during a period  
5 characterized by a particularly strong source of PMA is used to address the dependence of PMA mass concentration and ageing to local and regional wind speed (Sect. 3.2.2).

## 2 Method

### 2.1 Atmospheric station and instrumental set-up

The research atmospheric station of Ersa is located at the top Northern part of Corsica Island (Cape Corsica; 42.9694° N,  
10 9.3803° W). Its altitude is 533 m above sea level (asl), and it is surrounded by the Mediterranean sea on its northern, eastern and western sides and by mountains ( $\simeq 1000$  m asl) on its southern side. The station is located in a remote area, with minimal influence of local anthropogenic emissions. A more detailed description of the station is given by Mallet et al. (2016).

This station is equipped to provide in-situ measurement of the aerosol physical properties, including number concentration and number size distribution, using a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS 3081, TSI INC.), an Optical Particle Sizer (OPS  
15 3330, TSI INC.) and an Aerodynamic Particle Sizer (APS 3321, TSI INC.) to characterize both submicron and supermicron aerosol particles. Aerosol size distributions was achieved using two sampling inlets. The first one was a PM<sub>10</sub> head inlet, in which the air flow was dried using a Nafion dryer (TSI INC.) to a relative humidity below 40% and then divided into several paths to the OPS, SMPS and a Condensation Particle Counter (CPC 3010, TSI INC.). The second head inlet was a PM<sub>20</sub> with a flow rate of 1L.min<sup>-1</sup> that sampled for the APS. The flow rate reaching the other instruments was 1L.min<sup>-1</sup> for the OPS and  
20 0.5 L.min<sup>-1</sup> for the SMPS. The CPC measured the total number aerosol concentration for electric mobility diameters larger than 10 nm. The SMPS counted the number of particles per size bins from 10 to 500 nm, while the APS measured at ambient RH the number of particles per size bins from 0.5 to 20  $\mu$ m and the OPS from 0.3 to 10  $\mu$ m.

Optical corrections to the OPS size distributions are negligible when accounting for the refractive indices associated to the different particle types. We considered the particles as spherical (shape factor equal to 1).

25 Particulate matter below 1 and 10  $\mu$ m (PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub> respectively) were measured at the station on hourly basis using a TEOM-FDMS (Thermo Environment, model 1405-F) and a TEOM (Thermo Environment, model 1400), respectively.

Aerosol optical instruments were also deployed (nephelometer TSI INC. at 3 wavelengths, MAAP) to determine light scattering and absorption properties of aerosols. The nephelometer measured the scattered and backscattered coefficients at three  
30 wavelengths, 450 (blue), 550 (green) and 700 nm (red) with a PM<sub>10</sub> head inlet (flow rate of 40L.min<sup>-1</sup>), while the MAAP instrument (Multi Angle Absorption Photometer, Thermo Scientific) measured the concentration of PM<sub>2.5</sub> black carbon from the absorption of particles at the 670 nm wavelength. The nephelometer provides the scattering coefficient (not directly linked to the concentration of particles), associated to an indication of the size of aerosols through the spectral dependence of the

scattering coefficient between two wavelengths. The nephelometer data are corrected for truncation according to Anderson and Ogren (1998) method for the total aerosol population. A correction factor of 1.29, 1.29 and 1.26 is applied to the scattering coefficients at the wavelengths 450, 550 and 700 nm, respectively.

5 The PILS-IC measurements were performed using a Particle-into-Liquid-Sampler (PILS, Orsini et al. (2003)) running at 16.8 ( $\pm$  0.5) LPM and coupled with two Ion Chromatographs (IC) for the determination of the major cations and anions. More details on this instrumentation and its comparability with other real-time aerosol analysers can be found in Zorn et al. (2008); Sciare et al. (2011); Healy et al. (2013); Crippa et al. (2013); Bressi et al. (2013). Basic and acidic annular denuders (3-channel, URG Corp., USA) were mounted upstream of the PILS instrument and downstream of a PM<sub>10</sub> inlet having a 50% cut-off diameter of 10  $\mu$ m at 16.67 LPM. Ambient concentrations of ions were corrected from blanks performed every day for 1h and achieved by placing a total filter upstream of the sampling system. Liquid flowrates of the PILS were delivered by peristaltic pumps and set to 1.5ml/min for producing steam inside the PILS and 0.37 ( $\pm$  0.02) ml/min for rinsing the impactor. Cation measurements were performed using an IC (Dionex, model ICS1100) equipped with a 2-mm diameter Auto-Suppression, Cation Self-Regenerating Suppressor (CSRS), a 2-mm diameter CS-12 pre-column and column, and a 100  $\mu$ l injection loop.

15 Analyses were performed in isocratic mode at 20mM of Methanesulfonic Acid (MSA) at a flowrate of 0.25ml/min, for the quantitative determination of the 5 major cations ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ) every 12 min. Based on these IC settings, the detection limit ( $2\sigma$ ) for cations was typically 0.1 ppb, which corresponds to an atmospheric concentration of  $\sim 1 \text{ ng/m}^3$ . Calibration was performed every 2 weeks for concentrations ranging from 10 to 800 ppb and showed a drift below 5% for each cation between the beginning and the end of the campaign. Anion measurements were performed using an IC (Dionex, model

20 ICS2000) equipped with a 2-mm diameter Auto-Suppression, Anion Self-Regenerating Suppressor (ASRS), a 2-mm diameter AS-11 HC pre-column and column, and a 500  $\mu$ l injection loop. Analyses were performed in isocratic mode at 10mM of KOH at a flowrate of 0.25ml/min, for the quantitative determination of the 5 anions (methanesulfonate,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ , oxalate) every 24 min. Based on these IC settings, the detection limit ( $2\sigma$ ) for anions was typically 0.1 ppb, which corresponds to an atmospheric concentration of  $\sim 1 \text{ ng/m}^3$ . Calibration was performed every 2 weeks for concentrations ranging from 10 to 800

25 ppb and showed a drift below 5% for each anion between the beginning and the end of the campaign. To our best knowledge, this is the first time that PILS-IC measurements are reported in PM<sub>10</sub>, providing here a unique opportunity to document water-soluble supermicron ions and sea salt in particular. Quality control of the PILC-IC data was successfully performed by comparison with PM<sub>10</sub> filter (Teflon)-based ion measurements performed in parallel on a 12-h time basis (Leckel, SEQ47/50 model running at 2.3 m<sup>3</sup>/h), with typically less than 20% discrepancies for the major anions/cations.

30

PMA concentration was calculated using these data and the following formula (Brewer, 1975) :

$[\text{PMA}] = [\text{Cl}^-] + [\text{Na}^+] + [\text{ss-Mg}^{2+}] + [\text{ss-SO}_4^{2-}] + [\text{ss-Ca}^{2+}] + [\text{ss-K}^+]$  where  $[\text{ss-X}] / [\text{Na}^+] = 0.13, 0.251, 0.039$  and  $0.036$  corresponding to  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$  and  $\text{K}^+$ , respectively. The ACSM measured the chemical composition of non-refractory PM<sub>1</sub> (Organic matter (OM), Nitrate ( $\text{NO}_3$ ), Sulfate ( $\text{SO}_4$ ), Ammonium ( $\text{NH}_4$ ), Chloride ( $\text{Cl}$ )) with a time resolution of 30 min.

35 The chemical composition of non-refractory submicron aerosol has been continuously monitored using a Quadrupole Aerosol

Chemical Speciation Monitor (Aerodyne Research Inc.), which has been described in detail by Ng et al. (2011). Briefly, PM<sub>2.5</sub> aerosols are sampled at 3 L/min (from a PM<sub>2.5</sub> cyclone inlet) and then sub-sampled at 85 mL/min (volumetric flow) through an aerodynamic lens, focusing submicron particles (40-1000 nm aerodynamic diameter, A.D.) onto a 600 C-heated conical tungsten vaporizer where non-refractory material is flash-vaporized and quasi instantaneously ionized by electron impact at 70 eV. Briefly, the instrument calibration has been performed following the recommendation of Jayne et al. (2000) and Ng et al. (2011), where generated mono-disperse 300 nm A.D. ammonium nitrate particles are injected into both ACSM and a condensation particle counter (CPC) at different concentrations. It has been successfully intercompared against 15 other aerosol mass spectrometers (Crenn et al., 2015; Fröhlich et al., 2015). Quality control of ACSM data was successfully performed by comparison of PM<sub>1</sub> (sum of chemical species measured by ACSM and MAAP (considering that BC aerosols are mainly PM<sub>1</sub>)) with PM<sub>1</sub> obtained with SMPS (with density of 1.5).

The ATOFMS (aerosol time-of-flight mass spectrometer), deployed by University College Cork, measured the vacuum aerodynamic diameter of the individual particles and their chemical composition. A detailed description of the ATOFMS (TSI INC. model 3800) can be found elsewhere (Gard et al., 1997). Briefly, it consists of an aerodynamic focussing lens (TSI AFL100) (Su et al., 2004) that transmits particles in the diameter range 100-3000 nm, a particle sizing region, and a bipolar reflection time-of-flight mass spectrometer. Single particles are desorbed/ionized using a pulsed Nd:YAG laser ( $\lambda = 266$  nm,  $\approx 1$  mJ.pulse<sup>-1</sup>). Positive and negative ion mass spectra of individual aerosol particles are obtained which enable identification of the chemical constituents. The AFL reduces the transmission efficiency of supermicron particles, while variability in the desorption/ionisation laser influence results in qualitative mass spectral signals.

The aerosol optical properties were retrieved from the AERONET/PHOTONS network. We used here the level 1.5 data obtained from the sun-photometer located near Ersa station ([http://aeronet.gsfc.nasa.gov/cgi-bin/type\\_one\\_station\\_opera\\_v2\\_new](http://aeronet.gsfc.nasa.gov/cgi-bin/type_one_station_opera_v2_new)); the Aerosol Optical Thickness (AOD) derived at 8 wavelengths (from 340 to 1640 nm), the angstrom exponent (AE) was calculated using the AOD at 440 and 870 nm, and the volume size distribution was retrieved from the algorithm proposed by Dubovik et al. (2002b). The Single Scattering Albedo (SSA) provides crucial informations related to the ratio of scattering to extinction (scattering plus absorbing) of radiations by aerosols. The sun-photometer data are available several times per day, depending on the solar angle and aerosol loading (Dubovik et al., 2002b). We have also used the aerosol clear-sky instantaneous direct radiative effect in the shortwave derived from sun-photometer measurements, following the methodology proposed by García et al. (2012). The accuracy of AERONET retrievals are discussed by Dubovik and King (2000) and Dubovik et al. (2002a).

Temperature, relative humidity, wind speed and direction measured in real-time during the whole campaign were taken from the Ersa atmospheric station. Because the wind measurements may have been influenced by the orography around the station, we used the wind data provided by the closest Météo-France station (Semaphore station), which was situated about 5 km away

from Ersa and close to the sea. For the sequence of the study, when mentionned local wind measurements, it refers to wind observed at the Semaphore station.

## 2.2 ATOFMS data analysis

The distinction between aged and fresh sea salt was performed according to the detection of chloride and nitrate in the particles.

- 5 For fresh sea salt, we obtained signals for various chloride ions ( $^{81,83}\text{Na}_2\text{Cl}^+$ ,  $^{35,37}\text{Cl}^-$  and  $^{93,95}\text{NaCl}_2^-$ ) and also some nitrate ( $^{46}\text{NO}_2^-$ ,  $^{62}\text{NO}_3^-$ ). The signals for chloride are generally lower and those for nitrate stronger for aged sea salt, due to the replacement of chloride and sodium nitrate formation (Noble and Prather, 1997; Gard et al., 1998). In this case, the relatively small signals for chloride ions is a good indicator of aged sea salt aerosol. The size distribution of aged and fresh sea salts was investigated using this differentiation. Regarding the size distribution, the main limitation is the upper cut-off size of  $3\text{ }\mu\text{m}$  which limits the detection mostly to fine sea salt particles.

- Average mass spectra for aged and fresh are shown in Fig. 1. Both sea salt classes are typical of those observed in other coastal/marine environments (Gard et al., 1998; Dall'Osto et al., 2004; Healy et al., 2010). The positive modes for both fresh and aged particles are similar and are characterised by sodium ions ( $^{23}\text{Na}^+$ ,  $^{46}\text{Na}_2^+$ ,  $^{62}\text{Na}_2\text{O}^+$ ,  $^{63}\text{Na}_2\text{OH}^+$  and  $^{81,83}\text{Na}_2\text{Cl}^+$ ) and  $^{39}\text{K}^+$ . The negative mass spectra for fresh sea salt particles shows peaks for  $^{16}\text{O}^-$ ,  $^{35,37}\text{Cl}^-$ , nitrate ( $^{46}\text{NO}_2^-$ ,  $^{62}\text{NO}_3^-$ ) and  $^{93,95}\text{NaCl}_2^-$ , while the signals for nitrate dominate the aged sea salt negative mode and sodium chloride adducts are virtually absent. The occurrence and relative intensity of the chloride and NaCl adducts in ATOFMS mass spectra are key markers for distinguishing fresh sea salt from aged sea salt. The absence of NaCl ions and strong nitrate signals indicates extensive replacement of Cl by  $\text{NO}_3$ , while the presence of nitrate in the negative mass spectra of the fresh sea salt particles suggests that these are not truly fresh but have also undergone some Cl replacement.

## 2.3 FLEXPART model

- We used the FLEXible PARTicle (FLEXPART) Lagrangian dispersion model (Stohl et al., 1998), version 9.02. FLEXPART in a backward mode during the campaign to identify the sources and the transport time of air masses observed at the Ersa station. The model is driven by wind fields provided by the European Centre for Medium-range Weather Forecast (ECMWF) using both analyses and forecasts with a temporal resolution of 3 hours (00, 06, 12, 18h UTC for analyses and 03, 09, 15, 21h UTC for forecast). The horizontal resolution is  $0.141^\circ \times 0.141^\circ$  and 91 vertical levels are used (137 after 25 June 2013). Turbulence is parameterised solving Langevin equations (Stohl and Thomson, 1999) and the convection parameterisation scheme is adopted from Emanuel and Živkovic-Rothman (1999) for all types of convection. The model calculates trajectories of user-defined ensembles of particles released from a three-dimensional box in backward mode during 6 days. In this study  $10^4$  particles were released at the beginning of each run in a  $100\text{ km} \times 160\text{ km} \times 200\text{ m}$  (lat  $\times$  lon  $\times$  alt) box centred above Cap Corsica (Northern tip of Corsica Island). Backtrajectories were performed for 3 different altitudes : 500 m (bottom and top of the box at 400 m and 600 m respectively) corresponding to the altitude of the measurement site at Ersa, 2,000 m corresponding to an altitude above the boundary layer and 4,000 m corresponding to an altitude where the ATR 42 research aircraft mainly observed dust plumes (Mallet et al., 2016). Besides the particles' positions, FLEXPART also includes cluster analysis for

particle ensembles (Stohl et al., 2002) and the average residence time of particles in the output grid cells. Cluster analysis uses the plume dispersion information (residence time) to calculate, at each time step (3 hours), 10 clusters, (using the k-means clustering) synthesizing the particles dispersion information. All the particles are contained and allocated in these 10 clusters according to their position (latitude, longitude and altitude (Z)). The horizontal resolution for the Flexpart output grid was  $1^\circ \times 1^\circ$  and the vertical resolution was 500 m from the ground up to 9500 m.

## 2.4 Aerosol mass closure

In order to assess the consistency of the chemical data set, we have compared the TEOM PM<sub>10</sub> and PM<sub>1</sub> data with the on-line chemical concentration measurements performed in parallel. PM<sub>10</sub> mass concentrations were compared to the sum of chemical components obtained from the PILS-IC PM<sub>10</sub> data, the BC concentration from the MAAP instrument (PM<sub>2.5</sub>), and the organic matter (OM) concentration derived from the ACSM instrument (PM<sub>1</sub>).

The ratio of the reconstructed mass over the TEOM PM10 mass concentration average 0.79 during the ADRIMED campaign. It is lower during the PMA period ( $0.65 \pm 0.20$ ) compared to the BBP period ( $0.74 \pm 0.23$ ); we do not measure TEOM PM10 during the DUST period. We do not find any significant correlation between missing mass and TEOM PM10 mass, even though the missing mass is globally higher when the PM10 total mass is higher. This lack of aerosol mass could also be due to the mass of (insoluble) dust not determined chemically or possibly a supermicron mode of organic that was not determined here. Indeed, the organic mass fraction can represent more than 10 % of the sea spray mass for aerosols comprised between 1 and 3  $\mu\text{m}$  during period of high biological activity (Gantt and Meskhidze, 2013), this ratio decreasing with increasing sizes. Even though full mass closure has not been reached, there is no impact on the results because the losses do not represent sources by themselves. The three main aerosol types presented in this manuscript have been determined using key chemical tracers (measured by the PILS and ACSM), optical properties (MAAP and nephelometer), FLEXPART back trajectory analysis for confirmation. The combination of these different analyses conducted in this study is found to be coherent and representative of the whole aerosol population.

For this study, the Sulfate ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) and  $\text{NH}_4^+$  data were taken from PILS-IC instrument as the correlation between ACSM and PILS-IC measurements show a very good agreement ( $\text{SO}_4^{2-}(\text{PILS}) = 0.99 \times \text{SO}_4^{2-}(\text{ACSM})$ ),  $r^2 = 0.95$  and  $\text{NH}_4^+(\text{PILS}) = 1.27 \times \text{NH}_4^+(\text{ACSM})$ ,  $r^2 = 0.87$ ).

## 3 Results

### 3.1 Overview of aerosols sources

In this section, the chemical properties of the aerosols measured in Erba (Fig. 3) is first studied, revealing a significant variability in the contribution of the different aerosol species and outlined three main periods, Dust, PMA and BBP, under the influence of different types of air masses and particles. The aerosol physical properties are then discussed in Sect. 3.2.3 and 3.3.1.

The mean  $\text{PM}_{10}$  concentration measured by the TEOM  $\text{PM}_{10}$  during the ADRIMED campaign was  $11.5 \pm 5.4 \mu\text{g m}^{-3}$ . For the majority of the sampling period the mass concentration ranged from 10 to  $20 \mu\text{g m}^{-3}$ , except for short periods when the concentration falls to  $5 \mu\text{g m}^{-3}$ . These decreases are usually due to wet scavenging or to the diurnal variation of the boundary layer, as the Ersa station was within the boundary layer during daytime and sometimes slightly above the boundary layer during night-time (aerosol concentrations at night were often lower when the Ersa site was in the free troposphere). In parallel, the mean  $\text{PM}_1$  concentration measured by the TEOM  $\text{PM}_1$  during ADRIMED was  $6.4 \pm 3.2 \mu\text{g m}^{-3}$ . The concentration was lower during June and rises during the beginning of July to exceed  $10 \mu\text{g m}^{-3}$ .

The major chemical constituents of  $\text{PM}_{10}$  measured at Ersa (Fig. 3) show a significant temporal variability during the campaign. A correlation plot (Fig. 4) illustrates the relationship between the principal chemical constituents,  $\text{PM}_1$  and  $\text{PM}_{10}$  mass concentrations, as well as wind speed and direction. In the figure, the order of the variables appear due to their similarity with one another, through hierarchical analysis (Carslaw and Ropkins, 2012). The color and the number represent the correlation between two variables, when close to 100, the correlation is high. The shape of the ellipse is a visual representation of a scatterplot. We can observe on this figure two groups of variables. The first one composed of  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ , K and  $\text{PM}_{10}$  mass concentration, related to marine or terrestrial influence, while the second one, composed of  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ , BC, Organics and  $\text{PM}_1$  mass concentration, is related to pollution influence. Three main periods under the influence of different types of air masses and aerosols have been selected here and discussed in more details below.

The first period (16 to 20 June) corresponds to a dust outbreak and is characterised by the concentration of non-sea-salt Calcium ( $\text{nss-Ca}^{2+}$ ) concentration, a proxy of desert dust (Sciare et al., 2003), which increases from 0.5 to  $2 \mu\text{g m}^{-3}$ . This dust event lasted a few days, from 16 to 20 June, with  $\text{nss-Ca}^{2+}$  concentrations peaking on 18 June at  $2 \mu\text{g m}^{-3}$  at the Ersa site. In addition, the concentrations of calcium measured by the PILS-IC are relatively low for a dust event, because the maximum concentration of dust particles was located at an altitude ranging between 3 to 6 km (Denjean et al., 2016). The second reason concerns the method used by the PILS-IC instrument that analyzes only the soluble fraction of aerosols, while a significant part of dust Ca is insoluble. In that sense, the concentration of  $\text{nss-Ca}^{2+}$  determined by PILS-IC remains a qualitative indicator of the presence of dust particles.

PILS-IC measurements also indicate an increase in the concentrations of Oxalate, potassium,  $\text{SO}_4^{2-}$  and  $\text{NH}_4^+$  from 5 to 9 July, which corresponds to BBP influences. A brief increase of  $\text{NO}_3^-$  concentrations (PILS-IC) was recorded on 5 and 6 July (Fig. 3). This event was also detected by the ACSM. Indeed, there is a difference of a factor of two in terms of total mass concentrations between the first part of the campaign (6 June to 4 July) and during the BBP period. During the first period (6 June to 4 July), the mass concentration of each aerosol species is low, characterized by a mean total concentration of  $3.7 \pm 1.6 \mu\text{g m}^{-3}$ . During the second identified period (4 to 13 July), the total  $\text{PM}_1$  aerosol mass concentration increases suddenly to reach a mean of  $7.2 \pm 1.7 \mu\text{g m}^{-3}$ . Similarly, the total  $\text{PM}_{10}$  mass concentration measured by the TEOM increases from  $5.9 \pm 3.0$  to  $8.4 \pm 3.3 \mu\text{g m}^{-3}$ . This increase is mainly due to a large addition of the concentration of submicronic organics compounds (from  $2.1 \pm 0.9 \mu\text{g m}^{-3}$  to  $4.1 \pm 1.2 \mu\text{g m}^{-3}$ ) and an increase of  $\text{SO}_4^{2-}$  (and  $\text{NH}_4^+$ ) from  $0.9 \pm 0.6$  ( $0.5 \pm 0.3$ ) to  $1.8 \pm 0.6$  ( $0.9 \pm 0.3$ )  $\mu\text{g m}^{-3}$ . Organics, sulfate and ammonium concentrations remain high until 10 July after which they decrease, but

to values still higher than during the month of June. In parallel, the black carbon (BC) concentration is found to be low during the whole period of the campaign, although we observe an increase during July (mean of  $0.41 \pm 0.11 \mu\text{g m}^{-3}$ ) compared to June (mean of  $0.28 \pm 0.11 \mu\text{g m}^{-3}$ ). For a few days and during the PMA period, the concentration of BC is found to be very low ( $0.20 \pm 0.09 \mu\text{g m}^{-3}$ ) and recover its previous concentration until 3 July. The highest BC concentration ( $0.75 \mu\text{g m}^{-3}$ ) was reached on 5 July. The ACSM observations clearly indicate that concentrations of all the chemical components during the BBP episode are twice the concentration they had during the first period of the ADRIMED campaign. Similar episodes of european origin and biomass burning events were studied by Ripoll et al. (2015) in a Mediterranean site, with an increase of the concentration of  $\text{PM}_{10}$  nitrate (6 times higher than the annual average), sulfate (about 3 times higher than the annual average), ammonium (more than 4 times higher than the annual average), OM (about 2 times higher than the annual average) and potassium (2 times higher than the annual average).

Our observations reveal that the mean concentration of inorganic PMA (averaged for the months of June and July 2013) was found to be low with a value of  $0.76 \pm 1.04 \mu\text{g m}^{-3}$  (Fig. 3). However, during PMA period, the concentration of PMA increases up to  $6.5 \mu\text{g m}^{-3}$ , with a mean concentration of  $3.2 \pm 1.8 \mu\text{g m}^{-3}$ . For this specific period, the mass of PMA represents, on average, 22 % of the total mass measured by the TEOM  $\text{PM}_{10}$  instrument, while the average contribution was about 7 % for the whole period of observations. At the Ersu station, the highest concentration of PMA was reached on 24 June, when PMA concentration represents 40 % of hourly  $\text{PM}_{10}$  mass concentration for 25 % of the data (Fig. 5). Even though the mean values of PMA mass concentration measured at Ersu were low compared to values referenced at other Mediterranean sites, this contribution still remains significant. Indeed, Pey et al. (2009) reported a ratio of 10 % of sea spray (sum of Na and  $\text{Cl}^-$  mass concentrations from Quartz fibre filter) to  $\text{PM}_{10}$  (annual mean =  $2.9 \mu\text{g m}^{-3}$ ) in Mallorca Island (117 m.asl), while Bardouki et al. (2003) found a contribution of 40% of PMA in the coarse mode of inorganic ions during summer at Finokalia (150 m. asl, Crete Island). Querol et al. (2009) analysed the chemical composition of  $\text{PM}_{10}$  aerosols in the Mediterranean Basin and found a mean annual contribution of sea spray to  $\text{PM}_{10}$  that did not exceed 24%. So the contribution of inorganic sea salt to the  $\text{PM}_{10}$  mass concentration in the Mediterranean Basin is on average lower than 20% but can reach 40% during particular events such as the one observed at Ersu in June 2013. Moreover, sea spray likely comprises a substantial fraction of organic PMA and hence may represent a larger fraction of  $\text{PM}_{10}$  than the one estimated solely from the inorganic fraction (Gantt and Meskhidze, 2013). Furthermore, while the contribution of PMA to  $\text{PM}_{10}$  mass concentration is high during PMA period, the mass contribution of nss-ions to the total ionic content is relatively low during the PMA period ( $53 \pm 11 \%$ ). In comparison, the mass contribution of nss-ions to the total ionic content is  $84 \pm 5 \%$  for the ADRIMED field campaign, and is  $82 \pm 14 \%$  and  $92 \pm 3 \%$  for the Dust and BBP periods respectively. Furthermore, the  $\text{Ca}^{2+}$  concentration measured during the PMA period (up to  $2 \mu\text{g m}^{-3}$ ) indicates the presence of dust particles, probably related to strong winds lifting soil/dust in the vicinity of the Ersu station (Arndt et al., 2017). However, unlike the Dust period, they do not represent the dominant aerosol influence during the PMA period.

However, unlike the dust period (16 - 20 June), the major aerosol influence during the PMA period is PMA, with a mass concentration reaching  $6.5 \mu\text{g m}^{-3}$ , so three times higher than  $\text{nss-Ca}^{2+}$  mass concentration. Indeed, during the dust period, PMA mass concentration is low ( $0.4 \pm 0.3 \mu\text{g m}^{-3}$ ) and so the main aerosol mass contribution are dust particles.

### 3.1.1 Origins and time of residence of the different air-masses observed at Ersa

5 The origin of air masses impacting Ersa for the three different periods depicted in Fig. 3 has been investigated using FLEXPART model in order to characterise the transport time and the emitting sources of these aerosols.

Figure 7a represents the time series computed from FLEXPART clusters backtrajectories. The upper one represents the transport of the air masses passing over different regions before reaching the Ersa station. These different zones take into account the regions influenced by anthropogenic pollution, biomass burning and marine influences and are represented in Fig. 10 6. They represent the most probable influence on air masses arriving in Cap Corsica due to their close locations and specific emissions. For each day during the campaign (bottom axes), the upper figure indicates the different zones through which the air masses passed before reaching Ersa. The bottom figure indicates the transport time from these zones to the Ersa sample site.

In general, the Ersa station was influenced by air masses coming from West and South during the first part of the field campaign (from 6 to 26 June), and was more influenced by air masses coming from East and North during the last part of the 15 campaign (26 June to 13 July). During the campaign, Ersa was always affected by air masses that passed over French or Italian coastal areas. The influence of the Mediterranean coasts of Spain is also very present during the campaign, especially in the first part of June.

In terms of transport time, FLEXPART simulations indicate that air masses spent a few hours to several days over the sea after leaving the French or Italian coasts, and from 2 to 6 days from continental European sources. Coastal regions are likely 20 the source of pollution-anthropogenic impacted air masses, because they are highly industrialized and populated and are the last major source of anthropogenic aerosols before transport over the Mediterranean Sea. At the local scale, Ersa was mostly under the influence of a westerly wind ( $\simeq 270^\circ$ ) (Fig. 3) from the beginning of the campaign to the beginning of July, except for a few days during the dust outbreak (from 16 to 20 June), where it was under a South-Eastern influence ( $\simeq 150^\circ$ ). Finally, from 4 to 9 July, Ersa was experiencing mostly an Easterly wind ( $\simeq 100^\circ$ ).

25 The influence of Southerly air masses is marked by the passage of air masses above North Africa, at the beginning of the campaign (19 June, Fig. 8). The transport time of air masses from Northern Africa to Ersa ranges between 2 to 6 days. Such air masses contain important concentrations of mineral dust particles, which are usually transported at higher altitudes over the Mediterranean basin, in the free troposphere and up to 9 km in altitude (Denjean et al., 2016; Hamonou et al., 1999; Dulac and Chazette, 2003; Di Iorio et al., 2009; Mona et al., 2006; Gómez-Amo et al., 2011). Thus, we also performed simulations 30 starting at 4000 m asl., that show that the air masses arriving at Cap Corsica on 19 and 20 June were within the boundary layer ( $< 1000$  m) over Tunisia and Algeria from 2 to 3 days before. At the Ersa site, during the dust outbreak, around 19 June, the wind speed reached  $15 \text{ m s}^{-1}$ .

Besides the coastal anthropogenic influence observed during the first week of July, Fig. 8 shows that the air masses came from Eastern Europe from 7-12 July and in particular from Ukraine 3-4 days before reaching Ersa. The date at which the air

masses passed over these regions correspond to important emissions of biomass burning observed near the Black Sea as shown by the MODIS satellite retrievals (<http://rapidfire.sci.gsfc.nasa.gov/cgi-bin/imagery/firemaps.cgi>).

FLEXPART back-trajectory simulations also show that during the PMA period, air masses were coming from the North-West of Cap Corsica, including Gulf of Lion. This is consistent with a higher PMA concentration in Ersa, as a longer fetch leads to higher mass concentration. Our simulations reveal that these air masses were also influenced by anthropogenic sources from France and Italy. The study of the transport of air masses passing over maritime zones (Fig. 7b), and especially Gulf of Lion and North Atlantic zones gives us information about the transport time from the source regions to Ersa and their altitude. Our simulations indicate that the mean transport time from the Gulf of Lion is less than a day for the whole period except for the last day, 26 June. Whereas from the North Atlantic zone (Bay of Biscay), the transport time is at least more than 2.5 days and increases up to 4.5 days for 26 June (Table 1). Almost no precipitation occurred during this period between the Bay of Biscay and Corsica, so these air masses were likely not impacted by wet scavenging.

The mean altitude for the air masses coming from Gulf of Lion is close to 1000 m ( $972 \text{ m} \pm 753$ ) for the 5 days, with minima mainly below 500 m, while the mean altitude from the North Atlantic is 1374 m ( $\pm 828$ ) and the minimum being below 800 m only for the first 3 days. Tsyro et al. (2011) reported that the concentration of sea salt aerosols associated to emissions was highest until altitudes of 600-700 m, which correspond typically to the Marine boundary layer (MBL) height. Thus an influence from the North Atlantic Ocean would occur more likely during the first 3 days of the period, when the air masses lay within the MBL. Concerning the Gulf of Lion, the altitudes of the air masses are low enough to bring sea salt aerosols in Ersa. While vertical transport is not well captured in the model, FLEXPART model indicates that most of the PMA aerosol mass is transported in the MBL.

To summarize, our FLEXPART simulations clearly indicate that the Ersa site was impacted by a disperse set of air masses coming from different regions transporting different types of aerosols, and these FLEXPART results are consistent with chemical measurements obtained at Ersa station, as well as the three periods discussed here.

The following sections will focus on the optical, physical and chemical properties of aerosols sampled during the PMA period. The Dust and BBP events will be used as a comparison for different states of the atmosphere impacting the Ersa site.

## 3.2 Primary marine aerosols

### 3.2.1 PMA ageing

As reported by Clegg and Brimblecombe (1985) and Quinn and Bates (2005), the ratio of the concentration of  $\text{Cl}^-$  over  $\text{Na}^+$  is an indicator of the chloride depletion that happens when PMA react with acidic gases like  $\text{HNO}_3$  and  $\text{H}_2\text{SO}_4$  according to the chemical reactions R1, R2 and R3:





These reactions result in a loss of particulate chloride in PMA during transport. The typical mass ratio of  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  of the sea water is 1.8 (Lewis and Schwartz, 2004); however, the study of  $\text{PM}_{10}$  PMA in the Mediterranean basin by Schwier et al. (2016) shows a  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  ratio of 1.2. Numerous values are referenced over the Mediterranean basin; 0.6 for long-term measurements (July 2012 - April 2013) in Ersa station (Nicolas, 2013), 0.49 by Mihalopoulos et al. (1997), 1.00 by Koulouri et al. (2008) and 1.2 during summer by Bardouki et al. (2003) in Finokalia (Eastern Mediterranean, Crete Island) and 1.2 during summer in the Eastern Mediterranean coast of Turkey by Koçak et al. (2004). These values are found to be low compared to the seawater ratio, especially for Mihalopoulos et al. (1997), probably related to the high reactivity of chloride with acidic gases that are present in relatively high concentrations in the Mediterranean atmosphere (Sellegrì et al., 2001; Bardouki et al., 2003; Pey et al., 2009). A good correlation was found between  $\text{Na}^+$  mass concentration and the sum of  $\text{Cl}^- + \text{NO}_3^-$  mass concentrations ( $\text{PM}_{10}$  measurements) ( $r^2 = 0.87$ ) indicating that  $\text{NO}_3^-$  is the main component interacting with sea salt.

During PMA period, the  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  mass ratio varies between 0.13 and 1.3 (Fig. 9), with a mean of  $0.59 \pm 0.23$ . This result is consistent with the long term measurement performed between July 2012 and April 2013 at Ersa (Nicolas, 2013). This indicates that PMA measured in Ersa (and throughout the Mediterranean Basin) were predominantly aged.

To distinguish 'mostly aged' and 'mostly fresh' PMA, we used a spectral analysis of the ATOFMS measurements. The terms fresh and aged PMA that will be used from now in this text correspond to the classification made with the ATOFMS. During the ChArMEx-ADRIED campaign, an alternation between these two states of PMA was detected.

The size distribution of these two ATOFMS sea salt types were fitted according to a sum of lognormal modes. The fresh PMA were characterised by one mode with a vacuum aerodynamic diameter of  $1.29 \mu\text{m}$  and a standard deviation  $\sigma$  of 1.34, while the aged PMA were characterised by 3 different modes, as detailed in Table 2.

Our results show that during the campaign aged PMA are dominant, but during PMA period (22-26 June), when the wind near Cap Corsica is higher (Sect. 3.2.2), there is an alternation of short events of fresh or aged PMA, with a dominance of fresh PMA. The comparison of the ATOFMS and PILS data show a relatively good agreement between the two instruments regarding the dominance of fresh and aged PMA (Fig. 9).

To compare the two instruments, we looked at the count ratio Aged/Fresh PMA, and attributed a state to the  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  ratio measured by the PILS-IC. For a large number of measurements only aged aerosols were detected and attributed as 'Only aged' state. When the count ratio of Aged aerosols over Fresh aerosols was higher than one, the measurements were characterised as 'Mostly Aged', and less than one the PMA were considered 'Mostly Fresh'. One can observe in Fig. 9 that the  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  ratio is higher when the ATOFMS distinguished fresh PMA, and lower when the ATOFMS distinguished aged PMA. We then determined the mean  $\text{Cl}^-/\text{Na}^+$  ratio for mostly aged ( $0.38 \pm 0.15$ ) and mostly fresh PMA ( $0.62 \pm 0.17$ ). In our observations,

the mostly fresh PMA ratio remains low compared to the initial ratio of 1.8 (Lewis and Schwartz, 2004) or even 1.2 for PM<sub>1</sub> PMA (Schwier et al. (2016)), revealing that even though PMA are characterized as 'fresh', they have undergone chemical reactions before reaching Ersa station.

### 3.2.2 PMA sources

- 5 Complementary to the FLEXPART results, we used wind measurements at the Semaphore station, at the Gulf of Lion buoy and at the Bay of Biscay buoy to investigate the possible relationship between the increase in PMA concentration observed in Ersa and the wind speed at these stations, and better assess the origin of sea salt aerosols at Ersa.

During the ChArMEx/ADRIED campaign, the majority of air masses analysed containing PMA were coming locally from the West and the concentration of marine particles increased with wind speed (Fig. 10a). The wind direction is constant around 10 270° for 6 days (21-26 June), and fluctuates afterwards between East and West origins. The maximum wind speed (20 m s<sup>-1</sup>) encountered during the campaign was observed on 24 June, coinciding with the highest sea salt mass concentration measured.

To investigate the relationship between wind speed and concentration of PMA measured in Ersa, we averaged its concentration by wind bins of 1 m s<sup>-1</sup> for different cases. We first looked at the relationship between the concentration of PMA in Ersa and the wind speed measured at the Semaphore for the whole period of the campaign (Fig. 10a). The result indicates a 15 relationship between the wind speed and PMA concentration and the best fit ( $r^2=0.92$ ) is presented in the form of  $\ln [PMA] = a \times WS + \ln(M_0)$ , where WS corresponds to the wind speed,  $M_0$  ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) to the concentration that corresponds to a wind speed WS=0. The error bars correspond to  $2\sigma$  rms (root mean square). Above 13 m s<sup>-1</sup>, the concentration starts to rise rapidly. The relationship described here is compared with fit parameters found by Bressan and Lepple (1985); Taylor and Wu (1992); Marks (1990) (Lewis and Schwartz, 2004) chosen because the time resolution of the measurements were similar to those in Ersa and 20 the wind speed encountered during their measurements were in the same range as in Ersa during the campaign. Despite the high correlation between PMA concentration and wind speed shown here, our results yield mass concentrations at least an order of magnitude less than other studies shown in Fig. 10. This difference is probably related to the sampling altitudes, which for our study was 533 m.asl, and  $\sim 10$  m asl above sea surface for Bressan and Lepple (1985); Taylor and Wu (1992) and Marks (1990). This is contrary to Fomba et al. (2014) who did not find a significant correlation between PMA concentrations 25 and wind speed in Cap Verde, even though they found an increase of PMA concentration on days of higher wind speeds. Sellegri et al. (2001) had difficulties to establish a relation between local emission of PMA and wind speed measurements using instrumentation with a long integration time during the FETCH campaign, in accordance with previous results of Quinn et al. (2000). Shinozuka et al. (2004) found that the wind speed was a good indicator for a measuring period but not for a specific case.

- 30 To investigate the origin of PMA in function of their ageing, we distinguished the air masses that contain fresh or aged PMA, using the method defined in Sect. 3.2.1, for the whole campaign. We observe that the concentration of aged PMA (Fig. 10b) is constant and does not depend on the local wind speed, which suggest that the Ersa site is always impacted by long range transport containing aged PMA, even if the concentration is low ( $0.6 \pm 0.2 \mu\text{g m}^{-3}$ ). In the contrary, we observe that fresh PMA concentration measured at Ersa (Fig. 10b) is highly dependant of the wind speed, following a fit of the form ( $\ln [PMA]$

$= a \times WS + \ln(M_0)$  with a correct correlation ( $r^2 = 0.59$ ). This result indicates that the highest concentration of PMA measured in Ersa during the campaign corresponds to fresher aerosols, and is dependent on the local meteorological conditions.

We then compared the wind speed at the two probable regions of emission, Gulf of Lion and Bay of Biscay, to the concentration of PMA, using FLEXPART results, for the PMA period (22-26 June). To account for the transport time of PMA, we added a delay of 12 hours that corresponds to the mean transport time from the Gulf of Lion to Ersa modelled with FLEXPART for the PMA period and 60h for the Bay of Biscay (Fig. 11b and Fig. 11c respectively). This work was done for the PMA period, from 22-26 June. In Fig. 11a, the correlation between the mass concentration of PMA and the wind speed at Ersa is good for fresh PMA ( $r^2 = 0.71$ ) (Fig. 11a) as presented in the previous paragraph for the whole campaign. For the Gulf of Lion (Fig. 11b)), the correlation is good for aged PMA (red curve,  $r^2 = 0.87$ ) while there is no correlation following this fit for fresh PMA and wind speed at the Gulf of Lion. The same analysis was done for the Bay of Biscay (Fig. 11c) but no correlation was found for fresh, aged PMA or all the PMA regardless of their ageing.

According to these results, during the PMA period, the PMA that were measured in Ersa were a mixture of fresh PMA emitted near the Ersa station and of aged PMA emitted from the Gulf of Lion. It should be noted that measurements of PMA have also been made when the air masses were coming from the East, but the concentrations were lower ( $< 2 \mu\text{g m}^{-3}$ ).

From these results, the most probable zone that brings PMA to Ersa during ADRIMED regarding altitude, transport time of air masses and local wind speed would be the Gulf of Lion and the sea close to Ersa, considering that the buoy at the Bay of Biscay represents the wind speed of the area. Beyond the scope of this work, an analysis of the emission and transport of marine aerosols during this PMA period is ongoing, using the Meso-NH model.

### 3.2.3 PMA physical properties in comparison with Dust and BBP periods

This PMA period represents the background atmospheric conditions that affect Ersa most of the time. In this section, the number and volume size distribution of PMA are investigated, as they are fundamental parameters to estimate the aerosol radiative effects, after an overview of the ADRIMED field campaign. A comparison with two sporadic events (Dust and BBP) that influence Ersa principally in spring and summer is also carried out.

The total number concentration (CPC + OPS) during the campaign observe a mean value of  $1900 \pm 920 \text{ cm}^{-3}$  with several short episodes (few hours) of high concentrations ( $> 5000 \text{ cm}^{-3}$ ) at the end of June. Thus, the background number concentration is higher than what is usually measured in a marine pristine site ( $300\text{-}600 \text{ cm}^{-3}$ ) (D O'Dowd and De Leeuw, 2007) and denotes a contamination by other sources, principally from continental Europe, as Ersa is not affected by immediately local sources. In parallel, the number size distributions measured by the SMPS show that the particles detected during these short episodes of high concentration have diameters below 50 nm and probably corresponds to new particles during transport over the Mediterranean sea.

During this field campaign, the fine and accumulation modes ( $10 \text{ nm} < D_p < 600 \text{ nm}$ ) were dominant in number. Furthermore, the concentration of these two modes rises in the beginning of July, in particular the accumulation mode, following the scheme already mentioned in the previous section for  $\text{PM}_{10}$  particles. Hence, the ratio of the number concentration from 4-13 July over the number concentration from 6 June to 3 July is greater than 2 for particle diameters greater than  $0.24 \mu\text{m}$  and  $0.52$

$\mu\text{m}$ . This ratio reaches its highest value for particles diameter of  $0.4 \mu\text{m}$ .

Before conducting comparisons on sea salt physical properties, the PMA period was divided into several shorter periods according to their ageing (see Sect. 3.2.1), that will be called ‘ageing periods’. In addition, we chose a supplementary period (1-4 July) corresponding to low PMA concentration when it does not exceed the background concentration ( $0.76 \mu\text{g m}^{-3}$ ). The number and volume size distribution were averaged over the ageing periods and fitted under the assumption that the distribution is a sum of lognormal modes to investigate if the ageing of PMA could be characterized by their size distributions. Three to six modes were necessary to fit the observed dry size distributions.

For the number size distribution, a large variety of Aitken and accumulation mode can be derived when comparing the different periods. They show a large variety of diameters and concentration whether they contain low or high PMA concentration, aged or fresh. However, a coarse mode (modal diameter of  $1.2 \mu\text{m}$ ) appears for all the size distributions containing PMA, for both aged and fresh aerosols. This mode does not exist when the concentration of PMA is within the background. The concentration of this mode seems to be higher for fresh than aged PMA which is probably due to dry deposition during transport. As we did not find any significant difference between the size distribution of aged and fresh PMA, they are merged for the sequence of the analysis as PMA size distribution over PMA period.

The number and volume size distribution have been averaged for each periods; Dust, PMA and BBP (Fig. 12). We chose to average the most intense part of each period to extract the representative properties of each aerosol type. Thus, although the dust event starts on 16 to end on 20, we analysed the size distribution obtained from 17 00 UTC to 19 June 24 UTC. Likewise, the study of the size distribution for PMA and BBP aerosols are from 23 June 00 UTC to 25 June 24 UTC and from 9 July 00 UTC to 11 July 24 UTC, respectively. The results are summarized in Table 3. The highest number concentration for PMA period was for particles of modal diameter of 40 nm, followed by a mode at 130 nm and a third mode at  $1.2 \mu\text{m}$ . We find a good agreement of modal diameters with the size distribution measured by Ovadnevaite et al. (2014) in the parametrisation of the emission of PMA from the Atlantic Ocean. Furthermore, our results agree with measurements performed in the Mediterranean Sea by Schwier et al. (2015). We observed a high number concentration of fine particles during PMA period, which is consistent with measurements reported in Fig. 12 a. The modal diameter of these fine particles is situated at 40 nm. This mode was also measured by Schwier et al. (2015) at  $d=37.5 \text{ nm} \pm 1.4$  during PMA flux measurements from Mediterranean waters. The second mode has a modal diameter of 130 nm, which is somewhat higher than the 90 nm mode found by Schwier et al. (2015), which is related to the presence of aged particles during our study.

We find important distinctions between the three different periods as reported in Fig. 12a. As expected, during the dust event, the number size distribution is higher for the largest particles (3 to  $10 \mu\text{m}$  size range). During BBP period, the dominant mode of the number size distribution is located around 200 nm and the number concentration of particles greater than 500 nm is found to be low ( $65 \pm 14 \text{ cm}^{-3}$ ). This result is consistent with the typical number concentration of biomass burning aerosols that peaks in the size range of 100-200 nm (Guyon et al., 2005; Reid et al., 2005; Andreae et al., 2007). As these hydrophilic

aerosols are subject to increases in size when they age during transport (Andreae and Rosenfeld, 2008), this is consistent with our observations of a mode centred at 200 nm as they were transported for 3-4 days before reaching Ersä.

Looking at the volume size distribution is a way to distinguish the particles that have the greatest impact on the mass concentration, i.e. the coarser particles. On average, during the ADRIMED period the mean total volume concentration (CPC + OPS) is  $40 \pm 16 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ , and the volume concentration of smallest particles ( $d < 500 \text{ nm}$ ) is  $22 \pm 11 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$  while the coarser particles ( $d > 500 \text{ nm}$ ) is  $16 \pm 9 \mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ .

The volume size distribution shows different patterns for the Dust, PMA and BBP periods. We distinguish a coarser mode between 20-27 June, including PMA period, with a modal diameter of  $1.6 \mu\text{m}$ . Marine aerosols whose diameters are greater than  $1 \mu\text{m}$  are largely inorganic sea salt (O'Dowd et al., 2004). A coarse mode is also observed around 19 June (Dust period) with diameters between  $5\text{--}7 \mu\text{m}$ , that probably corresponds to mineral dust particles in accordance with the volume size distributions measured on-board the ATR-42 aircraft (Denjean et al., 2016). Figure 12b shows two dominant modes during the dust period; one at a dry diameter of  $0.18 \mu\text{m}$  and the second one around  $2.4 \mu\text{m}$ . Finally, the BBP event is found to be dominated by a mode at 320 nm, and the volume concentration of the coarse mode is here very low.

We have also compared the results of the in-situ surface volume size distributions with AERONET/PHOTONS retrievals (Fig. 13). AERONET data are used as a comparison to the in-situ measurements, as they are derived from an algorithm, averaged over a few days period, and with a limited number of measurements (7 available for the PMA period). Concerning Dust and PMA periods, the coarse modes measured by OPS and SMPS are consistent with the atmospheric column volume size distribution and contributes to the largest fraction of aerosol mass, even though a fine mode is also detected during dust period. During the BBP period, both observations (in-situ and AERONET) clearly indicate volume size distributions largely dominated by the fine mode. The difference of size distribution between the three periods is higher for AERONET data than for the in-situ data. For the Dust period, the reason is that the main part of the dust plume was situated in altitude (3 to 6 km). For the PMA period, the hygroscopic growth of marine aerosols can explain a shift in the diameter modes. There also might be a loss of supermicron mode particles before they reach the OPS, which has an impact for the PMA and Dust periods.

These three periods are characterized by different volume size distribution (in-situ measurements), as summarized in Table 3. The Dust and PMA periods are characterized by coarser particles, with a modal diameter of  $2.4$  and  $1.6 \mu\text{m}$  respectively, while the BBP period is characterized by particles in the accumulation mode with modal diameter of 320 nm.

### 3.2.4 PMA optical properties and local shortwave direct radiative effect in comparison with Dust and BBP periods

In addition to chemical and size distribution aerosol properties, we also determined optical properties providing AOD at the measuring site, as well as the SSA and AE obtained for the whole atmospheric column from AERONET/PHOTONS observations (Dubovik et al., 2002b) and their spectral dependences in the solar spectral region. These results are summarized in Table 4. As in the previous part, a comparison with Dust and BBP period was also realized.

First, the AOD retrievals provide information about the loading of aerosols within the atmospheric column. During the ChArMEx-ADRI-MED campaign, AOD (at 500 nm) was found to be moderate, with an average of  $0.15 \pm 0.08$  (Fig. 14 a). Such values are consistent with the site location and aerosol concentration (see part 3.3.1), Ersä being not impacted by local

pollution or high anthropogenic sources. In that sense, the AOD background is low, typical of a rural site. However, from the beginning of July to the end of the campaign, the AOD increases to values up to 0.6 with a higher wavelength dependency.

AOD is lowest during PMA event (22-26 June), with a mean value of  $0.11 \pm 0.08$  at 500 nm, close to those reported over the Mediterranean basin (Smirnov et al., 2002; Pace et al., 2006; Fotiadi et al., 2006). Smirnov et al. (1995) found that for clean oceanic conditions, AOD was below 0.1 (at 550 nm) and Pace et al. (2006) found an average value of 0.11 for the same marine conditions. In the Mediterranean sea in particular, Fotiadi et al. (2006) reported a value of 0.15 in Crete for background situation corresponding to marine aerosols and Mishra et al. (2014) found a mean AOD over the Eastern Mediterranean for marine aerosols (June-August 2010) of  $0.06 \pm 0.01$ . Furthermore, it should be noted that AOD is not very sensitive to the wavelengths during these 5 days, due to the presence of coarse particles.

AOD is higher during the dust event, reaching 0.3 (at 500 nm) (Fig. 14), corresponding to a relatively low value for a dust outbreak occurring over the Mediterranean basin (Mallet et al., 2016). AOD can reach values above one (Guerrero-Rascado et al. (2009), over the Western Mediterranean) and even up to two (Di Sarra et al. (2011) over Lampedusa). As observed during PMA period, AOD is not sensitive to wavelengths during the dust event, denoting the presence of coarse particles. AOD showed a very different pattern during the last part of the campaign, reaching higher values and showing a strong dependence to the wavelengths. AOD thus exceeds 0.4 in the middle of July and is higher for shorter wavelengths. It denotes a significant contribution of small particles to the solar extinction, in accordance with SMPS and TEOM PM<sub>1</sub> observations previously presented and during the BBP period. The AOD values are much higher for these two periods than during PMA period.

For PMA episode, AE varied between 0.4 and 2, with a mean value of 1.3, which is below the mean value of the ADRIMED campaign (1.8) (Fig. 14 b). AE also decreased to 1.15 for 24 June, when PMA concentration is the highest. Such a value is characteristic of clean ocean regions as reported by Smirnov et al. (2002), who found values between 0.3 and 0.7. In addition, Pace et al. (2006) and Fotiadi et al. (2006) reported AE comprised between 0.7 and 1 for background marine atmosphere over the Central and Eastern Mediterranean. The AE measured at the Ersa station during PMA event is not as low as these referenced values and could indicate a possible mixing between sea-salt and other aerosols, as the Western Mediterranean is under the permanent influence of continental sources. This point is also consistent with the observed number size distribution, which showed that the number concentration of fine particles was high during PMA event, indicating pollution particles from European continent.

A high variability was also found during Dust period. Indeed, AE fluctuated between 1-2, which are not typical values observed for desert dust particles, which generally tends toward values less than one, denoting a majority of coarse particles (Dubovik et al., 2002a). In that sense, the higher values observed at Ersa could be due to the possible mixing of particles in the atmosphere during these days, by the weak intensity of the dust outbreak observed during ADRIMED or by the possible deposition of the coarser dust particles during transport. Finally and during BBP period, AE was found to be mostly above two. Its pattern follows a clear diurnal variation, with a maximum around 12 UTC and a minimum in the beginning and in the end of the day. AE observed during this period is stable for almost a week, from 4-10 July. The largest difference noted for AE between Dust, PMA and BBP periods is in their internal variability. For the first two periods, a mixing and high variability is

found while for the last period, AE is constant for more than 5 days, showing that the atmosphere is mostly under the influence of the same aerosol type.

Overall, SSA observed during the campaign remained relatively high, with values above 0.90 for most of the period, associated to a spectral dependence less than 0.05 (from 440 to 870 nm). In that sense, the presence of absorbing particles is shown to be sporadic and lasted no more than a few hours. During PMA period, SSA was found close to unity (mean of  $0.98 \pm 0.02$ ) (not shown here), indicating significant scattering optical properties, consistent with marine aerosols optical properties in the solar range (Lewis and Schwartz, 2004). During Dust period, 16-20 June, SSA decreased to values between 0.90 to 0.95 (at 440 nm), indicating moderate absorbing properties, which are characteristics of desert dust over the Mediterranean basin (Mallet et al., 2013). Finally and during BBP period, we observed a higher wavelengths dependency, with SSA values oscillating between 0.90 and 1.0 (at 440 nm).

In addition to the atmospheric column informations, over the entire period of the campaign, nephelometer measurements reveal that the scattering due to particles was relatively low (mean of  $37 \text{ Mm}^{-1} \pm 20$ , at 550 nm) and not sensitive to wavelength during June and in particular during Dust and PMA periods (Fig. 14 c). This is in contrast to July, where higher scattering coefficients (mean of  $48 \text{ Mm}^{-1} \pm 24$ ) associated with higher AE (AE July mean of  $2.1 \pm 0.2$ , AE June mean of  $1.6 \pm 0.5$ ) are observed.

During Dust and PMA period, the scattering coefficient remains low (mean of  $28 \pm 11 \text{ Mm}^{-1}$  and  $28 \pm 11 \text{ Mm}^{-1}$  respectively). PMA period is characterised by a relatively weak wavelength dependency (Fig. 14 c). While the mixing of dust with fine particles, previously shown by the AERONET volume size distribution, is shown here by a relatively high wavelength dependency (mean of  $20 \pm 9 \text{ Mm}^{-1}$ ). On the contrary, during BBP period, the wavelength dependency is the highest (mean of  $49 \pm 15 \text{ Mm}^{-1}$  between 450 nm and 700 nm), and the scattering coefficient reaches highest values (up to  $137 \text{ Mm}^{-1}$ ). This clearly indicates that aerosols are smaller in size during this period, which is well consistent with AERONET/PHOTONS data and  $\text{PM}_{10}$  concentrations obtained at Ersa station.

The optical characteristics (AOD, SSA and AE) of the air masses during the PMA event are found to be consistent with the literature (Smirnov et al., 2002; Pace et al., 2006), even though a mixing with continental fine particles was also detected.

In parallel to optical properties observations, the local 1-D (clear-sky) direct radiative effect (DRE) in the short wave (SW) spectral region has been estimated using AERONET/PHOTONS retrievals (García et al., 2008) for each identified period. DRE is calculated here at two different atmospheric levels, at the surface (or bottom of the atmosphere, BOA) and at the top of the atmosphere (TOA). Figure 15b indicates the SW DRE at BOA for different AOD and different solar angles observed during the experiment. The estimated values show a significant variability with instantaneous DRE comprised between -5 to  $-40 \text{ W m}^{-2}$ , depending on the aerosol regimes. Figure 15 a and b) indicates that PMA period is characterized by moderate TOA DRE (mean of  $-8 \pm 3 \text{ W m}^{-2}$ ) and BOA DRE (mean of  $-11 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$ ). Such estimates at Ersa station are found to be consistent with sea salt direct SW effects documented by Lundgren et al. (2013) using COSMO-ART model over the Mediterranean basin, who reported a SW DRE from -5 to  $-10 \text{ W m}^{-2}$  at the surface and for an AOD comprised between 0.1 and 0.2 (at 550 nm).

The highest values of BOA DRE correspond to highest AOD observed during dust event. For this specific event, values peak maxima of  $-43 \text{ W m}^{-2}$ , that are in the same range of magnitude of values reported for mineral dust aerosols over the Mediterranean basin by Di Biagio et al. (2010). Intermediate BOA DRE are calculated under polluted and biomass burning influence (from 5-12 July), ranging from  $-13$  to  $-38 \text{ W m}^{-2}$ . Such values are classically derived over the Western Mediterranean for polluted particles (Roger et al., 2006).

In addition, the calculated SW DRE at TOA is reported in Fig. 15a, showing negative effects in all situations, due to the moderate absorbing ability of aerosols associated to a low surface albedo at Ersa (Nicolas et al., in prep.), leading to a cooling at TOA. It should be noted that DRE of aerosols in the long wave (LW) spectral range, which can counterbalance a part of the SW cooling at TOA, is not estimated here. Contrary to the LW DRE of mineral dust exerted near dust sources, this effect is generally lower than SW DRE during the transport of mineral dust over the Mediterranean basin (Nabat et al., 2015). In the same way as at the surface, Fig. 15 b) indicates that higher TOA DRE occur during the mineral dust event, with values as large as  $-20$  to  $-25 \text{ W m}^{-2}$ , but due to the spread of the values during the episode, the mean value of TOA DRE is in the same range than for BBP period. Finally, we report logically intermediate TOA DRE (mean of  $-15 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$ ) between 5 to 12 July, when Ersa station is affected by pollution and smoke aerosols.

To conclude, PMA SW DRE at TOA and BOA is 2 or 3 times lower than what we encounter during events like dust outbreaks and biomass burning, which occur principally in spring and summer. However, the influence of marine aerosols is permanent, depending particularly on wind speed.

#### 4 Conclusion

The ChArMEx-ADRIMED campaign that took place in summer 2013 in the Western and Central Mediterranean basins has served to characterize the aerosol optical, physical and chemical properties, to quantify their direct radiative effect and study their implications on the regional climate (Mallet et al., 2016). One of the ground-based instrumented sites was based in Ersa, Cap Corsica and allowed the study of different aerosol types, particularly the properties and relative impacts of PMA compared to other aerosol types present in the western Mediterranean basin.

Using FLEXPART back-trajectory simulations and in-situ optical, physical and chemical measurements, we show that Ersa was impacted by air masses coming from different source regions and bringing different aerosol types. Three main periods have been identified, to characterize the relative impacts of the major aerosol types and in particular, a period (22-26 June) when the Ersa site is mainly affected by PMA. During this period, the Ersa station was influenced by westerly wind, bringing air masses from Gulf of Lion, Mediterranean coasts of France and Spain and the Bay of Biscay. During this specific event, the concentration of PMA was relatively high, reaching  $6.5 \mu\text{g m}^{-3}$ , which represents 40% of the total  $\text{PM}_{10}$  mass concentration. Here, an original dataset, obtained from ATOFMS and PILS-IC instruments has been used to study the ageing of PMA. By comparing the two instruments, we found that the majority of the time PMA had already undergone chemical reactions and so were not freshly emitted near Cap Corsica, but rather advected from long-range transport. In particular, during the PMA period, based on FLEXPART simulations and local wind speed measurements, we distinguished the origin of fresh and aged

PMA composing the mixing of PMA observed in the Ersa station; we found that fresh PMA were emitted near the station under high wind speed conditions while aged PMA were most probably originating from the Gulf of Lion (Mediterranean) and not from the Bay of Biscay (North Atlantic Ocean).

These two original instruments display similar results regarding PMA ageing, and detect different short periods (of few hours duration) of mostly aged or mostly fresh PMA dominance that we used for our analysis.

No significant distinction was found between the number size distribution of fresh and aged supermicron PMA, and so the size distribution was fitted regardless of the ageing of these aerosols. The lognormal modes (4 modes with diameters of 0.04, 0.13, 1.2 and 5.4  $\mu\text{m}$ ) found for these PMA were in agreement with previous measurement made by Ovadnevaite et al. (2014) and Schieber et al. (2015). The PMA episode was also influenced by fine particles, denoted by the high number concentration of fine particle and by an Angstrom Exponent varying between 0.4 to 2. In parallel, low AOD (mean of 0.11 at 500 nm) and SSA (at 440 nm) close to unity also measured at Ersa are typical of the PMA influence. The SW DRF showed the lowest values at the surface compared to other aerosol regimes with a mean of  $-11 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$ . At the top of the atmosphere (TOA), the lowest values were also observed during PMA event (mean of  $-8 \pm 3 \text{ W m}^{-2}$ ).

The aerosol properties obtained during this PMA event were compared to two other periods encountered during the field campaign (Dust and BBP). The first period corresponds to a dust outbreak of moderate intensity (16-20 June; Dust), and the last period (5-12 July) is characterized by biomass burning that originated in Ukraine mixed with pollution for Southern Europe (BBP). In terms of physical and chemical properties, our results display large variability in the number and volume size distribution as well as mass concentrations between the different events. The volume size distribution analyses reveal that the BBP event is dominated by a fine mode of particles with a modal diameter of 320 nm, while the PMA period is dominated by a coarse mode with a modal diameter of 1.64  $\mu\text{m}$ . Finally, dust aerosols observed at Ersa are characterized by a modal diameter of 2.4  $\mu\text{m}$ , which is found to be consistent with aircraft in-situ observations within dust plumes in the free troposphere during the airborne portion of ChArMEx-ADRIED experiment (Denjean et al., 2016).

Concerning the optical properties, our results indicate that the dust event is characterized by a moderate AOD with a mean of  $0.16 \pm 0.08$  and highest values reaching 0.30 (at 500 nm) associated to a mean AE of 1.4 (calculated between 440 and 870 nm). SSA during the dust episode (0.97 at 440 nm) is found to be high, revealing mostly scattering dust aerosols in this case.

The most intense optical signature occurs clearly at the end of the campaign during the BBP episode. For this specific period, a significant scattering coefficient estimated at the surface (mean of  $54 \text{ Mm}^{-1}$  at 550 nm, together with moderate AOD ( $0.23 \pm 0.07$  at 500 nm) and elevated spectral dependence are observed.

In terms of SW DRF, our results showed the highest (lowest) contribution to surface effects during the dust (PMA) event with  $-21 \pm 11 \text{ W m}^{-2}$  ( $-11 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$ ), with intermediate values ( $-23 \pm 6 \text{ W m}^{-2}$ ) observed during the BBP episode. All derived SW DRF at the surface for the three aerosol types are similar to previous studies in the Western Mediterranean Basin. Similar results are obtained for the top of the atmosphere (TOA) effect, with the highest values occurring during the dust outbreak ( $-14 \pm 6 \text{ W m}^{-2}$ ) and BBP period ( $-15 \pm 4 \text{ W m}^{-2}$ ), while the lowest values were observed during the PMA event ( $-8 \pm 3 \text{ W m}^{-2}$ ). Even though the magnitude of PMA DRF is relatively small compared to Dust and BBP DRF, its impact is permanent due to the persistency of PMA in the marine atmosphere.

*Author contributions.* PILS-IC, ACSM, TEOM PM10, TEOM PM1 data were provided by J. Sciare; ATOFMS data were provided by J. Arndt and J. Wenger; SMPS, OPS, CPC, Nephelometer, meteorological data were provided by Météo-France. M. Claeys prepared the manuscript with contributions from all co-authors.

*Acknowledgements.* This research was supported by Direction Générale de l'Armement (DGA) and Météo-France. This research has received funding from the French National Research Agency (ANR) project ADRIMED (contract ANR-11-BS56-0006). This work is part of the ChArMEx project supported by ADEME, CEA, CNRS-INSU and Météo-France through the multidisciplinary programme MISTRALS (Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales). The station at Erba was partly supported by the CORSiCA project funded by the Collectivité Territoriale de Corse through the Fonds Européen de Développement Régional of the European Operational Program 2007-2013 and the Contrat de Plan Etat-Région. We acknowledge the AERONET/PHOTONS sun-photometer networks and the PI of the Erba station and their staff for their work to produce the data set used in this study. Contributions by Thierry Bourrienne and help from Cyrielle Denjean are gratefully acknowledged. We gratefully acknowledge the two anonymous reviewer whose comments helped us improve this manuscript. Thanks to Laurent Gomez without whom this study would have never taken place.

## References

- Anderson, T. L. and Ogren, J. A.: Determining aerosol radiative properties using the TSI 3563 integrating nephelometer, *Aerosol Science and Technology*, 29, 57–69, 1998.
- Andreae, M. and Rosenfeld, D.: Aerosol–cloud–precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols, *Earth-Science Rev.*, 89, 13–41, doi:10.1016/j.earscirev.2008.03.001, <http://linkinghub.elsevier.com/retrieve/pii/S0012825208000317>, 2008.
- Andreae, M. O. et al.: Aerosols before pollution, *Science(Washington)*, 315, 50–51, 2007.
- Arndt, J., Sciare, J., Mallet, M., Roberts, G. C., Marchand, N., Sartelet, K., Sellegri, K., Dulac, F., Healy, R. M., and Wenger, J. C.: Sources and mixing state of summertime background aerosol in the northwestern Mediterranean basin, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2017, 1–45, doi:10.5194/acp-2016-1044, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2016-1044/>, 2017.
- 10 Bardouki, H., Liakakou, H., Economou, C., Sciare, J., Smolík, J., Ždímal, V., Eleftheriadis, K., Lazaridis, M., Dye, C., and Mihalopoulos, N.: Chemical composition of size-resolved atmospheric aerosols in the eastern Mediterranean during summer and winter, *Atmos. Environ.*, 37, 195–208, doi:10.1016/S1352-2310(02)00859-2, 2003.
- Bellouin, N., Jones, A., Haywood, J., and Christopher, S. A.: Updated estimate of aerosol direct radiative forcing from satellite observations and comparison against the Hadley Centre climate model, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113, 2008.
- 15 Bressan, D. and Lepple, F.: Dependence of sea-salt aerosol concentration on various environmental parameters, *Advances in chemistry series*, pp. 75–98, 1985.
- Bressi, M., Sciare, J., Gherzi, V., Bonnaire, N., Nicolas, J., Petit, J.-E., Moukhtar, S., Rosso, A., Mihalopoulos, N., and Féron, A.: A one-year comprehensive chemical characterisation of fine aerosol (PM 2.5) at urban, suburban and rural background sites in the region of Paris (France), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 7825–7844, 2013.
- 20 Brewer, P. G.: Minor elements in sea water, *Chemical oceanography*, 1, 415–496, 1975.
- Carslaw, D. C. and Ropkins, K.: Openair—an R package for air quality data analysis, *Environmental Modelling & Software*, 27, 52–61, 2012.
- Chabas, a. and Lefèvre, R. a.: Chemistry and microscopy of atmospheric particulates at Delos (Cyclades- Greece), *Atmos. Environ.*, 34, 225–238, doi:10.1016/S1352-2310(99)00255-1, 2000.
- 25 Clegg, S. L. and Brimblecombe, P.: Potential degassing of hydrogen chloride from acidified sodium chloride droplets, *Atmos. Environ. - Part A Gen. Top.*, 19, 465–470, doi:10.1016/0004-6981(85)90167-2, 1985.
- Crenn, V., Sciare, J., Croteau, P., Verlhac, S., Fröhlich, R., Belis, C., Aas, W., Äijälä, M., Alastuey, A., Artinano, B., Baisnée, B., Bonnaire, D., Bressi, N., Canagaratna, M., Canonaco, F., Carbone, C., Cavalli, F., Coz, E., Cubison, M., Esser-Gietl, J., Green, D., Gros, V., Heikkinen, L., H. H., Lunder, C., Minguillón, M., Mocnik, G., O'Dowd, C., Ovadnevaite, J., Petit, J.-E., Petralia, E., Poulain, L., Priestman, M.,
- 30 Riffault, V., Ripoll, A., Sarda-Estève, R., Slowik, J., Setyan, A., Wiedensohler, A., Baltensperger, U., Prévôt, A., Jayne, J., and Favez, O.: ACTRIS ACSM intercomparison – Part 1: Reproducibility of concentration and fragment results from 13 individual Quadrupole Aerosol Chemical Speciation Monitors (Q-ACSM) and consistency with co-located instruments, *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 5063–5087, 2015.
- Crippa, M., DeCarlo, P., Slowik, J., Mohr, C., Heringa, M., Chirico, R., Poulain, L., Freutel, F., Sciare, J., Cozic, J., et al.: Wintertime aerosol chemical composition and source apportionment of the organic fraction in the metropolitan area of Paris, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 961–981, 2013.
- 35 Cros, B., Durand, P., Cachier, H., Drobinski, P., Frejafon, E., Kottmeier, C., Perros, P., Peuch, V.-H., Ponche, J.-L., Robin, D., et al.: The ESCOMPTE program: an overview, *Atmospheric Research*, 69, 241–279, 2004.

- D O'Dowd, C. and De Leeuw, G.: Marine aerosol production: a review of the current knowledge, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 365, 1753–1774, 2007.
- Dall'Osto, M., Beddows, D., Kinnorsley, R. P., Harrison, R. M., Donovan, R. J., and Heal, M. R.: Characterization of individual airborne particles by using aerosol time-of-flight mass spectrometry at Mace Head, Ireland, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109, 2004.
- Denjean, C., Formenti, P., Desboeufs, K., Chevaillier, S., Triquet, S., Maillé, M., Cazaunau, M., Laurent, B., Mayol-Bracero, O. L., Vallejo, P., et al.: Size distribution and optical properties of African mineral dust after intercontinental transport, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 2016.
- Di Biagio, C., di Sarra, A., and Meloni, D.: Large atmospheric shortwave radiative forcing by Mediterranean aerosols derived from simultaneous ground-based and spaceborne observations and dependence on the aerosol type and single scattering albedo, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 115, 2010.
- Di Iorio, T., di Sarra, A., Sferlazzo, D., Cacciani, M., Meloni, D., Monteleone, F., Fua, D., and Fiocco, G.: Seasonal evolution of the tropospheric aerosol vertical profile in the central Mediterranean and role of desert dust, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114, 2009.
- Di Sarra, A., Di Biagio, C., Meloni, D., Monteleone, F., Pace, G., Pugnaghi, S., and Sferlazzo, D.: Shortwave and longwave radiative effects of the intense Saharan dust event of 25–26 March 2010 at Lampedusa (Mediterranean Sea), *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116, 2011.
- Dubovik, O. and King, M. D.: A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 20 673, doi:10.1029/2000JD900282, 2000.
- Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *Journal of the atmospheric sciences*, 59, 590–608, 2002a.
- Dubovik, O., Holben, B., Lapyonok, T., Sinyuk, A., Mishchenko, M., Yang, P., and Slutsker, I.: Non-spherical aerosol retrieval method employing light scattering by spheroids, *Geophysical Research Letters*, 29, 2002b.
- Dulac, F. and Chazette, P.: Airborne study of a multi-layer aerosol structure in the eastern Mediterranean observed with the airborne polarized lidar ALEX during a STAAARTE campaign (7 June 1997), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 1817–1831, 2003.
- Emanuel, K. A. and Živkovic-Rothman, M.: Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56, 1766–1782, 1999.
- Fomba, K. W., Müller, K., van Pinxteren, D., Poulain, L., van Pinxteren, M., and Herrmann, H.: Long-term chemical characterization of tropical and marine aerosols at the CVAO: field studies (2007 to 2011), *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 14, 3917–3971, doi:10.5194/acpd-14-3917-2014, [http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/14/3917/2014/\\$sh\\$nhhttp://www.atmos-chem-phys-discuss.net/14/3917/2014/acpd-14-3917-2014.pdf](http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/14/3917/2014/$sh$nhhttp://www.atmos-chem-phys-discuss.net/14/3917/2014/acpd-14-3917-2014.pdf), 2014.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Bernsten, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., et al.: Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing. Chapter 2, in: *Climate Change 2007. The Physical Science Basis*, Cambridge University Press, 2007.
- Fotiadi, A., Drakakis, E., Hatzianastassiou, N., Matsoukas, C., Pavlakis, K. G., Hatzidimitriou, D., Gerasopoulos, E., Mihalopoulos, N., and Vardavas, I.: Aerosol physical and optical properties in the Eastern Mediterranean Basin, Crete, from Aerosol Robotic Network Data, doi:10.5194/acpd-6-7791-2006, 2006.

- Fröhlich, R., Crenn, V., Setyan, A., Belis, C. A., Canonaco, F., Favez, O., Riffault, V., Slowik, J. G., Aas, W., Aijälä, Mikko Artinano, B., Bonnaire, N., Bozzetti, C., Bressi, M., Carbone, C., Coz, E., Croteau, P., Cubison, M., Gietl, J., Green, D., Gros, V., Heikkinen, L., Jayne, J., Lunder, C., Minguillon, M., Mocnik, G., O'Dowd, C., Ovadnevaite, J., Petralia, E., Poulain, L., Priestman, M., Riffault, V., Ripoll, A., Sarda-Estève, R., Baltensperger, U., Sciare, J., and Prevot, A.: ACTRIS ACSM intercomparison-Part 2: Intercomparison of ME-2 organic source apportionment results from 15 individual, co-located aerosol mass spectrometers, *Atmospheric Measurement Techniques*, 2015.
- Gantt, B. and Meskhidze, N.: The physical and chemical characteristics of marine primary organic aerosol: a review, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 3979–3996, 2013.
- García, O., Díaz, A., Expósito, F., Díaz, J., Dubovik, O., Dubuisson, P., Roger, J.-C., Eck, T., Sinyuk, A., Derimian, Y., et al.: Validation of AERONET estimates of atmospheric solar fluxes and aerosol radiative forcing by ground-based broadband measurements, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 113, 2008.
- García, O. E., Díaz, J. P., Expósito, F. J., Díaz, A. M., Dubovik, O., Derimian, Y., Dubuisson, P., and Roger, J.-C.: Shortwave radiative forcing and efficiency of key aerosol types using AERONET data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 5129–5145, doi:10.5194/acp-12-5129-2012, <http://www.atmos-chem-phys.net/12/5129/2012/>, 2012.
- Gard, E., Mayer, J. E., Morrical, B. D., Dienes, T., Fergenson, D. P., and Prather, K. A.: Real-time analysis of individual atmospheric aerosol particles: Design and performance of a portable ATOFMS, *Analytical Chemistry*, 69, 4083–4091, 1997.
- Gard, E. E., Kleeman, M. J., Gross, D. S., Hughes, L. S., Allen, J. O., Morrical, B. D., Fergenson, D. P., Dienes, T., Gälli, M. E., Johnson, R. J., et al.: Direct observation of heterogeneous chemistry in the atmosphere, *Science*, 279, 1184–1187, 1998.
- Gómez-Amo, J., Pinti, V., Di Iorio, T., Di Sarra, A., Meloni, D., Becagli, S., Bellantone, V., Cacciani, M., Fuà, D., and Perrone, M.: The June 2007 Saharan dust event in the central Mediterranean: Observations and radiative effects in marine, urban, and sub-urban environments, *Atmospheric environment*, 45, 5385–5393, 2011.
- Guerrero-Rascado, J. L., Olmo Reyes, F. J., Avilés-Rodríguez, I., Navas-Guzmán, E., Pérez-Ramírez, D., Lyamani, H., and Alados-Arboledas, L.: Extreme Saharan dust event over the southern Iberian Peninsula in september 2007: active and passive remote sensing from surface and satellite, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2009.
- Guyon, P., Frank, G., Welling, M., Chand, D., Artaxo, P., Rizzo, L., Nishioka, G., Kolle, O., Fritsch, H., Dias, S., et al.: Airborne measurements of trace gas and aerosol particle emissions from biomass burning in Amazonia, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 2989–3002, 2005.
- Hamonou, E., Chazette, P., Balis, D., Dulac, F., Schneider, X., Galani, E., Ancellet, G., and Papayannis, A.: Characterization of the vertical structure of Saharan dust export, *Journal of Geophysical Research*, 104, 22–257, 1999.
- Healy, R., Hellebust, S., Kourtchev, I., Allanic, A., O'Connor, I., Bell, J., Healy, D., Sodeau, J., and Wenger, J.: Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Cork Harbour, Ireland using a combination of single particle mass spectrometry and quantitative semi-continuous measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 9593–9613, 2010.
- Healy, R. M., Sciare, J., Poulain, L., Crippa, M., Wiedensohler, A., Prévôt, A. S., Baltensperger, U., Sarda-Estève, R., McGuire, M. L., Jeong, C.-H., McGillicuddy, E., O'Connor, I., Sodeau, J., Evans, G., and Wenger, J.: Quantitative determination of carbonaceous particle mixing state in Paris using single-particle mass spectrometer and aerosol mass spectrometer measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 9479–9496, 2013.
- Jayne, J. T., Leard, D. C., Zhang, X., Davidovits, P., Smith, K. A., Kolb, C. E., and Worsnop, D. R.: Development of an aerosol mass spectrometer for size and composition analysis of submicron particles, *Aerosol Science & Technology*, 33, 49–70, 2000.
- Kaufman, Y. J. and Koren, I.: Smoke and pollution aerosol effect on cloud cover, *Science*, 313, 655–658, 2006.

- Kaufman, Y. J., Smirnov, A., Holben, B. N., and Dubovik, O.: Baseline maritime aerosol: methodology to derive the optical thickness and scattering properties, *Geophysical Research Letters*, 28, 3251–3254, 2001.
- Khain, A.: Notes on state-of-the-art investigations of aerosol effects on precipitation: a critical review, *Environmental Research Letters*, 4, 015 004, 2009.
- 5 Koçak, M., Kubilay, N., and Mihalopoulos, N.: Ionic composition of lower tropospheric aerosols at a Northeastern Mediterranean site: Implications regarding sources and long-range transport, *Atmos. Environ.*, 38, 2067–2077, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.01.030, 2004.
- Koulouri, E., Saarikoski, S., Theodosi, C., Markaki, Z., Gerasopoulos, E., Kouvarakis, G., Mäkelä, T., Hillamo, R., and Mihalopoulos, N.: Chemical composition and sources of fine and coarse aerosol particles in the Eastern Mediterranean, *Atmos. Environ.*, 42, 6542–6550, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.04.010, 2008.
- 10 Lelieveld, J., Hadjinicolaou, P., Kostopoulou, E., Chenoweth, J., El Maayar, M., Giannakopoulos, C., Hannides, C., Lange, M., Tanarhte, M., Tyrllis, E., et al.: Climate change and impacts in the Eastern Mediterranean and the Middle East, *Climatic Change*, 114, 667–687, 2012.
- Lewis, E. R. and Schwartz, S. E.: Sea salt aerosol production: mechanisms, methods, measurements, and models-A critical review, *American geophysical union*, 2004.
- Li, Z., Niu, F., Fan, J., Liu, Y., Rosenfeld, D., and Ding, Y.: Long-term impacts of aerosols on the vertical development of clouds and precipitation, *Nature Geoscience*, 4, 888–894, 2011.
- 15 Lundgren, K., Vogel, B., Vogel, H., and Kottmeier, C.: Direct radiative effects of sea salt for the Mediterranean region under conditions of low to moderate wind speeds, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118, 1906–1923, doi:10.1029/2012JD018629, 2013.
- Mallet, M., Dubovik, O., Nabat, P., Dulac, F., Kahn, R., Sciare, J., Paronis, D., and Léon, J.: Absorption properties of Mediterranean aerosols obtained from multi-year ground-based remote sensing observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 9195–9210, 2013.
- 20 Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F., di Sarra, A., Alados, L., Arndt, J., Auriol, F., Blarel, L., Bourrianne, T., Brogniez, G., Chazette, P., Chevaillier, S., Claey, M., D’Anna, B., Denjean, C., Derimian, Y., Desboeufs, K., Di Iorio, T., Doussin, J.-F., Durand, P., Féron, A., Freney, E., Gaimoz, C., Goloub, P., Gómez-Amo, J. L., Granados-Muñoz, M. J., Grand, N., Hamonou, E., Jankowiak, I., Jeannot, M., Léon, J.-F., Maillé, M., Mailler, S., Meloni, D., Menut, L., Momboisse, G., Nicolas, J., Podvin, J., Pont, V., Rea, G., Renard, J.-B., Roblou, L., Schepanski, K., Schwarzenboeck, A.,
- 25 Sellegri, K., Sicard, M., Solmon, F., Somot, S., Torres, B., Totems, J., Triquet, S., Verdier, N., Verwaerde, C., Wenger, J., and Zapf, P.: Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRMED) summer 2013 campaign, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 19 615–19 727, doi:10.5194/acpd-15-19615-2015, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/15/19615/2015/>, 2016.
- Marks, R.: Preliminary investigations on the influence of rain on the production, concentration, and vertical distribution of sea salt aerosol, *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 95, 22 299–22 304, 1990.
- 30 Meloni, D., Di Sarra, A., Di Iorio, T., and Fiocco, G.: Direct radiative forcing of Saharan dust in the Mediterranean from measurements at Lampedusa Island and MISR space-borne observations, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109, 2004.
- Mihalopoulos, N., Stephanou, E., Kanakidou, M., Pilitsidis, S., and Bousquet, P.: Tropospheric aerosol ionic composition in the Eastern Mediterranean region, doi:10.1034/j.1600-0889.49.issue3.7.x, 1997.
- 35 Mishra, A. K., Klingmueller, K., Fredj, E., Lelieveld, J., Rudich, Y., and Koren, I.: Radiative signature of absorbing aerosol over the eastern Mediterranean basin, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 7213–7231, doi:10.5194/acp-14-7213-2014, [www.atmos-chem-phys.net/14/7213/2014/](http://www.atmos-chem-phys.net/14/7213/2014/), 2014.

- Mona, L., Amodeo, A., Pandolfi, M., and Pappalardo, G.: Saharan dust intrusions in the Mediterranean area: Three years of Raman lidar measurements, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111, 2006.
- Mulcahy, J. P., O'Dowd, C. D., Jennings, S. G., and Ceburnis, D.: Significant enhancement of aerosol optical depth in marine air under high wind conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 35, 1–4, doi:10.1029/2008GL034303, 2008.
- 5 Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech, F., Meloni, D., Di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., et al.: Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol–atmosphere–ocean model over the Mediterranean, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 3303–3326, 2015.
- Ng, N. L., Herndon, S. C., Trimborn, A., Canagaratna, M. R., Croteau, P., Onasch, T. B., Sueper, D., Worsnop, D. R., Zhang, Q., Sun, Y., et al.: An Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) for routine monitoring of the composition and mass concentrations of ambient aerosol, *Aerosol Science and Technology*, 45, 780–794, 2011.
- 10 Nicolas, J.: Caractérisation physico-chimique de l'aérosol troposphérique en Méditerranée: sources et devenir, Ph.D. thesis, Ph. D. thesis, Univ. Versailles Saint-Quentin, 2013. 121, 2013.
- Noble, C. A. and Prather, K. A.: Real-time single particle monitoring of a relative increase in marine aerosol concentration during winter rainstorms, *Geophysical Research Letters*, 24, 2753–2756, 1997.
- 15 O'Dowd, C. D., Facchini, M. C., Cavalli, F., Ceburnis, D., Mircea, M., Decesari, S., Fuzzi, S., Yoon, Y. J., and Putaud, J.-P.: Biogenically driven organic contribution to marine aerosol, *Nature*, 431, 676–680, 2004.
- Orsini, D. A., Ma, Y., Sullivan, A., Sierau, B., Baumann, K., and Weber, R. J.: Refinements to the particle-into-liquid sampler (PILS) for ground and airborne measurements of water soluble aerosol composition, *Atmospheric Environment*, 37, 1243–1259, 2003.
- Ovadnevaite, J., Manders, A., De Leeuw, G., Ceburnis, D., Monahan, C., Partanen, A., Korhonen, H., and O'Dowd, C.: A sea spray aerosol flux parameterization encapsulating wave state, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 1837–1852, 2014.
- 20 Pace, G., di Sarra, A., Meloni, D., Piacentino, S., and Chamard, P.: Aerosol optical properties at Lampedusa (Central Mediterranean) – 1. Influence of transport and identification of different aerosol types, doi:10.5194/acpd-5-4929-2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/697/2006/acp-6-697-2006.pdf>, 2006.
- Pey, J., Querol, X., and Alastuey, A.: Variations of levels and composition of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> at an insular site in the Western Mediterranean, *Atmos. Res.*, 94, 285–299, doi:10.1016/j.atmosres.2009.06.006, <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2009.06.006>, 2009.
- 25 Querol, X., Alastuey, a., Pey, J., Cusack, M., Pérez, N., Mihalopoulos, N., Theodosi, C., Gerasopoulos, E., Kubilay, N., and Koçak, M.: Variability in regional background aerosols within the Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 10 153–10 192, doi:10.5194/acpd-9-10153-2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/4575/2009/acp-9-4575-2009.pdf>, 2009.
- Quinn, P., Bates, T., Coffman, D., Miller, T., Johnson, J., Covert, D., Putaud, J.-P., Neusüß, C., and Novakov, T.: A comparison of aerosol chemical and optical properties from the 1st and 2nd Aerosol Characterization Experiments, *Tellus B*, 52, 239–257, 2000.
- 30 Quinn, P. K. and Bates, T. S.: Regional aerosol properties: Comparisons of boundary layer measurements from ACE 1, ACE 2, Aerosols99, INDOEX, ACE Asia, TARFOX, and NEAQS, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 110, 2005.
- Reid, J., Koppmann, R., Eck, T., and Eleuterio, D.: A review of biomass burning emissions part II: intensive physical properties of biomass burning particles, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5, 799–825, 2005.
- 35 Ripoll, a., Minguillón, M. C., Pey, J., Pérez, N., Querol, X., and Alastuey, a.: Joint analysis of continental and regional background environments in the western Mediterranean: PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub> concentrations and composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 1129–1145, doi:10.5194/acp-15-1129-2015, <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84922042349&partnerID=tZ0tx3y1>, 2015.

- Roger, J.-C., Mallet, M., Dubuisson, P., Cachier, H., Vermote, E., Dubovik, O., and Despiiau, S.: A synergetic approach for estimating the local direct aerosol forcing: Application to an urban zone during the Expérience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution et de Transport d'Emission (ESCOMPTE) experiment, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111, 2006.
- Salameh, T., Drobinski, P., Menut, L., Bessagnet, B., Flamant, C., Hodzic, A., and Vautard, R.: Aerosol distribution over the western Mediterranean basin during a Tramontane/Mistral event, doi:10.5194/angeo-25-2271-2007, 2007.
- Schwier, A. N., Rose, C., Asmi, E., Ebling, A., Landing, W., Marro, S., Pedrotti, M.-L., Sallon, A., Iuculano, F., Agusti, S., et al.: Primary marine aerosol emissions from the Mediterranean Sea during pre-bloom and oligotrophic conditions: correlations to seawater chlorophyll a from a mesocosm study, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 7961–7976, 2015.
- Schwier, A. N., Sellegri, K., Mas, S., Charrière, B., Pey, J., Temime-Roussel, B., Parin, D., Jaffrezo, J.-L., Picard, D., Ribeiro, M., Sempéré, R., Marchand, N., and D'Anna, B.: Primary marine aerosol physical and chemical emissions during a nutriment enrichment experiment in mesocosms of the Mediterranean Sea, to be submitted, 2016.
- Sciare, J., Bardouki, H., Moulin, C., and Mihalopoulos, N.: Aerosol sources and their contribution to the chemical composition of aerosols in the Eastern Mediterranean Sea during summertime, doi:10.5194/acpd-2-1287-2002, 2003.
- Sciare, J., d'Argouges, O., Sarda-Estève, R., Gaimoz, C., Dolgorouky, C., Bonnaire, N., Favez, O., Bonsang, B., and Gros, V.: Large contribution of water-insoluble secondary organic aerosols in the region of Paris (France) during wintertime, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116, 2011.
- Seiki, T. and Nakajima, T.: Aerosol effects of the condensation process on a convective cloud simulation, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 71, 833–853, 2014.
- Sellegri, K., Gourdeau, J., Putaud, J.-P., and Despiiau, S.: Chemical composition of marine aerosol in a Mediterranean coastal zone during the FETCH experiment, *J. Geophys. Res.*, 106, 12 023, doi:10.1029/2000JD900629, 2001.
- Shinozuka, Y., Clarke, A. D., Howell, S. G., Kapustin, V. N., and Huebert, B. J.: Sea-salt vertical profiles over the Southern and tropical Pacific oceans: Microphysics, optical properties, spatial variability, and variations with wind speed, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109, 2004.
- Smirnov, A., Villevalde, Y., O'Neill, N., Royer, A., and Tarussov, A.: Aerosol optical depth over the oceans: Analysis in terms of synoptic air mass types, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 100, 16 639–16 650, 1995.
- Smirnov, A., Holben, B. N., Dubovik, O., O'Neill, N. T., Eck, T. F., Westphal, D. L., Goroch, A. K., Pietras, C., and Slutsker, I.: Atmospheric Aerosol Optical Properties in the Persian Gulf, *J. Atmos. Sci.*, 59, 620–634, doi:10.1175/1520-0469(2002)059<0620:AAOPIT>2.0.CO;2, 2002.
- Stevens, B. and Feingold, G.: Untangling aerosol effects on clouds and precipitation in a buffered system, *Nature*, 461, 607–613, 2009.
- Stohl, A. and Thomson, D. J.: A density correction for Lagrangian particle dispersion models, *Boundary-Layer Meteorology*, 90, 155–167, 1999.
- Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G.: Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data, *Atmospheric Environment*, 32, 4245–4264, 1998.
- Stohl, A., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., Spichtinger, N., and Seibert, P.: A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurements, *Atmospheric Environment*, 36, 4635–4648, 2002.
- Su, Y., Sipin, M. F., Furutani, H., and Prather, K. A.: Development and characterization of an aerosol time-of-flight mass spectrometer with increased detection efficiency, *Analytical Chemistry*, 76, 712–719, 2004.
- Taylor, N. J. and Wu, J.: Simultaneous measurements of spray and sea salt, *Journal of Geophysical Research: Oceans*, 97, 7355–7360, 1992.

Tsyro, S., Aas, W., Soares, J., Sofiev, M., Berge, H., and Spindler, G.: Modelling of sea salt concentrations over Europe: key uncertainties and comparison with observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10 367–10 388, doi:10.5194/acp-11-10367-2011, <http://www.atmos-chem-phys.net/11/10367/2011/>, 2011.

5 Zhao, T. X.-P., Loeb, N. G., Laszlo, I., and Zhou, M.: Global component aerosol direct radiative effect at the top of atmosphere, *International Journal of Remote Sensing*, 32, 633–655, 2011.

Zorn, S., Drewnick, F., Schott, M., Hoffmann, T., and Borrmann, S.: Characterization of the South Atlantic marine boundary layer aerosol using an aerodyne aerosol mass spectrometer, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 4711–4728, 2008.

**Table 1.** Transport time (Mean  $\pm$  standard deviation) from Gulf of Lion and North Atlantic Ocean to the Ersa station obtained from Flexpart simulations analyses (see Sect. 3.1.1)

	<i>22 June</i>	<i>23 June</i>	<i>24 June</i>	<i>25 June</i>	<i>26 June</i>
Gulf of Lion : Mean Transport time Days	$0.72 \pm 0.69$	$0.49 \pm 0.29$	$0.21 \pm 0.09$	$0.55 \pm 0.30$	$1.32 \pm 0.50$
North Atlantic Ocean : Mean Transport time Days	$2.88 \pm 0.87$	$2.50 \pm 0.72$	$2.94 \pm 1.5$	$3.23 \pm 1.26$	$4.45 \pm 1.22$

**Table 2.** Characteristics of the three log-normal modes of aged sea salt aerosols measured by ATOFMS at Ersä station

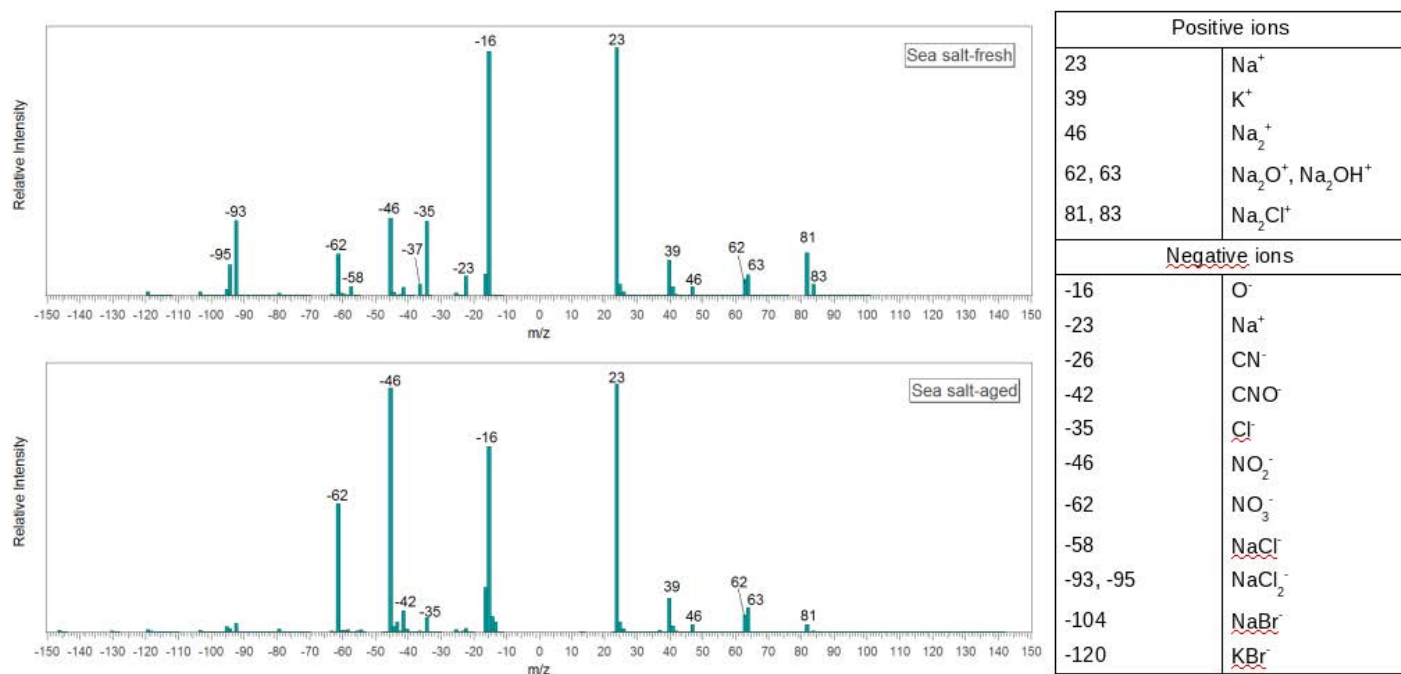
<i>Mode</i>	<i>Aerodynamical diameter</i> $\mu\text{m}$	$\sigma$
1	0.46	1.28
2	1.13	1.35
3	1.95	1.23

**Table 3.** Characteristics of the fit by a lognormal distribution ( $N$ ,  $d$ ,  $\sigma$ ) for the three periods : Dust, PMA and BBP

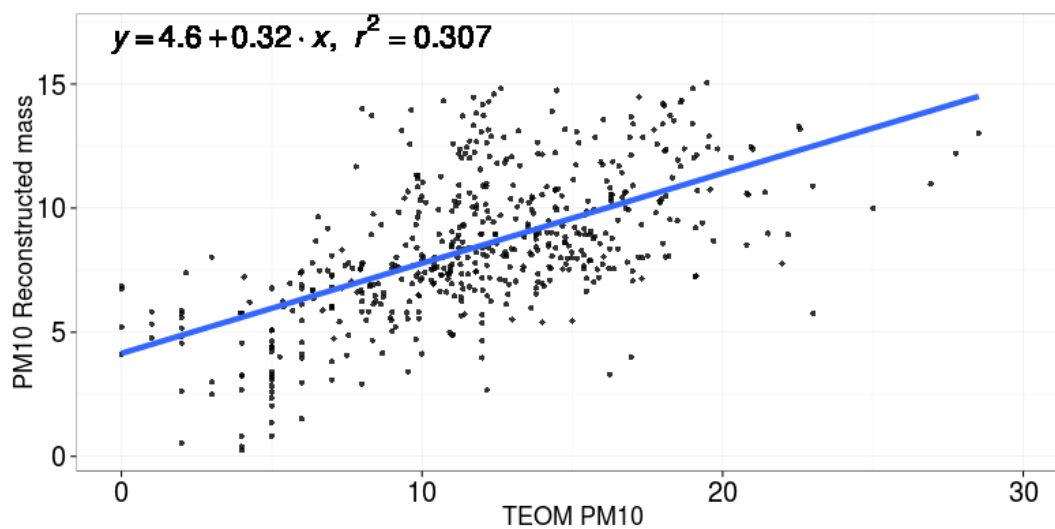
Number Concentration	$N_1$	$d_1$	$\sigma_1$	$N_2$	$d_2$	$\sigma_2$	$N_3$	$d_3$	$\sigma_3$	$N_4$	$d_4$	$\sigma_4$
Dust	156	0.06	1.88	389	0.13	1.51	0.11	1.16	1.3	0.02	3	1.47
PMA	1162	0.04	1.46	164	0.13	1.56	0.45	1.2	1.5	0.02	5.4	1.25
BBP	0.13	0.027	0.9	582	0.08	1.79	170	0.22	1.35	0.07	1.5	1.7
Volume Concentration	$V_1$	$d_1$	$\sigma_1$	$V_2$	$d_2$	$\sigma_2$	$V_3$	$d_3$	$\sigma_3$	$V_4$	$d_4$	$\sigma_4$
Dust	0.5	0.18	1.46	0.64	0.26	1.43	0.43	2.36	1.62			
PMA	0.09	0.07	1.47	0.44	0.24	1.54	1.02	1.64	1.71	0.18	6.66	1.34
BBP	0.77	0.2	1.54	1.34	0.32	1.33	0.31	2.24	1.55	0.2	6.13	1.36

**Table 4.** Summary of the optical properties (mean and standard deviation) estimated for the three different aerosols regimes: AOD, AE, SSA, Scattering coefficient (in  $\text{Mm}^{-1}$ ), and instantaneous TOA and BOA radiative effect (in  $\text{W m}^{-2}$ )

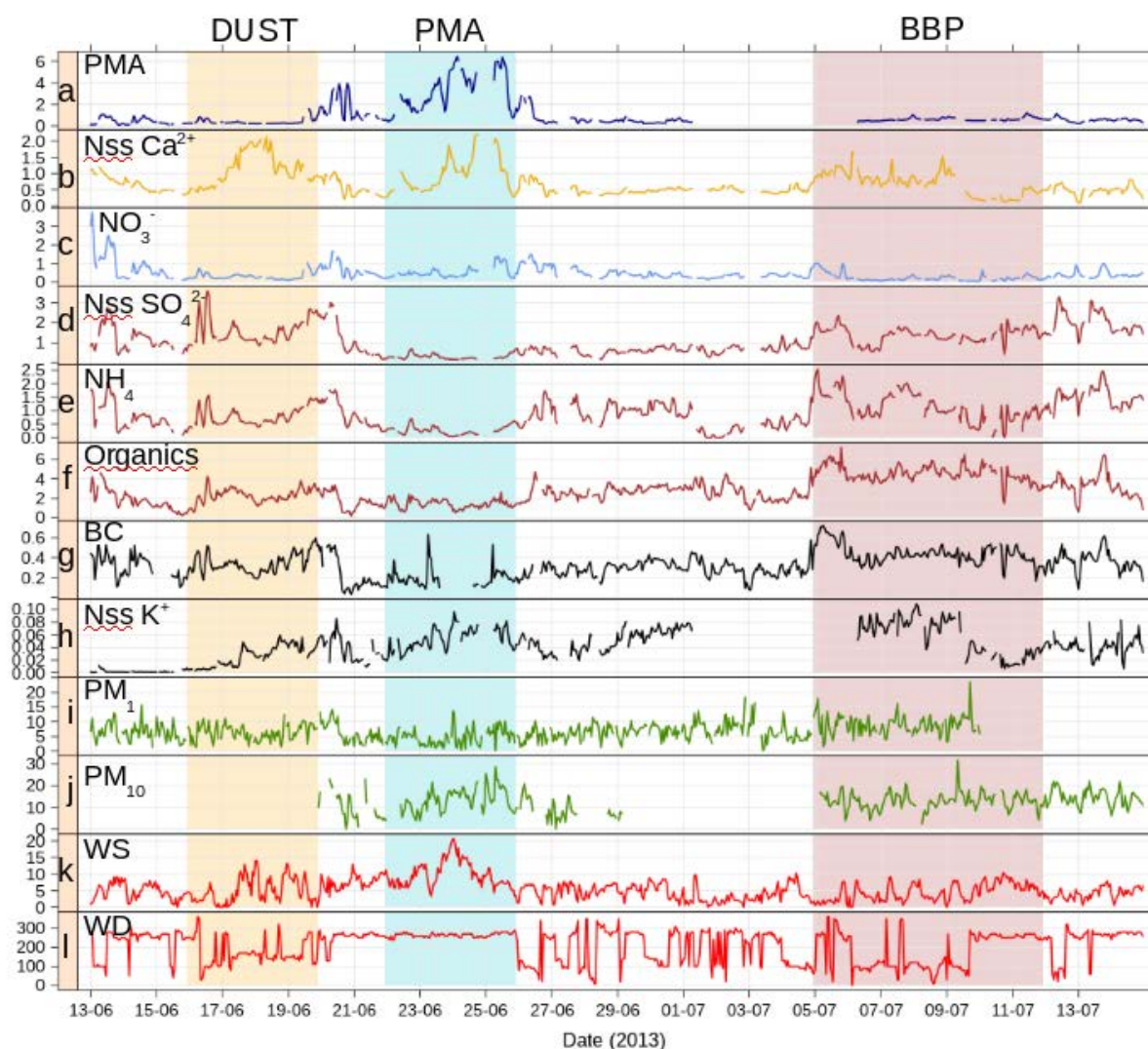
	AOD 500 nm	AE 440-870 nm	SSA 440 nm	Scattering coefficient 550 nm	TOA	BOA
Dust	$0.16 \pm 0.08$	$1.4 \pm 0.3$	$0.97 \pm 0.03$	$28 \pm 11$	$-14 \pm 6$	$-21 \pm 11$
PMA	$0.11 \pm 0.08$	$1.3 \pm 0.4$	$0.98 \pm 0.02$	$28 \pm 11$	$-8 \pm 3$	$-11 \pm 4$
BBP	$0.23 \pm 0.07$	$2.1 \pm 0.2$	$0.98 \pm 0.03$	$54 \pm 18$	$-15 \pm 4$	$-23 \pm 6$
ADRMED	$0.17 \pm 0.1$	$1.7 \pm 0.5$	$0.98 \pm 0.03$	$37 \pm 20$	$-12 \pm 5$	$-17 \pm 8$



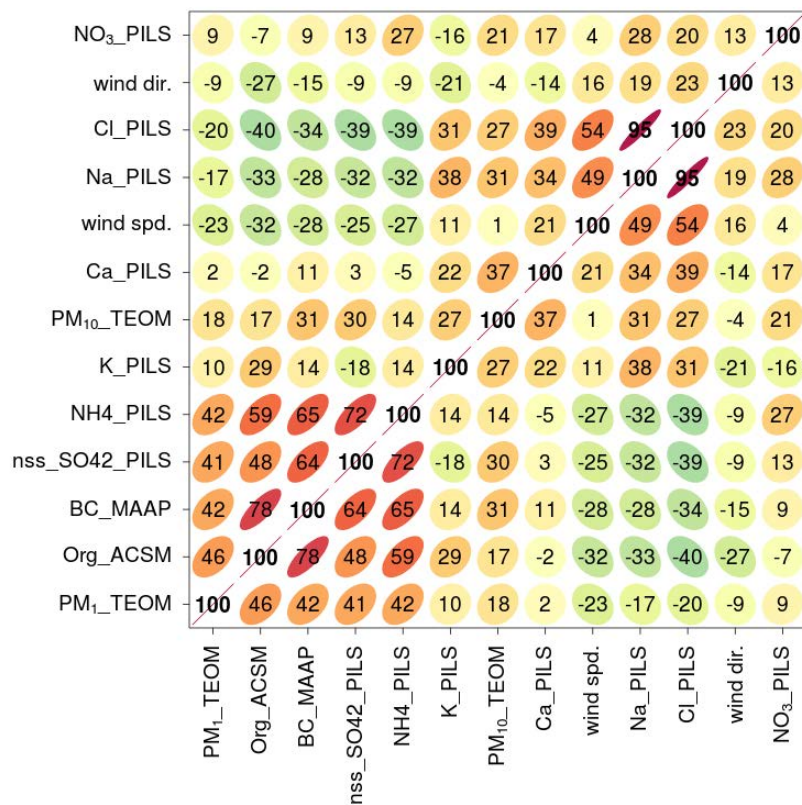
**Figure 1.** Average mass spectra for fresh and aged sea salt particles observed during ADRIMED.



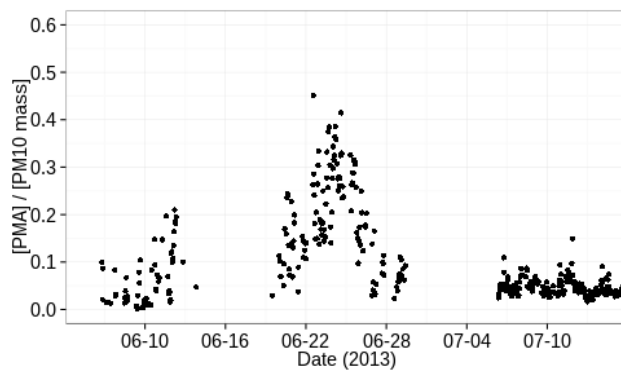
**Figure 2.** Scatterplot of TEOM  $\text{PM}_{10}$  mass concentration in function of the  $\text{PM}_{10}$  reconstructed mass concentration for the ADRIMED period.



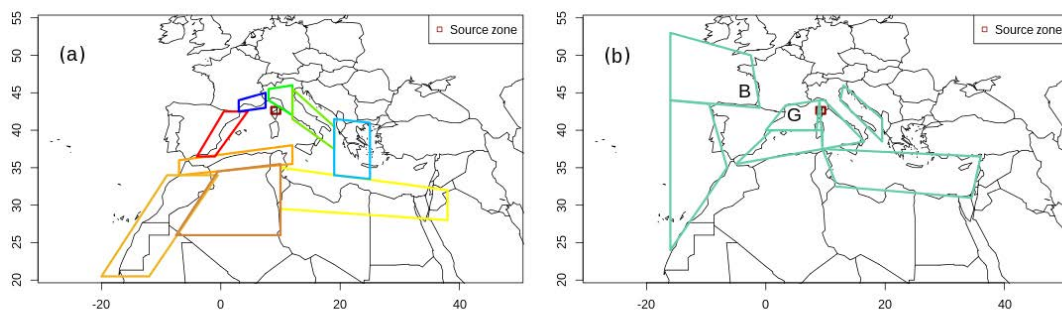
**Figure 3.** Time series of chemical species (in  $\mu\text{g m}^{-3}$ ), wind speed ( $\text{m s}^{-1}$ ) and direction ( $^{\circ}$ ): (a) PMA mass concentration calculated from PILS-IC measurements, (b) nss- $\text{Ca}^{2+}$  mass concentration measured by PILS-IC measurements, (c) nss- $\text{NO}_3^-$  mass concentration measured by the PILS-IC, (d) nss- $\text{SO}_4^{2-}$  mass concentration measured by the PILS-IC, (e) nss- $\text{NH}_4^+$  mass concentration measured by the PILS-IC, (f) Organic mass concentration measured by the ACSM, (g) Black carbon mass concentration measured by the MAAP, (h) nss- $\text{K}^+$  mass concentration measured by the PILS-IC, (i)  $\text{PM}_{10}$  mass concentration measured by TEOM  $\text{PM}_{10}$ , (j)  $\text{PM}_1$  mass concentration measured by TEOM  $\text{PM}_1$ , (k) Wind speed measured at the Semaphore, (l) Wind direction measured at the Semaphore. The shaded areas correspond to the three identified periods, orange for Dust, blue for primary marine aerosols (PMA) and brown for Biomass burning/pollution (BBP).



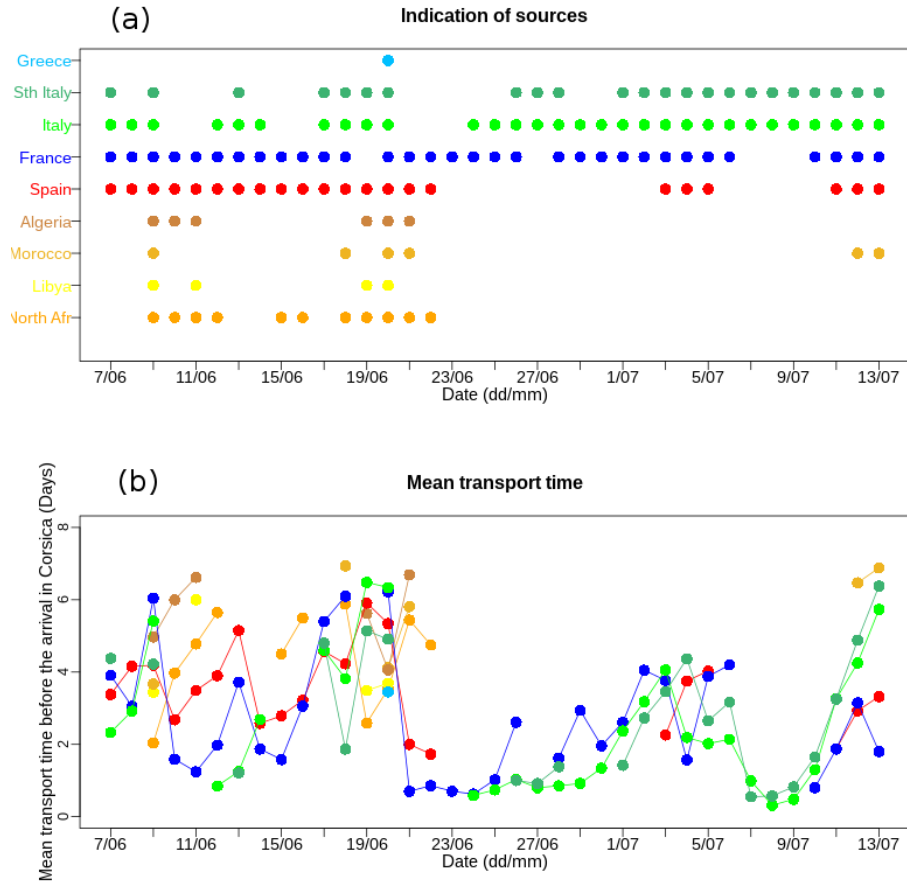
**Figure 4.** Correlation plot of chemical components mass concentrations, PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub> mass concentration and wind speed and direction, during the whole campaign..



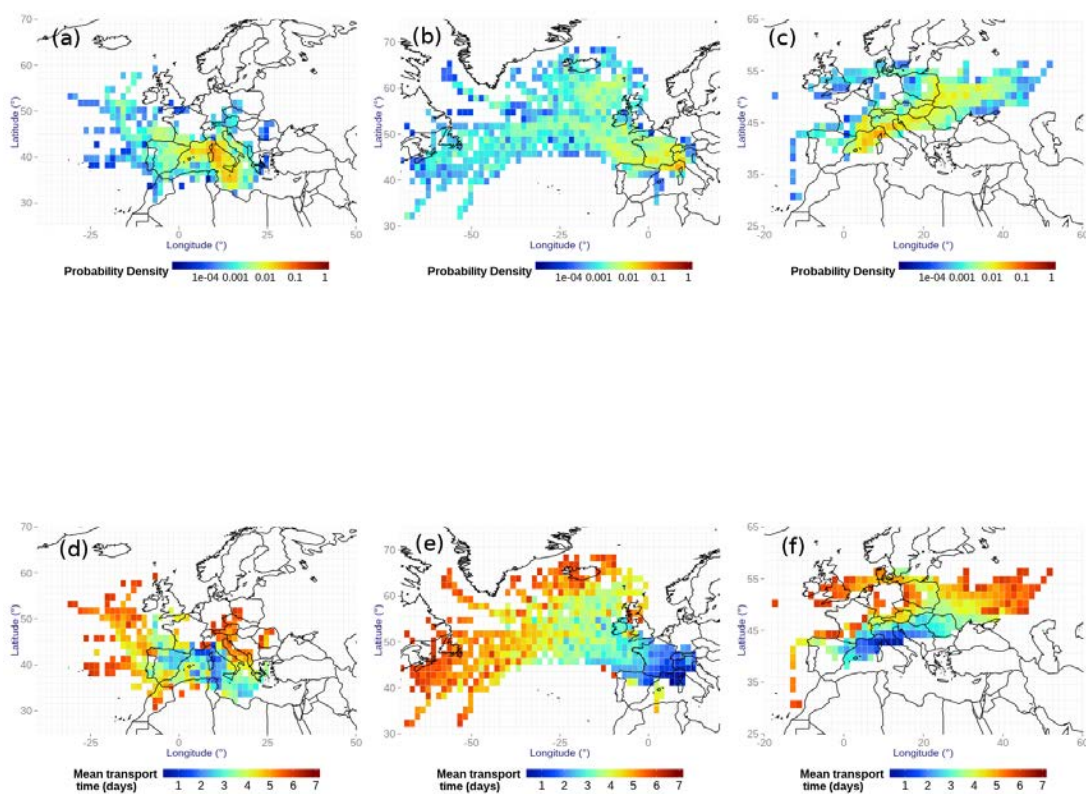
**Figure 5.** Ratio of inorganic sea salt mass concentration (PILS-IC) over PM<sub>10</sub> mass concentration (TEOM PM<sub>10</sub>).



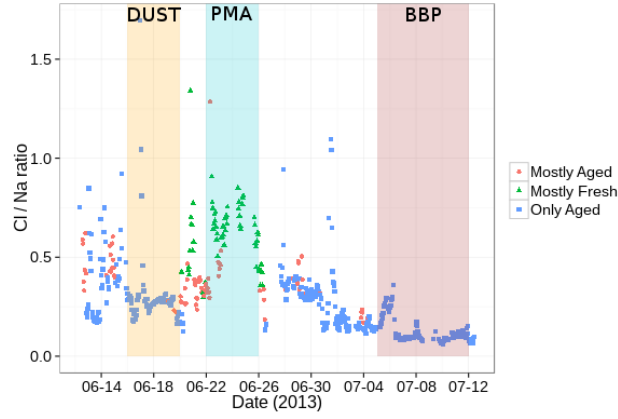
**Figure 6.** Maps representing the different zones used for the study of the origin of air masses with Flexpart. (a) Anthropogenic and desert zones (Red for Spanish coasts, Dark Blue for French coasts, Green for Italy, Blue to Greece, Orange and Yellow for Northern Africa; (b) Marine zones (G corresponds to Gulf of Lion, B to Bay of Biscay).



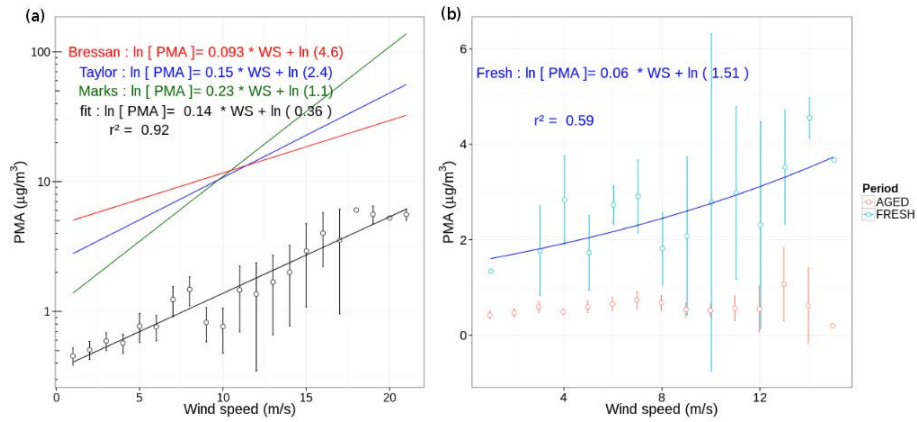
**Figure 7.** Time series of air mass sources derived from the Flexpart back trajectory simulations at 500 m from 07/06/2013 to 13/07/2013. The top figure (a) represents the passage of an air mass through the different zones before they reached Ersu. (b) represents the transport time of the air masses from each zone in (a) to Ersu.



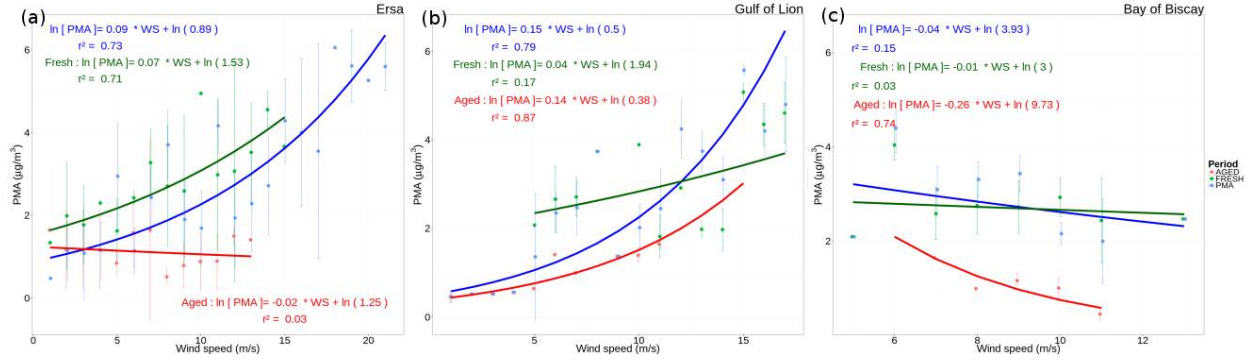
**Figure 8.** FLEXPART maps representing for the top ones ((a), (b) and (c)) the probability density of the back trajectories for the three periods : Dust, PMA and BBP respectively. The bottom ones ((d), (e) and (f)) represents the mean transport time from the Ersa station for the three periods: Dust, PMA and BBP respectively. Each backtrajectory starts at 500 m from the Ersa measurement site.



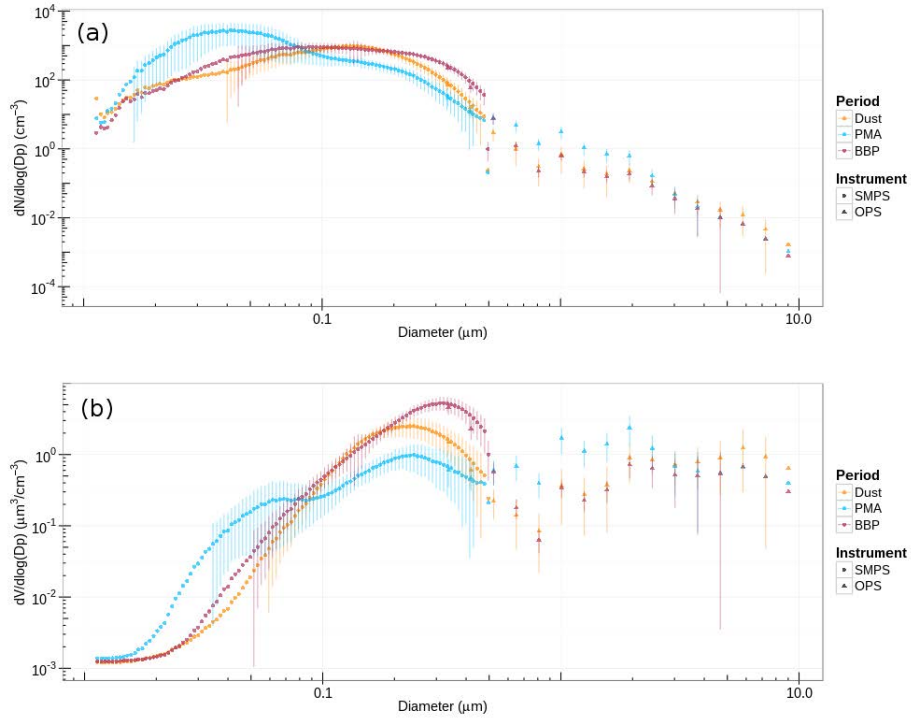
**Figure 9.** Comparison of the two instruments ATOFMS and PILS-IC for inorganic component of sea salt aerosols. The time series represents the mass ratio of chloride to sodium ions calculated from the PILS-IC measurements. The marker color represents the degree of ageing determined by the ATOFMS.



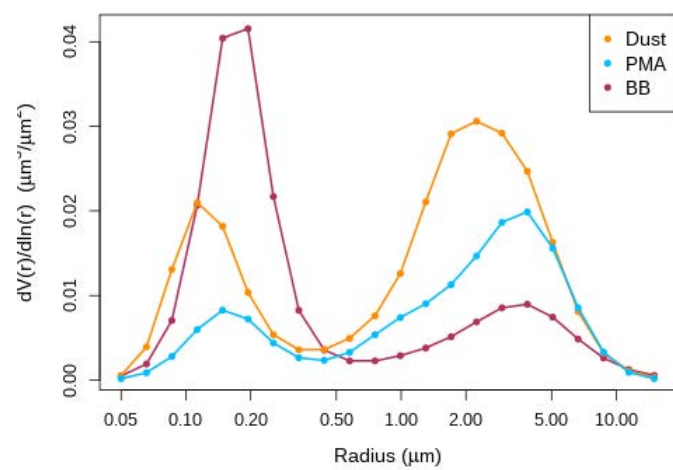
**Figure 10.** PMA concentration measured at Ersa as a function of wind speed for the ADRIMED period. The PMA concentrations have been averaged by wind speed bins of  $1 \text{ m s}^{-1}$ . The errorbars represent  $\pm 2\sigma / \sqrt{N}$  ( $N$  is the number of independent measurements). (a): the black curve correspond to measurements, while the red, blue and green curves correspond to fits parameters by Bressan and Lepple (1985); Taylor and Wu (1992); Marks (1990). (b): represents fresh (blue curve) and aged (red curve) PMA during the whole campaign. .



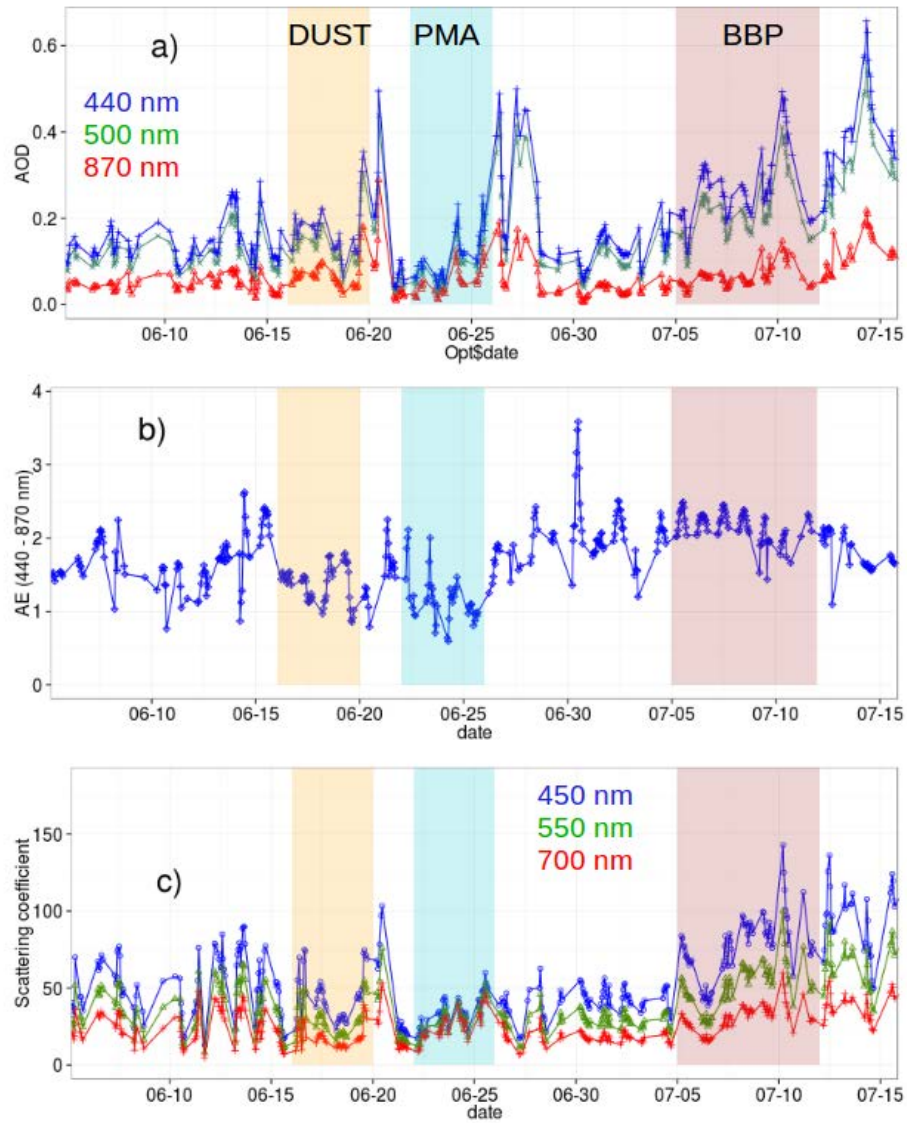
**Figure 11.** Concentration of sea salt aerosols measured by the PILS IC as a function of wind speed measured at Ersaa (a), at the Gulf of Lion buoy (b) and at the Bay of Biscay buoy (c), for the PMA period. An offset of 12h and 60h has been applied between the wind speed measurements in the Gulf of Lion and the Bay of Biscay respectively and the PMA concentrations observed at Ersaa to account for transport time of the air masses. The PMA concentrations have been averaged by wind speed bins of  $1 \text{ m s}^{-1}$ . The error bars represent  $\pm 2\sigma / \sqrt{N}$ . Blue curves represents all the PMA measurements, while green and red curves represent fresh and aged PMA respectively.



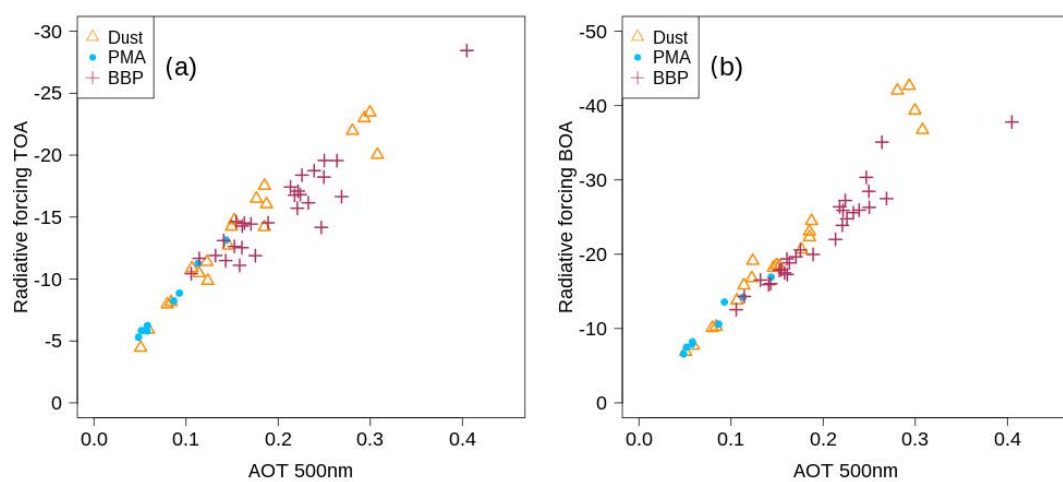
**Figure 12.** Number (a) and volume (b) size distribution averaged by periods of Dust, PMA, and BBP using the SMPS and OPS instruments. The dry diameters range 10 nm to 10  $\mu\text{m}$ . The first and last day of each period was removed to capture the main feature and the maximum amplitude of the event.



**Figure 13.** AERONET volume size distributions averaged for the three periods.



**Figure 14.** Time series of (a) Atmospheric Optical Depth (AOD) at 3 wavelengths ( 440, 500 and 870 nm) measured by the radiometer from the AERONET network situated at the Semaphore during the ADRIMED campaign, (b) Angstrom exponent calculated from AERONET data, during the ADRIMED campaign, using the extinction measurements at 440 and 870 nm, (c) Scattering coefficient at three wavelengths ; 450 nm (blue), 550nm (green) and 700 nm (red) measured by the nephelometer situated at Ersä.



**Figure 15.** Aerosol radiative effect at (a) the Top of the Atmosphere (TOA) and (b) the Bottom of the Atmosphere (BOA) represented as a function of the aerosol optical thickness (AOT) for each of the major periods, retrieved from AERONET.

## 3.4 Conclusion

Les observations réalisées pendant la campagne de mesure ChArMEx-ADRIMED ont permis de caractériser les aérosols marins sur le site de mesure d'Ersa (Cap Corse) pendant l'été 2013. Les rétrotrajectoires FLEXPART, combinées avec les mesures in-situ de distribution granulométrique et de composition chimique ont permis de repérer trois périodes impactées par différents régimes d'aérosols et de caractériser les impacts relatifs de chacune de ces espèces et en particulier la période du 22 au 26 juin, où la station d'Ersa était majoritairement influencée par des aérosols marins (PMA). En effet, pendant ces cinq jours, la concentration en masse  $PM_{10}$  des aérosols marins a atteint jusqu'à  $6.5 \mu g m^{-3}$ , représentant plus de 40 % de la masse totale, ce qui en faisait l'espèce majoritaire impactant le site. Ainsi les propriétés physico-chimiques, optiques et radiatives des aérosols marins ont pu être évaluées et comparées à deux autres périodes sous influence d'aérosols désertiques et d'origine anthropique. Pendant la période PMA, la station d'Ersa était influencée par des vents de secteur ouest, transportant des masses d'air du golfe du Lion, des côtes méditerranéennes françaises et espagnoles et du golfe de Gascogne. L'analyse combinée de la concentration en masse relative des principaux composants des aérosols marins, i.e les ions  $Na^+$  et  $Cl^-$ , et des mesures de composition chimique des aérosols effectuées avec l'instrument ATOFMS a permis d'étudier le vieillissement des aérosols marins impactant la station. En conclusion, la majorité des aérosols marins mesurés sur le site avait déjà subi des réactions chimiques et n'était donc pas fraîchement émis au niveau des côtes du Cap Corse, mais plutôt transportés sur de longues distances. En particulier, pendant la période PMA, deux origines d'aérosols marins ont été identifiées, à l'aide des mesures de vitesses de vent locales et des rétrotrajectoires FLEXPART. Ainsi, des aérosols catégorisés comme « frais » avait une origine local dans des conditions de vents forts alors que des aérosols catégorisés comme « âgés » étaient probablement originaires du golfe du Lion plutôt que du golfe de Gascogne. La distribution de taille des aérosols observés pendant la période du 22 au 26 juin (mélange d'aérosols marins et d'autres influences) a été analysée. Aucune différence majeure n'a été repérée en fonction du vieillissement des aérosols marins. Cependant, les diamètres des modes issus de l'ajustement de la distribution de taille sont en accord avec d'autres mesures effectuées à Mace Head (côtes irlandaises) (Ovadnevaite et al., 2014) ainsi qu'avec des observations réalisées dans la baie de Calvi, en Corse également. L'influence majoritaire des aérosols marins a également été notée par un AOD de 0.11 (à 500 nm), caractéristique d'atmosphère marine dans le bassin méditerranéen, ainsi que par un coefficient d'angstrom compris entre 0.4 et 2, dénotant un mélange de particules fines et grossières.

L'impact radiatif direct des aérosols pendant la période PMA était assez faible dans les courtes longueurs d'ondes. Ainsi à la surface, l'ERD était en moyenne de  $-11 \pm 3 W m^{-2}$  et de  $-8 \pm 3 W m^{-2}$  au sommet de l'atmosphère. L'impact radiatif direct des aérosols pendant les deux autres périodes, Dust et BBP, est en comparaison plus important, d'environ  $-20 W$

---

$\text{m}^{-2}$  à la surface et  $-15 \text{ W m}^{-2}$  au TOA. Cependant, même si le forçage radiatif des aérosols marins a une amplitude plus faible, son impact est permanent à cause de sa présence continue dans l'atmosphère marine.



# Chapitre 4

## MesoNH - Présentation et développements

### Sommaire

---

<b>4.1</b>	<b>Le modèle MesoNH . . . . .</b>	<b>86</b>
4.1.1	Schéma de Surface . . . . .	87
4.1.2	Schéma aérosols . . . . .	87
4.1.3	Dépôt des aérosols marins . . . . .	91
4.1.4	Schéma radiatif . . . . .	92
<b>4.2</b>	<b>Développements apportés au modèle . . . . .</b>	<b>92</b>
4.2.1	Schéma d'émission d'Ovadnevaite et al. (2014) . . . . .	92
4.2.2	Croissance hygroscopique des aérosols marins . . . . .	94
<b>4.3</b>	<b>Tests de Sensibilité . . . . .</b>	<b>95</b>
4.3.1	Viscosité cinématique de l'eau . . . . .	95
4.3.2	Contribution de la hauteur significative des vagues et de la vitesse du vent à la fonction source . . . . .	98
4.3.3	Comparaison entre deux schémas d'émission : Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014) . . . . .	102
<b>4.4</b>	<b>Nesting et Forçage . . . . .</b>	<b>107</b>
4.4.1	Grid nesting . . . . .	107
4.4.2	Forçages météorologiques . . . . .	111
<b>4.5</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>112</b>

---

*Dans ce chapitre, les modèles atmosphérique et de surface, MesoNH et SURFEX, sont présentés ainsi que les différents schémas utilisés dans le modèle MesoNH. En particulier, le schéma d'émission d'aérosols marins primaires, basé sur la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014) et implémenté dans le cadre de ce travail, est présenté et des tests de sensibilité aux différents paramètres intervenant dans l'émission sont analysés. Afin de comprendre*

*l'apport du modèle aux observations pour évaluer et/ou quantifier le phénomène du vieillissement des aérosols marins, la contribution et l'importance des paramètres intervenant dans les flux d'émission a été analysée pour deux situations avec des vitesses de vent similaires et des hauteurs de vagues différentes. Une étude sur la comparaison avec l'ancien schéma d'émission (Schulz et al., 2004) a également été réalisée. Pour finir, les étapes de preprocessing inhérentes à l'utilisation du modèle sont présentées.*

## 4.1 Le modèle MesoNH

MesoNH est un modèle atmosphérique non-hydrostatique à aire limitée utilisé pour la recherche (Lafore et al., 1997) et développé conjointement par le Laboratoire d'Aérodynamique (UMR 5560 UPS/CNRS) et le CNRM (UMR 3589 CNRS/Météo-France). Il utilise un système d'équations non-hydrostatiques, ce qui lui permet de traiter des situations de petite (Large Eddy Simulations) et grande (synoptique) échelle. Une description détaillée du modèle est disponible sur le site <http://mesonh.aero.obs-mip.fr/mesonh52>. Les fluctuations de pression sur la verticale sont autorisées, comprenant les accélérations verticales nécessaires à la représentation des processus convectifs. Ce modèle utilise un système d'équations basé sur l'approximation anélastique, i.e les fluctuations de pression ne peuvent pas atteindre le domaine acoustique.

Il est possible d'utiliser MesoNH en grid-nesting, c'est-à-dire avec plusieurs domaines imbriqués, pour améliorer la résolution horizontale sur une région spécifique. Les différents domaines sont reliés par deux flux d'informations représentant l'interaction bi-dimensionnelle :

- Un flux descendant les échelles spatiales (one-way) permettant de fournir les conditions limites au domaine intérieur par interpolation des champs du domaine extérieur à chacun de ses pas de temps.
- Un flux remontant les échelles spatiales (two-way) permettant de relaxer les valeurs du domaine extérieur vers une moyenne des champs du domaine intérieur sur le domaine de recouvrement des deux domaines à chaque pas de temps du domaine extérieur.

Les simulations 1D, 2D et 3D peuvent être opérées par MesoNH, afin de représenter des cas idéalisés ou réalistes. Un module de chimie est implémenté dans le modèle, afin de reproduire notamment les aérosols naturels primaires, dont les aérosols marins et les poussières désertiques, les aérosols secondaires et les interactions chimiques (Tulet et al., 2005; Grini et al., 2006; Bègue et al., 2012). MesoNH est couplé avec un modèle de surface, SURFEX qui permet de prendre en compte différents types de surface, comme la végétation, les villes, les lacs ou les océans qui nous intéressent pour cette étude. L'un des intérêts du modèle MesoNH est le couplage "on-line" du schéma d'aérosols avec le rayonnement. Il permet d'étudier l'impact radiatif des aérosols et leurs possibles rétroactions sur certaines variables météorologiques comme la température et l'humidité relative.

L'étude de l'effet radiatif direct des aérosols marins par le modèle MesoNH implique des processus dynamiques, chimiques et radiatifs. La suite de cette partie s'attache à présenter les différents schémas intervenant dans ces simulations.

#### 4.1.1 Schéma de Surface

SURFEX (Surface EXternalisée) est un code couplé à MesoNH et développé à Météo-France, utilisé pour simuler les échanges surface-atmosphère (Masson et al., 2013). Ce modèle simule les bilans d'eau et d'énergie à la surface du sol et dans la couche limite de surface en interaction avec l'atmosphère. De plus, il simule également d'autres flux et variables comme les flux chimiques gazeux et particulaires. La version utilisée pour cette étude est la 7.3. SURFEX possède plusieurs modèles correspondant à quatre types de surface : ISBA (sols naturels (Noilhan et Planton, 1989)), TEB (ville (Masson, 2000)), *WATERFLUX* (lacs (Salgado et Le Moigne, 2010)) et *SEAFLUX* (mers et océans (Redelsperger et al., 2000)). C'est dans le schéma *SEAFLUX* que se trouvent les émissions d'aérosols marins. Pour les simulations effectuées dans cette étude, les quatre schémas de surface étaient activés mais les schémas nous intéressant le plus sont ISBA et *SEAFLUX*. ISBA évalue les flux de surface (chaleur, humidité, quantité de mouvement) et calcule les variables pronostiques suivantes : les températures de surface et du sol profond ; les contenus en eau de la surface, du sol profond et à la surface des végétaux ; l'eau liquide, l'albédo et la densité du réservoir de neige. ISBA calcule les flux turbulents de quantité de mouvement et de chaleur sensible et latente dégagés par le système sol-végétation suite au flux radiatif net absorbé.

#### 4.1.2 Schéma aérosols

Avant de présenter la paramétrisation des aérosols dans MesoNH, la physique gouvernant la distribution de taille des aérosols est rappelée.

##### Distribution de taille des aérosols

Une des caractéristiques principales des populations d'aérosols est leur distribution de taille. Ce paramètre est primordiale car il permet de reconnaître les différents types d'aérosols et de définir leur propriétés hygroscopiques et optiques. La distribution qui est généralement utilisée pour représenter le spectre granulométrique des aérosols est la loi lognormale (Equation 4.1).

$$\frac{dN}{d \log(d_p)} = \frac{N}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_g)} \exp \left( -\frac{(\log(d_p) - \log(d_{pg}))^2}{2(\log(\sigma_g))^2} \right) \quad (4.1)$$

Un mode lognormal est défini par trois paramètres : un diamètre modal ( $d_{pg}$ ), un écart-type ( $\sigma_g$ ) et une concentration ( $N$ ). La distribution de taille en nombre s'exprime en particules

$\text{cm}^{-3}$ . On peut également exprimer la distribution de taille en surface, masse ou volume, d'unité respective  $\mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$ ,  $\mu\text{g m}^{-3}$  et  $\mu\text{m}^3 \text{cm}^{-3}$ . Les distribution en nombre, surface et volume sont représentées sur la figure 4.1. Chaque type d'aérosol est en général composé de plusieurs modes lognormaux. On distingue, par ordre de taille, les modes ultrafins, Aitken, d'accumulation et grossiers.

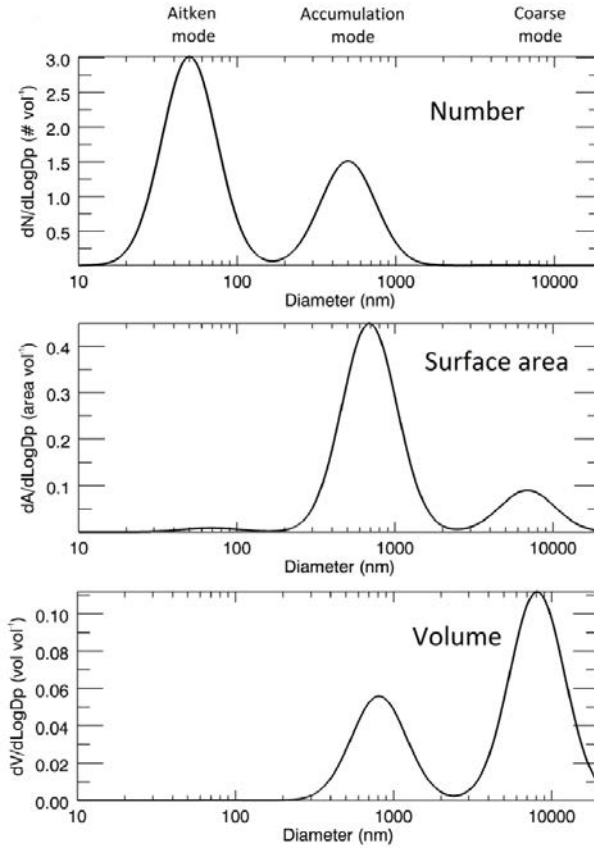


FIGURE 4.1 – Distribution de taille en nombre (figure du haut), en surface (figure du milieu) et en volume (figure du bas) d'une population d'aérosols (Seinfeld et Pandis, 2016).

### Les aérosols dans MesoNH

Les émissions des aérosols sont effectuées par le modèle de surface externalisée (SURFEX) de MesoNH qui envoie ensuite les moments de la distribution de taille au modèle atmosphérique. On suppose que la distribution de taille des aérosols marins est constituée de trois (Schulz et al., 2004) ou cinq modes (Ovadnevaite et al., 2014) lognormaux et ces modes sont décrits par leur 0, 3<sup>eme</sup> et 6<sup>eme</sup> moment. Ces 3 moments peuvent être ensuite transformés en variables diagnostiques de distribution de taille ;  $\sigma$  (coefficient de dispersion),  $r$  (rayon median) et  $N$  (concentration en nombre) (Tulet et al., 2005). Ce sont les trois paramètres nécessaires pour décrire le spectre granulométriques des aérosols, explicité en section 4.1.2. Les puits pour les aérosols marins sont la sédimentation et le lessivage par les nuages

convectifs. La sédimentation dépend de la taille des aérosols, les plus grosses particules ayant une vitesse de sédimentation plus élevée. Le lessivage suppose que les aérosols sont solubles dans les gouttelettes d'eau de pluie avec un facteur de solubilité égal à 0.3.

Ils est important de mentionner que les aérosols marins sont inertes dans cette étude. En d'autres termes, ils ne réagissent ni avec d'autres espèces d'aérosols ni avec des espèces gazeuses.

Dans le modèle, l'évolution prognostique de la distribution de taille des aérosols est déterminée par une équation de dynamique générale sans solution analytique (Eq. 4.2) (Friedlander, 1977; Seinfeld et Pandis, 2016) :

$$\frac{\delta n(r_p)}{\delta t} = f(n(r_p)) \quad (4.2)$$

où  $n$  est la fonction de distribution de taille des aérosols (particle  $\text{cm}^{-3}$ ) et  $r_p$  est le rayon des aérosols ( $\mu\text{m}$ ). Cette équation peut être intégrée pour obtenir le système d'équation 4.3 :

$$\frac{\delta M_k}{\delta t} = f(M_k) \quad (4.3)$$

où le  $k^{\text{ieme}}$  moment est donné par le terme  $M_k$  ( $\mu\text{m}^k \text{cm}^{-3}$ ) 4.4 :

$$M_k = \int_0^{\text{inf}} r_p^k n(r_p) dr_p \quad (4.4)$$

On peut exprimer  $f(M_k)$  en terme de moments.

Le  $k^{\text{ieme}}$  moment du mode  $i$  est défini comme :

$$M_{k,i} = \int_0^{\text{inf}} r^k n_i(r) dr \quad (4.5)$$

Après intégration et avoir effectué le changement de variable suivant :

$$x = \frac{\log(\frac{r}{D_g})}{\log(\sigma)} \quad (4.6)$$

on obtient

$$M_{k,i} = N R_g^k \exp\left(\frac{k^2}{2} \log^2(\sigma)\right) \quad (4.7)$$

On retrouve les trois paramètres qui décrivent la distribution de taille lognormale des aérosols,  $N$ ,  $r$  et  $\sigma$  :

$$N = M_0 \quad (4.8)$$

$$r_g = \left(\frac{M_3^4}{M_6 M_0^3}\right)^{\frac{1}{6}} \quad (4.9)$$

$$\sigma_g = \exp\left(\frac{1}{3}\sqrt{\log\left(\frac{M_0 M_6}{M_3^2}\right)}\right) \quad (4.10)$$

Les simulations lancées pour cette étude sont des simulations à 1 moment. Cette configuration signifie que seul le moment d'ordre 0 varie. Les deux autres moments sont fixés à l'initialisation. En d'autres termes, seule la concentration totale varie pendant la simulation, l'écart-type ainsi que le rayon modal sont fixes, pour chaque mode. De plus, la coagulation des aérosols n'a pas été simulée, ni la conversion gaz-particules.

### Anciens Schémas d'émissions d'aérosols marins

La version actuelle de MesoNH contient deux paramétrisations d'émissions des aérosols marins, Vignati et al. (2001) et Schulz et al. (2004). Pour ces deux paramétrisations, un seul paramètre, la vitesse du vent à 10 m, régit les émissions d'aérosols marins et trois modes caractérisent ces émissions. Pour Vignati et al. (2001), le diamètre modal est en nombre, alors qu'il est en masse pour Schulz et al. (2004), comme présenté dans le tableau 4.1

	Schulz et al. (2004)		Vignati et al. (2001)	
	Diamètre médian en masse ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma$	Diamètre médian en nombre ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma$
Mode 1	0.28	1.9	0.4	1.9
Mode 2	2.25	2.0	4.0	2.0
Mode 3	15.32	2.0	24.0	3.0

TABLE 4.1 – Diamètre et écart-type modaux de la distribution de taille lognormale des paramétrisations de Schulz et al. (2004) et Vignati et al. (2001)

Ces trois modes ont la même dépendance à la vitesse du vent, i.e il n'y a pas de dépendance de la taille des aérosols pour l'émission. La paramétrisation de Schulz et al. (2004) est basée sur des « look-up tables », alors que la paramétrisation de Vignati et al. (2001) est décrite par une fonction source (Eq. 4.11) :

$$\frac{dF}{d\log(r_{s0})} = \sum_{i=1}^3 \frac{N_i}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_i)} \exp\left(\frac{1}{2} \left(\frac{-\log(\frac{r_{s0}}{R_i})}{\log(\sigma_i)}\right)^2\right) \quad (4.11)$$

où  $N_i$  est fonction de la vitesse du vent selon les équations 4.12, 4.13, 4.13 pour chacun des trois modes :

$$N_1 = 10^{0.095U + 0.283} \quad (4.12)$$

$$N_2 = 10^{0.0422U - 0.288} \quad (4.13)$$

$$N_3 = 10^{0.069U-3.5} \quad (4.14)$$

La fonction source de Vignati et al. (2001) a été déterminée pour étudier les émissions d'aérosols marins en zone de surf et étudier l'évolution des aérosols marins dans un environnement côtier. En plus de l'unique dépendance à la vitesse de vent, cette spécificité a été déterminante dans le choix de ne pas utiliser cette fonction source pour la modélisation à haute résolution des aérosols marins dans le bassin méditerranéen à haute résolution.

Comme précisé précédemment, la précision du schéma d'émission d'aérosols marins a un effet prépondérant pour l'évaluation de leurs effets climatiques. L'incertitude sur les émissions d'aérosols marins détermine directement l'incertitude sur l'évaluation du forçage radiative de ces aérosols. C'est pourquoi les schémas d'émission de Schulz et al. (2004) et Vignati et al. (2001) ont été remplacé dans le modèle MesoNH par le schéma d'émission d'Ovadnevaite et al. (2014). Par ailleurs, les schémas de Schulz et al. (2004) et Vignati et al. (2001) n'avait jamais été testé dans le modèle MesoNH. C'est donc la première fois, par ce travail de thèse, que les aérosols marins font l'objet d'une étude spécifique avec le modèle MesoNH.

### 4.1.3 Dépôt des aérosols marins

Les aérosols marins, de façon similaire aux poussières désertiques, sont perdus par sédimentation et lessivage dans les nuages convectifs. La sédimentation dépend de la taille des aérosols, les plus grosses particules ayant une vitesse de sédimentation plus importante. Le dépôt sec des aérosols est déterminé par la diffusion Brownienne (Eq. 4.15) et par la vitesse gravitationnelle des particules (Eq. 4.16) :

$$D_p = \left( \frac{kT}{6\pi\nu\rho_{air}r_p} \right) C_c \quad (4.15)$$

$$V_g = \left( \frac{2g}{9\nu} \left( \frac{\rho_{pi}}{\rho_{air}} \right) r_p^2 \right) C_c \quad (4.16)$$

Où  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  la température ambiante,  $\nu$  la viscosité cinématique de l'air,  $\rho_{air}$  la densité de l'air,  $g$  l'accélération gravitationnelle,  $\rho_{pi}$  la densité des aérosols du mode  $i$ ,  $r_p$  le rayon des aérosols et  $C_c$  le coefficient de glissement. Etant donné que les aérosols sont représentés par des modes lognormaux dans MesoNH, ces formules sont moyennées pour chaque moment  $k$  et mode  $i$  selon l'équation 4.17

$$X = \frac{1}{M_{ki}} \int_{-\inf}^{\inf} X r_p^k n_i(\log(r_p)) d(\log(r_p)) \quad (4.17)$$

Où  $X$  représente  $D_p$  ou  $v_g$ .

Le dépôt sec des aérosols est représenté selon les équations de Seinfeld et Pandis (1997) et en utilisant le concept de résistance de Wesely (1989). La vitesse de friction  $u_*$  ainsi que

la vitesse de convection  $w_*$  qui interviennent dans ces relations dépendent des conditions météorologiques et de surface.

Le dépôt humide représente tous les processus liant les aérosols aux précipitations. Le lessivage par les nuages convectifs considère que les aérosols sont solubles dans les gouttelettes de pluie avec un facteur de solubilité égal à 0.3. La quantité d'aérosols collectés par une gouttelette est décrit par l'efficacité de collection  $E$ . Ce paramètre est paramétré dans MesoNH selon les travaux de Seinfeld et Pandis (1997) et Tost et al. (2006) et est basé sur une formulation semi-empirique (Slinn, 1979). Le dépôt humide des aérosols est déterminé de manière explicite pour calculer le transfert de masse des aérosols dans les gouttelettes et dans le nuage, en utilisant une approche cinétique.

#### 4.1.4 Schéma radiatif

MesoNH utilise le code du Centre Européen de Prévision à Moyen Terme (CEPMMT) pour traiter le transfert radiatif (Fouquart et Bonnel, 1980; Morcrette et al., 1986). Ce code est un modèle radiatif 1D qui néglige l'interaction entre les colonnes. Pour calculer les flux radiatifs, la colonne atmosphérique est divisée en deux parties, fraction de ciel clair et fraction de ciel nuageux. Les flux radiatifs montants et descendants sont calculés en prenant en compte les processus d'absorption et d'émission du rayonnement infrarouge thermique et les processus de réflexion, diffusion et absorption du rayonnement solaire par l'atmosphère (dont les aérosols) et la surface. Les flux SW sont calculés dans 6 bandes spectrales : 3 bandes entre 0 et 0.68  $\mu m$  et 3 bandes entre 0.68 et 4  $\mu m$ . L'absorption de la vapeur d'eau et du  $CO_2$  est prise en compte dans l'intervalle 0.68-4  $\mu m$  et les aérosols sont pris en compte dans la fraction de ciel clair de la colonne atmosphérique. L'effet radiatif des aérosols marins est déterminé à partir de trois paramètres optiques ; AOD (Atmospheric Optical Depth), SSA (Single Scattering Albedo) et facteur d'asymétrie, à plusieurs longueurs d'ondes. Le calcul des flux LW utilise le schéma RRTM (Rapid Radiation Transfer Model) qui est actuellement opérationnel au CEPMMT (Mlawer et al., 1997). De part leur large spectre granulométrique, les aérosols marins peuvent interagir avec le rayonnement SW et LW. Les deux plages de longueurs d'ondes sont abordées dans cette étude. Le schéma de transfert radiatif est appelé toutes les 20 minutes dans les simulations de cette étude.

## 4.2 Développements apportés au modèle

### 4.2.1 Schéma d'émission d'Ovadnevaite et al. (2014)

Le nouveau schéma d'émission qui a été implémenté est basé sur la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014). Comme indiqué précédemment dans la section 2.2.2, cette paramétrisation est basée sur des mesures expérimentales d'eddy covariance en pleine mer dans

l’océan Atlantique Nord (campagne bateau SEASAW (Norris et al., 2012)) et sur des mesures in-situ réalisées à la station d’observation GAW de Mace Head. Ces observations ont été réalisées pendant une période d’activité biologique faible. La distribution de taille des aérosols marins est décrite par 5 modes lognormaux dont les diamètres modaux sont compris entre 18 nm et 850 nm (Tableau 4.2). Les deux premiers représentent les particules ultra-fines ; les deux modes suivant représentent le mode d’accumulation et le cinquième mode représente le mode grossier.

Contrairement aux schémas de Schulz et Vignati, ces cinq modes ont une dépendance différente aux différents facteurs régissant l’émission. Ainsi, pour certaines conditions de vitesse de vent ou de hauteur de vagues, un mode va être préférentiellement émis par rapport aux autres. Cette particularité est plus réaliste, car on a vu précédemment que la taille des aérosols marins émis dépendait des conditions extérieures. En particulier les aérosols formés par écrêtement, pour des vitesses de vent supérieures à  $8 \text{ m s}^{-1}$  qui se situent dans le mode grossier. Chacun des cinq modes émis est déterminé par une fonction,  $F_i(\text{Re}_{Hw})$ , qui dépend d’un nombre de Reynolds,  $\text{Re}_{Hw}$ , qui est calculé à partir de la vitesse de friction à la surface de l’eau,  $u_* [\text{m s}^{-1}]$ , la hauteur significative des vagues,  $H_w [\text{m}]$ , et par la viscosité cinétique de l’eau,  $\nu_w [\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$ , selon l’équation 4.18. Le paramètre  $\nu_w$  dépend de la température de surface de l’eau (SST) et de sa salinité, selon les équations (8) et (22) de Sharqawy et al. (2010).

$$\text{Re}_{Hw} = \frac{u_* H_w}{\nu_w} \quad (4.18)$$

	Diametre ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma$	$F_i(\text{Re}_{Hw})$
Mode 1	0.018	1.37	$104.5 (\text{Re}_{Hw} - 1 \cdot 10^5)^{0.556}$
Mode 2	0.041	1.50	$0.0442 (\text{Re}_{Hw} - 1 \cdot 10^5)^{1.08}$
Mode 3	0.09	1.42	$149.6 (\text{Re}_{Hw} - 1 \cdot 10^5)^{0.545}$
Mode 4	0.23	1.53	$2.96 (\text{Re}_{Hw} - 1 \cdot 10^5)^{0.79}$
Mode 5	0.85	1.85	$0.51 (\text{Re}_{Hw} - 2 \cdot 10^5)^{0.87}$

TABLE 4.2 – Diamètre modal, écart-type modal et le flux total en nombre en fonction du nombre de Reynolds ( $\text{Re}_{Hw}$ ) de la distribution de taille lognormale utilisés dans la paramétrisation d’Ovadnevaite et al. (2014).

L’équation 4.19 décrit le flux d’émissions des aérosols marins en fonction de leur taille.  $F_i(\text{Re}_{Hw})$  représente le flux par mode  $i$ ,  $D$  le diamètre sec de la particule,  $\sigma$  l’écart-type géométrique et  $D_{pg}$  le diamètre médian.

$$\frac{dF}{d \log(D)} = \sum_{i=1}^n \frac{F_i(Re_{Hw})}{\sqrt{2\pi} \log(\sigma_i)} \exp\left(\frac{1}{2} \left(\frac{\log(\frac{D}{D_{pg,i}})}{\log(\sigma_i)}\right)^2\right) \quad (4.19)$$

Dans le modèle MesoNH, tous les aérosols émis sont considérés comme inorganiques primaires (masse volumique et propriétés optiques). Cependant, Partanen et al. (2014) qui a également utilisé cette fonction source pour estimer le forçage direct et indirect des aérosols marins au niveau global avec le modèle ECHAM-HAMMOZ a considéré qu’une partie des flux d’émissions correspondait à des aérosols marins organiques et a déterminé leur fraction en masse basée sur la paramétrisation de Rinaldi et al. (2013). Cette paramétrisation est fonction de la concentration en chlorophylle *a* à la surface de l’eau (données satellitaires issues des extractions GlobColour) et de la vitesse du vent. Cependant, elle inclut un décalage temporel de 8 jours et est plus adaptée à des simulations globales et long-termes qu’à des cas d’études comme les simulations ADRIMED et SAFMED+ réalisées dans le cadre de ce travail. La possible présence d’aérosols marins organiques n’a donc pas été testée dans ce travail de thèse.

## 4.2.2 Croissance hygroscopique des aérosols marins

A l’origine, le calcul des propriétés optiques des aérosols marins ne prenait en compte que la masse sèche des particules. Cependant, la taille des aérosols marins, et donc leur propriétés optiques, sont fortement dépendant de l’humidité relative, comme présenté dans la section 2.3.4. Afin de prendre en compte la croissance hygroscopique des particules, la paramétrisation de Gerber (1985) a été rajoutée pour le calcul des propriétés optiques. L’équation 4.20 détermine le rayon humide des aérosols en fonction de l’humidité relative (RH (%)) et du rayon sec des aérosols ( $r_d$ ). Les valeurs des quatre constantes  $C_n$  sont indiquées dans le tableau 4.3.

$$r = \left( \frac{C_1 r_d^{C_2}}{C_3 r_d^{C_4} - \log(RH)} + r_d^3 \right)^{\frac{1}{3}} \quad (4.20)$$

$C_1$	$C_2$	$C_3$	$C_4$
0.7664	3.079	$2.573 \cdot 10^{-11}$	-1.424

TABLE 4.3 – Valeurs des constantes valides pour les aérosols marins utilisées pour la croissance hygroscopiques des aérosols selon la paramétrisation de Gerber (1985).

Cette relation a été validée pour des humidités relatives allant jusqu’à 95 % (Fan et Toon, 2011). Les facteurs de croissance pour les modes 1, 3 et 5 de la paramétrisation d’Ovadnevaite et al. (2014) sont présentés sur la figure 4.2.

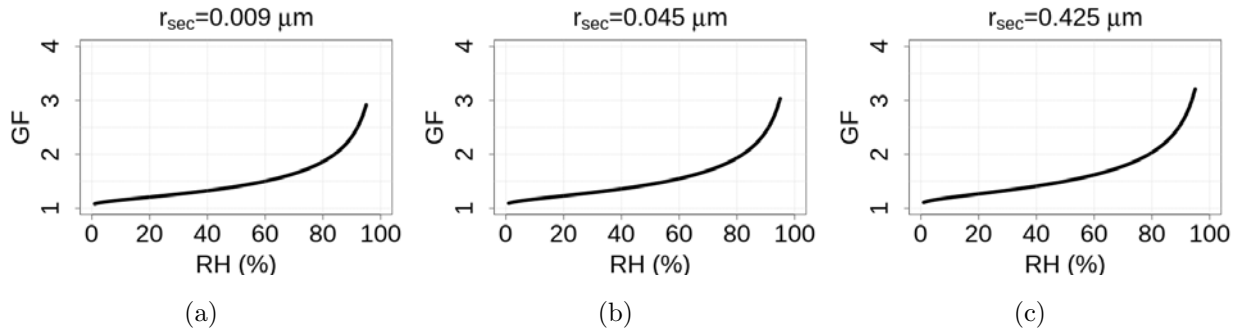


FIGURE 4.2 – Facteur de croissance (GF) en fonction de l’humidité relative (RH) pour les modes 1 (a), 3 (b) et 5 (c) de la paramétrisation d’Ovadnevaite et al. (2014).

La croissance hygroscopique des aérosols marins avec cette paramétrisation varie peu avec la taille des particules. Cependant, le rayon est doublé entre une RH de 50 % et une RH de 95%.

Cette paramétrisation modifie le rayon des particules ainsi que leur masse, désormais constituée pour partie d’eau liquide et de chlorure de sodium.

## 4.3 Tests de Sensibilité

Pour déterminer l’apport de la paramétrisation d’Ovadnevaite et al. (2014) et l’importance des différents paramètres y intervenant, des tests de sensibilité ont été réalisés. Les différents paramètres testés sont tout d’abord la viscosité cinématique de l’eau et sa dépendance à la salinité et à la température de l’eau, puis la hauteur significative des vagues et la vitesse du vent à 10 m.

### 4.3.1 Viscosité cinématique de l’eau

La salinité de surface de l’eau de la mer Méditerranée est sujette à des variations et des gradients assez importants. On rencontre ainsi des valeurs allant de 36 à 40 ‰ (Sevault et al., 2014), comme on peut l’observer sur la figure 4.3 qui représente la salinité moyenne en surface dans la mer Méditerranée pour les années 1980 à 2012. Les modèles globaux utilisent généralement une valeur fixe de salinité (35 ‰ (Partanen et al., 2014), 33‰ (Mårtensson et al., 2003; Sofiev et al., 2011)).

La salinité de l’eau de mer a un effet sur sa viscosité et sa tension de surface, qui vont à leur tour avoir un effet sur la quantité de couverture moutonneuse ainsi que sur le phénomène d’éclatement des bulles.

La température de l’eau influe quant à elle sur la tension de surface de l’eau, sa densité et sa viscosité. Elle a donc un impact sur la production d’aérosols marins via les bulles et la

$T_w$ (°C)	$\nu_w$ ( $10^{-6}m^2s^{-1}$ )
0	1.854
10	1.360
20	1.051
30	0.843
40	0.695

TABLE 4.4 – Viscosité cinématique  $\nu_w$  de l’eau de mer pour différentes températures de l’eau de mer ( $T_w$ ) et pour une salinité de  $35 \text{ g.kg}^{-1}$  selon la paramétrisation de Sharqawy et al. (2010).

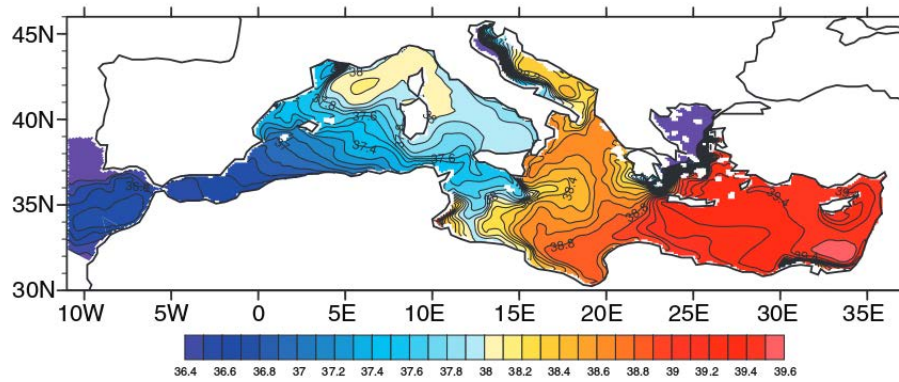


FIGURE 4.3 – Carte représentant la salinité en surface moyenne de la mer Méditerranée pour les années 1980-2012 et les mois d’été (JAS), simulée par le modèle CNRM-RCSM4. Figure extraite de Sevault et al. (2014).

formation des vagues déferlantes (Thorpe et al., 1992; Callaghan et al., 2012) ainsi que sur la couverture moutonneuse (Lewis et Schwartz, 2004).

La sensibilité de la viscosité cinématique de l’eau en fonction de la salinité et de la température de l’eau est présentée sur la figure 4.4. Pour des températures allant de  $0^\circ \text{C}$  à  $40^\circ \text{C}$  et pour des salinité de 10, 15, 28, 30, 35 et 39 ‰. On remarque tout d’abord que la variation de la salinité, pour toutes les valeurs de température n’impacte que très peu la viscosité cinématique. Ainsi, pour une température fixe et à deux salinité extrêmes (10‰ et 39 ‰), la différence de viscosité est au maximum de 6%. Au contraire, la variation de température induit une variation de viscosité beaucoup plus importante. En effet, pour une salinité fixe, la viscosité à  $0^\circ \text{C}$  est environ 66% plus importante que la viscosité à  $20^\circ \text{C}$  et jusqu’à 200% plus importante que la viscosité à  $40^\circ \text{C}$ . Comme vu précédemment, cette valeur ne varie que très peu en fonction de la salinité.

Ainsi, contrairement à l’influence de la salinité sur la viscosité, la température de l’eau de mer a donc une importance non négligeable. Les variations de salinité rencontrées dans la mer Méditerranée n’auront donc pas d’influence significative sur la viscosité cinématique et en conséquence sur l’émission des aérosols marins. De ce fait, l’effet de la variation de la

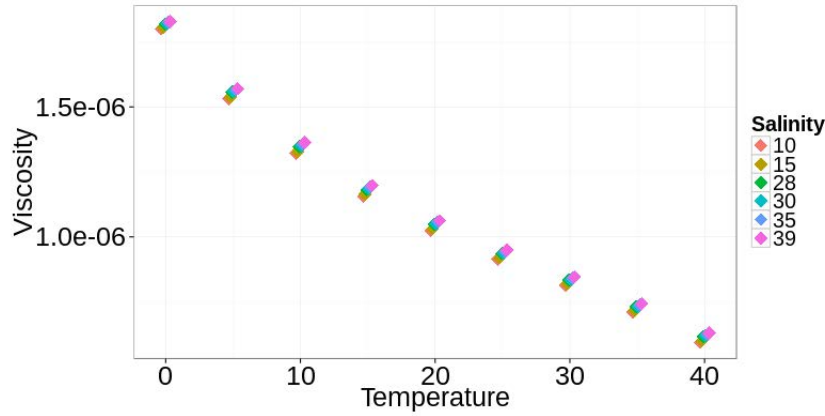


FIGURE 4.4 – Viscosité cinématique de l’eau de mer en fonction de la température de l’eau de mer (de 0°C à 40°C) et pour des salinités de 28, 30, 35 et 39 ‰.

salinité sur la production d’aérosols marins en mer Méditerranée est donc considéré comme négligeable et la salinité a été fixée à 35 g/kg dans le schéma d’émission du modèle.

Finalement, l’effet de la viscosité dynamique sur le nombre de Reynolds a été évalué pour différentes conditions de vitesse de friction du vent et de hauteur significative des vagues (Fig. 4.5). Pour ce faire, ces deux paramètres ont été regroupés en un seul qui correspond à  $u_* \times H_w$ . Ainsi, l’impact de la viscosité est évalué pour toutes les valeurs de  $R_e$  que l’on peut rencontrer.

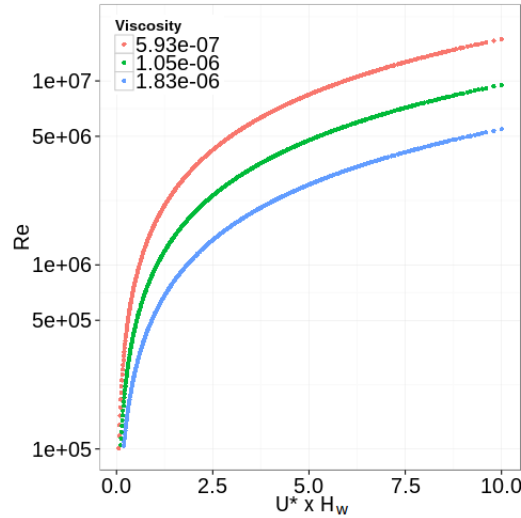


FIGURE 4.5 – Nombre de Reynolds représenté en fonction de valeurs  $u_*$  et  $H_w$  croissantes, pour trois viscosités cinématiques différentes. En rouge  $\nu(T_{40}, S_{10})$ , en vert  $\nu(T_{20}, S_{30})$  et en bleu  $\nu(T_0, S_{39})$

Pour des valeurs de  $R_e$  inférieures la valeur seuil de  $1 \times 10^5$ , il n’y a pas d’émission d’aérosols marins dans le schéma d’Ovadnevaite et al. (2014) et pour des valeurs comprises entre  $1 \times 10^5$  et  $2 \times 10^5$ , seuls les quatre premiers modes sont émis. Plus les conditions météorologiques (vitesse de friction et hauteur significative des vagues) sont importantes, plus  $R_e$  va

atteindre des valeurs fortes. De plus, la différence de viscosité a également un plus grand impact pour  $u_* \times H_w$  plus important. Ainsi, plus la viscosité est faible, et donc la SST élevée, plus  $R_e$  est important. La différence entre deux viscosité cinématique à 0° C et 40° C se traduit par une différence de facteur 3 sur  $R_e$  pour des conditions météorologiques extrêmes.

### 4.3.2 Contribution de la hauteur significative des vagues et de la vitesse du vent à la fonction source

La vitesse du vent à la surface est exprimée en fonction de la vitesse de friction dans cette paramétrisation. La vitesse de friction est exprimée dans MesoNH selon l'équation 4.3.2 :

$$u_* = \sqrt{C_d} \times u_{10} \quad (4.21)$$

Où  $C_d$  représente le coefficient de trainée (« drag coefficient » en anglais) et  $u_{10}$  le module du vent à 10 m.

L'objet de cette section est d'étudier l'impact de la hauteur des vagues pour des conditions de vent similaires sur les flux d'émission, afin de quantifier la contribution de ces deux paramètres à l'émissions des aérosols marins. Cette étude porte sur deux situations différentes rencontrées pendant la simulation ADRIMED. En effet, lors de ce cas d'étude, le 21 juin 2013 0000 UTC, une dépression se déplace au-dessus de l'océan Atlantique Nord jusqu'au golfe de Gascogne aux alentours du 23 juin 0000 UTC. Lors de son déplacement, les vitesses de vent atteignent plus de 25 m s<sup>-1</sup> et les hauteurs significatives des vagues 8 m. Les flux d'émission associés atteignent jusqu'à 1.0 µg m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>. Pour cette situation, la date du 22 juin 1800 UTC a été choisi (Fig. 4.6 (a)) car les flux d'émission sont proches de la côte française, et les vagues se sont fortement développées. La seconde situation se situe dans le bassin méditerranéen ouest (Fig. 4.6 (b)) pendant un cas de tramontane, le 24 juin 0600 UTC. Les vitesses de vent sont aussi importantes que pour la première situation, mais le fetch est beaucoup plus court. De ce fait, les hauteurs de vagues sont également plus faibles.

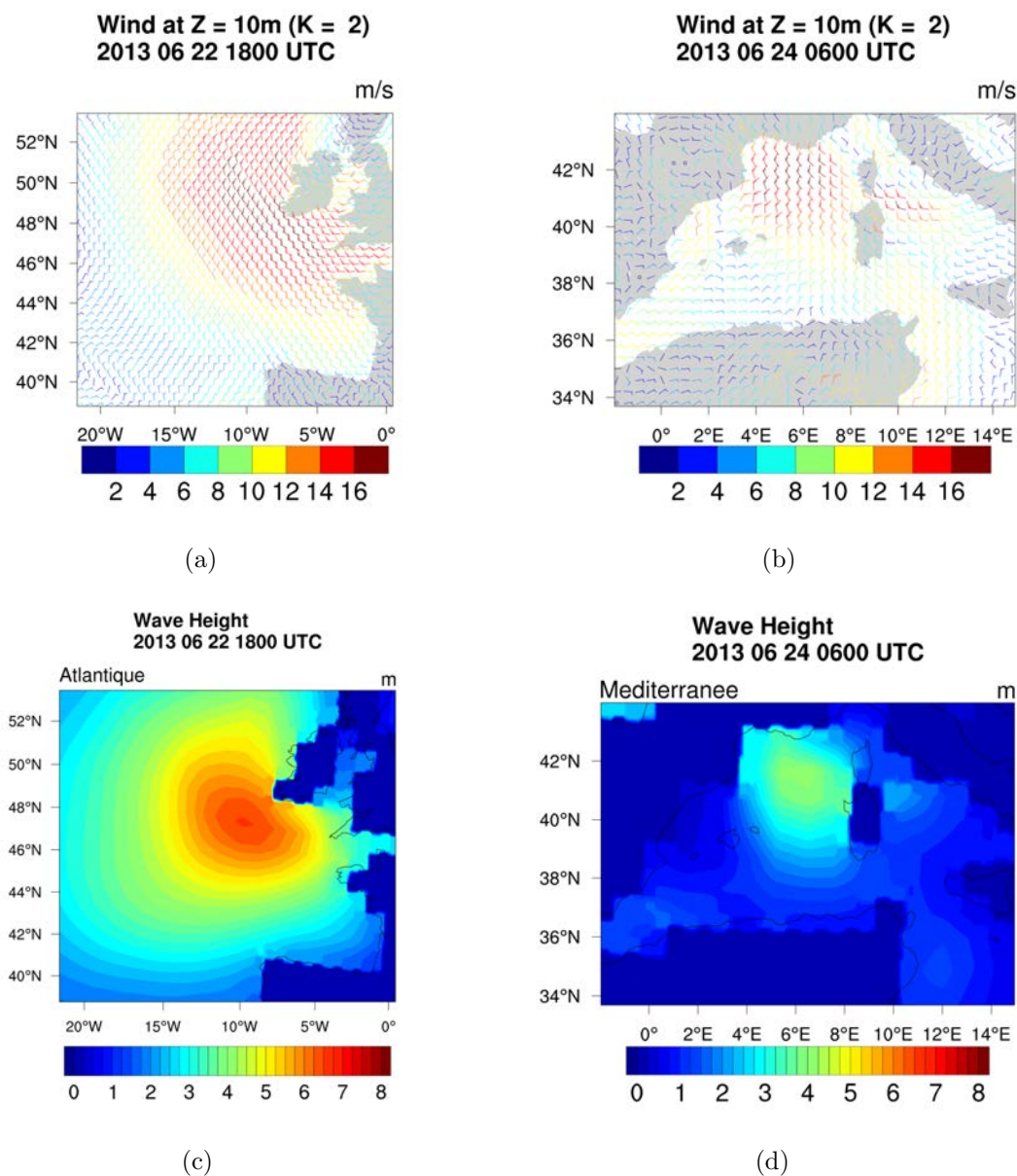


FIGURE 4.6 – Cartes présentant la vitesse et direction du vent à la surface ((a) et (b)) ainsi que la hauteur significative des vagues ((c) et (d)) sur les deux domaines d'étude : Océan Atlantique (22 juin 1800 UTC) et mer Méditerranée (24 juin 0600 UTC).

Pour ces deux dates et domaines, les valeurs maximales ainsi que les moyennes de vitesse de vent à la surface, hauteur significative des vagues et flux d'émission sont présentées dans le tableau 4.5.

Les figures 4.7 (a) et (b) présentent la hauteur significative des vagues en fonction de la vitesse du vent, pour les domaines Atlantique et Méditerranée respectivement. Les vitesses de vent sont similaires pour les deux cas, contrairement à la hauteur significative des vagues. Pour des vitesses de vent de  $17.6 \text{ m s}^{-1}$ , la hauteur significative des vagues atteint plus de 6 m en Atlantique alors qu'elle atteint 4 m dans le bassin Méditerranée. Les figures 4.7 (c) et (d)

présentent les flux d'émission en fonction de la vitesse du vent, pour les domaines Atlantique et Méditerranée, respectivement. La vitesse du vent à la surface atteint la même valeur maximale ( $17.6 \text{ m s}^{-1}$ ) pour les deux situations, bien que la moyenne soit plus importante sur le domaine Atlantique ( $10.2 \pm 4.5 \text{ m s}^{-1} > 5.8 \pm 3.4 \text{ m s}^{-1}$ ). Les flux d'émission sont cependant différents pour les deux cas. Ainsi, pour la situation en Atlantique, les flux sont plus importants et ils atteignent une valeur maximale de  $0.95 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  pour des vitesses de vent de  $17 \text{ m s}^{-1}$ . Pour le second cas, les flux atteignent  $0.80 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  pour les mêmes vitesses de vent. La différence en terme de flux d'émission est donc assez importante, de l'ordre de 19 %. Ce résultat indique clairement que la prise en compte de la hauteur des vagues pour l'émission des aérosols marins est primordiale. Cette étude a été réalisée pour un temps donné mais l'impact de la prise en compte de la hauteur significative des vagues sur les flux d'émission d'aérosols marins est visible. Ce résultat est de ce fait particulièrement important pour les cas d'étude où les fetchs sont forts différents.

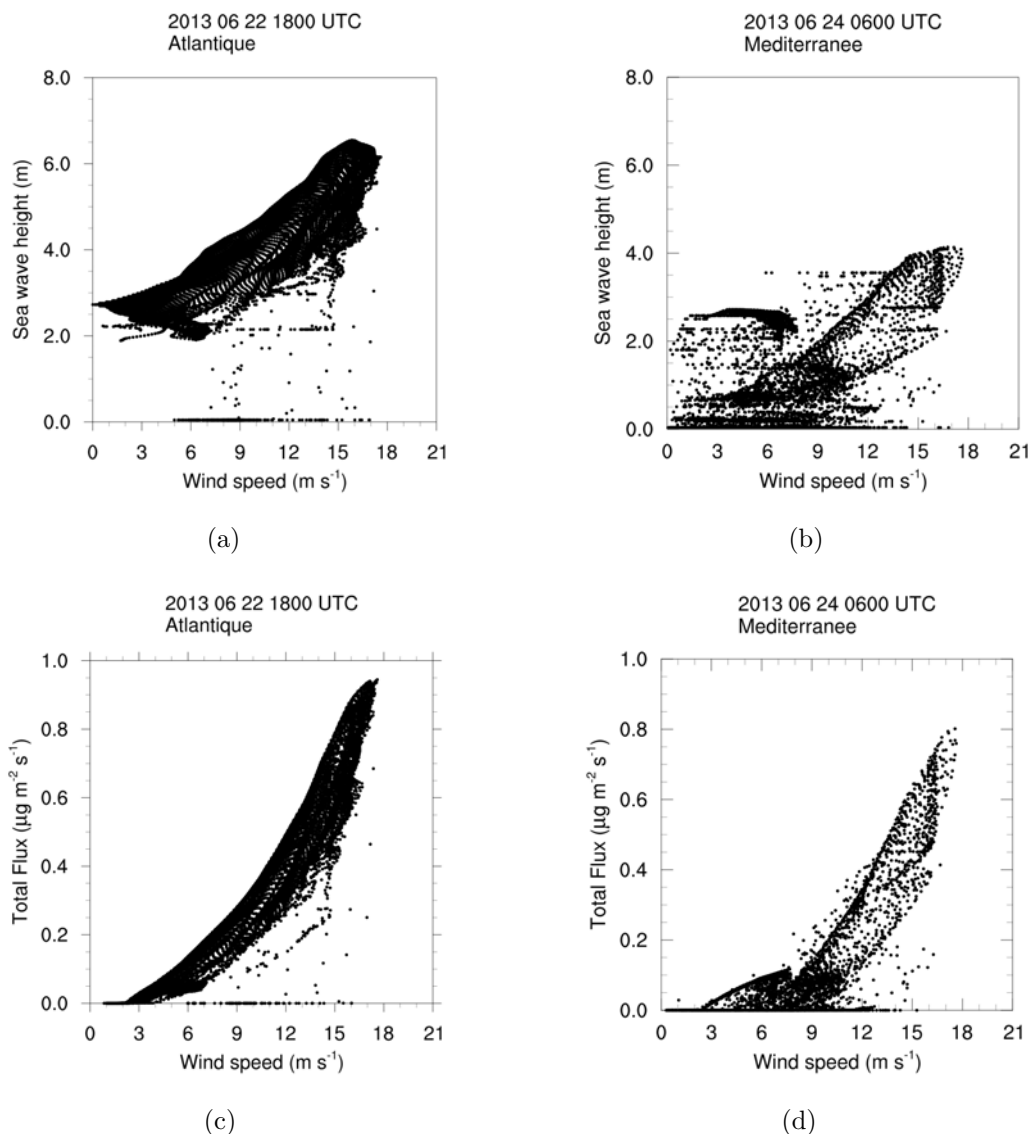


FIGURE 4.7 – Les figures (a) et (b) présentent la hauteur significative des vagues en fonction de la vitesse du vent pour le domaine Océan Atlantique et bassin méditerranéen Ouest respectivement. Les figures (c) et (d) présentent les flux totaux d'émission en fonction de la vitesse du vent pour le domaine Océan Atlantique et bassin méditerranéen Ouest respectivement. Les figures (a) et (c) correspondent au 22 juin 1800 UTC et les figures (b) et (d) au 24 juin 0600 UTC.

	$H_w$		$U_{10}$		Flux	
	mean	max	mean	max	mean	max
Mediterranee	$0.7 \pm 1.0$	4.1	$5.8 \pm 3.4$	17.6	$0.1 \pm 0.2$	0.8
Atlantique	$3.9 \pm 1.4$	6.6	$10.2 \pm 4.5$	17.6	$0.3 \pm 0.3$	0.9

TABLE 4.5 – Statistiques (moyenne, écart-type, valeur maximal) de la vitesse du vent, de la hauteur des vagues et des flux d’émissions sur les deux zones; océan Atlantique et mer Méditerranée.

Pour information, les équations utilisées pour calculer les différents scores statistiques sont présentées en annexe B.

### 4.3.3 Comparaison entre deux schémas d’émission : Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014)

L’objectif premier de l’implémentation d’un nouveau schéma d’émission des aérosols marins primaires dans le modèle MesoNH était d’améliorer la représentation de ces émissions. Dans cette section, la comparaison entre le schéma d’émission de Schulz et al. (2004), noté SCH01, (présenté section 4.1.2) et celui d’Ovadnevaite et al. (2014), noté OVA14, est présentée pour la simulation ADRIMED. Pour cela on se base essentiellement sur la modélisation des flux d’émissions au niveau régional ainsi que sur la concentration en masse observée à la station de mesure d’Ersa. Les analyses liées à l’évaluation du schéma OVA14 sont présentées par la suite, dans la section 5.2.

#### Flux d’émission simulés

Les cartes représentées sur la figure 4.8 présentent les flux d’émission en masse pour les dates du 18, 20, 22 et 24 juin 2013 à 1200 UTC pendant la simulation ADRIMED. Les figures du haut, milieu et bas sont respectivement les résultats de la simulation SCH01, OVA14 et leur différence.

Globalement, pour les deux schémas, les aérosols marins sont émis dans les mêmes zones mais avec une amplitude plus importante pour SCH01. Les zones d’émissions principales pendant la période ADRIMED sont donc la mer d’Alboran et au large des côtes portugaises (18 juin 1200 UTC), le golfe de Gascogne et les côtes marocaines (20 juin 1200 UTC), l’océan Atlantique Nord (où les émissions sont de loin les plus importantes) (22 juin 1200 UTC) et enfin le golfe du Lion le 24 juin 1200 UTC. La première différence importante entre les deux schéma réside dans l’amplitude des émissions. Ainsi les flux sont similaires dans l’océan Atlantique le 22 juin à 1200 UTC et dans le golfe du Lion le 24 à 1200 UTC pour SCH01 alors qu’on observe un gradient entre les deux zones pour OVA14. On retrouve ainsi l’effet de la prise en compte de la hauteur des vagues dans les processus d’émissions des aérosols

marins (Section 4.3.2). Les flux d'émissions maximaux dans l'océan Atlantique atteignent  $3.88 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  pour SCH01 et  $1.05 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  pour OVA14. Il y a donc un facteur 4 entre les deux schémas. Au niveau du golfe du Lion, les flux atteignent  $4.5 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  également pour SCH01 alors que les valeurs maximales simulées par OVA14 ne dépassent pas  $0.70 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ . La différence entre ces deux schémas est donc plus particulièrement marquée en mer Méditerranée comme on peut l'observer sur les figures 4.8 (k) et (l).

On remarque ensuite que les flux maximaux simulés par SCH01 le 24 juin à 1200 UTC ne sont pas situés dans le golfe du Lion mais au niveau de la mer Adriatique alors qu'OVA14 y simule des flux négligeables. Cette différence est d'ailleurs marquée par une valeur de  $5.61 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  entre les deux schémas. En moyenne, sur tout le domaine, les flux d'émissions sont quatre fois plus importants pour SCH01 que pour OVA14 (Tableau 4.6). Ces premiers résultats indiquent donc tout d'abord que le schéma SCH01 simule des émissions beaucoup plus importantes que le schéma OVA14 et que les valeurs y sont équivalentes aussi bien dans l'océan Atlantique que dans les mers Méditerranée ou Adriatique, contrairement à OVA14 qui simule des flux moins important dans le bassin méditerranéen que dans l'océan Atlantique.

		SCH01	OVA14	Difference
18 juin	Moyenne	$0.34 \pm 0.42$	$0.07 \pm 0.09$	$0.27 \pm 0.37$
1200 UTC	Max	3.39	0.47	3.37
20 juin	Moyenne	$0.28 \pm 0.33$	$0.06 \pm 0.07$	$0.23 \pm 0.28$
1200 UTC	Max	3.78	0.46	3.78
22 juin	Moyenne	$0.53 \pm 0.68$	$0.14 \pm 0.20$	$0.40 \pm 0.52$
1200 UTC	Max	3.9	1.05	3.35
24 juin	Moyenne	$0.32 \pm 0.47$	$0.07 \pm 0.10$	$0.25 \pm 0.39$
1200 UTC	Max	5.61	0.70	5.61

TABLE 4.6 – Statistiques (moyenne, écart-type et valeur maximal) des flux d'émissions des deux schémas (Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014)) pour quatre dates : 18, 20, 22 et juillet à 1200 UTC.

### Concentration en masse à la surface

Après avoir comparé les flux au niveau régional, nous disposons des concentrations en masse à la surface mesurées à la station d'Ersa pour évaluer à échelle locale les deux schémas d'émission. Cependant, il faudrait bien évidemment augmenter le nombre d'observations et cette première analyse fournit toutefois une première information. La figure 4.9 présente la concentration en masse en aérosols marins sur le site d'Ersa, du 18 au 26 juin 2013. La courbe bleue représente les observations du PILS-IC, et les courbes rouges et violettes représentent respectivement la concentration modélisée avec les schémas OVA14 et SCH01. La droite noire pointillée représente les observations effectuées sur les filtres Dekati.

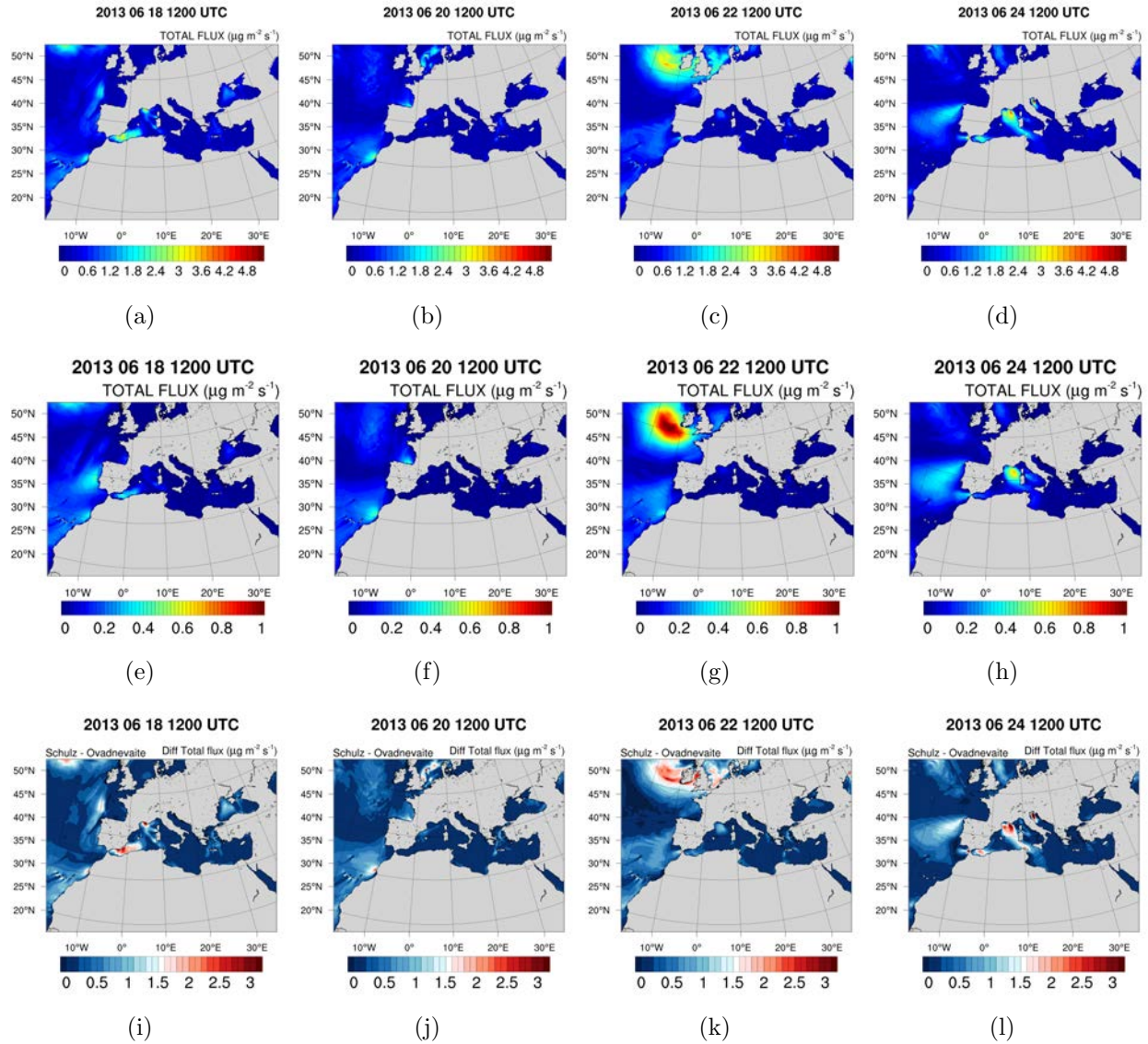


FIGURE 4.8 – Comparaison entre les flux d’émission en masse modélisés pendant la simulation ADRIMED avec les schémas d’émission Schulz et al. (2004) ((a), (b), (c) et (d)) et Ovadnevaite et al. (2014) ((e), (f), (g) et (h)). Les différences entre les flux d’émissions du schéma de Schulz et al. (2004) et d’Ovadnevaite et al. (2014) sont représentées figures (i), (j), (k) et (l). Les quatre dates représentées sont les 18, 20, 22 et 24 juin 2013 1200 UTC. Les échelles de couleur sont différentes pour les deux simulations et pour la différence des flux d’émission.

On remarque tout d'abord que la corrélation temporelle avec les observations est mauvaise pour les deux schémas, respectivement de 0.27 et 0.24 pour SCH01 et OVA14. Cependant on observe plusieurs différences pour les deux cas. Premièrement, du 19 au 22 juin, les amplitudes de la concentration en masse sont différentes pour SCH01 et OVA14, de l'ordre de  $15 \mu\text{g m}^{-3}$  et  $8 \mu\text{g m}^{-3}$ , respectivement. Elles suivent ensuite un schéma temporel différent, OVA14 simulant ses maxima de concentrations aux mêmes moments que les observations. La concentration en masse observée à la station d'Ersa est beaucoup plus faible et ne dépasse pas  $5 \mu\text{g m}^{-3}$  pendant cette période. Les deux schémas surestiment donc la concentration en masse à la surface d'un facteur 3 pour SCH01 et 1.6 pour OVA14. Pour cette première période, le schéma d'OVA14 a donc une meilleure représentativité que SCH01.

A partir du 22 juin, les deux schémas ont des comportements divergents et la différence est plus marquée. On observe des pics de concentrations à des instants différents pour les deux schémas. Ainsi, pour OVA14, des concentrations de  $3 \mu\text{g m}^{-3}$  sont simulés à la station d'Ersa le 22 juin après-midi alors que SCH01 ne simule qu'une concentration très faible ( $< 1 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Le maximum de concentration est atteint au même moment pour les deux schémas, le 24 juin vers minuit. Cependant elle est beaucoup plus importante par SCH01 ( $> 30 \mu\text{g m}^{-3}$ ) que par OVA14 ( $\sim 5 \mu\text{g m}^{-3}$ ), définie par un facteur 6 entre les deux schémas. OVA14 est donc plus proche des mesures in-situ dont la valeur maximale est de  $6 \mu\text{g m}^{-3}$ . Ce résultat est également noté par une dispersion des valeurs plus proche des observations pour OVA14 (1.53, 4.46 et 1.76 pour OVA14, SCH01 et les observations, respectivement). Le biais est cependant équivalent pour les deux schémas mais de signe différent pour cette seconde période ( $0.95 \mu\text{g m}^{-3}$  pour SCH01 et  $-1.12 \mu\text{g m}^{-3}$  pour OVA14).

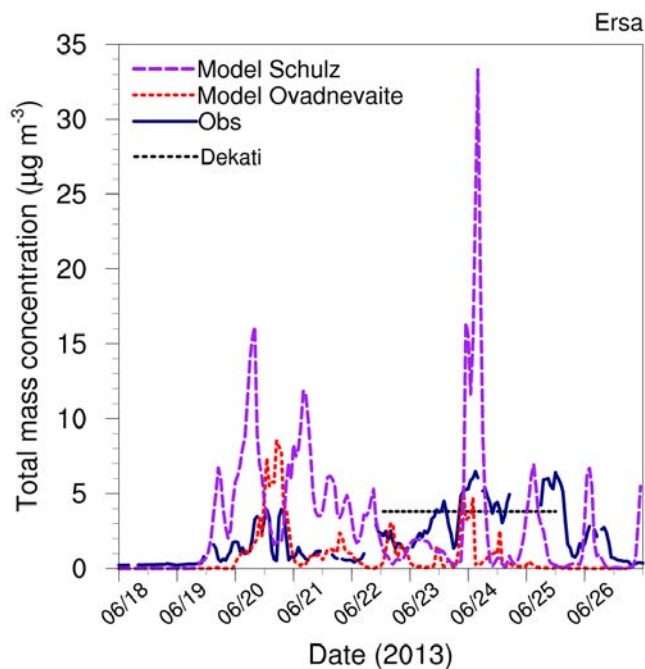


FIGURE 4.9 – Comparaison entre la concentration en masse des aérosols marins observée à Ersa et la concentration en masse simulée par les deux schémas : Schulz et al. (2004) et Ovadnevaite et al. (2014) à Ersa.

	Schulz et al. (2004)	Ovadnevaite et al. (2014)
Corr	0.27	0.24
Biais	0.95	-1.12
std (Obs)	1.76	1.76
std (Modèle)	4.46	1.53

TABLE 4.7 – Corrélations et biais entre la concentration en masse mesurée par le PILS-IC à Ersa et les concentrations en masse simulées par le modèle à Ersa avec les schémas d'émission de Schulz et al. (2004) et d'Ovadnevaite et al. (2014)

La différence observée entre ces deux schémas peut être expliquée en deux points. Le premier concerne la distribution de taille des modes caractérisant les aérosols marins. Le schéma de Schulz et al. (2004) à un spectre granulométrique qui ne prend pas en compte les plus petites particules (diamètre médian en masse du mode 1 :  $0.28 \mu\text{m}$ ) et qui au contraire prend en compte des particules jusqu'à un diamètre médian (en masse) de  $15.32 \mu\text{m}$ . Le schéma d'Ovadnevaite et al. (2014) à un spectre granulométrique beaucoup plus précis pour les particules fines et ultrafines (3 modes de diamètre modal allant de  $0.018$  à  $0.09 \mu\text{m}$ ). En revanche, les particules grossières ont un diamètre maximal de  $6 \mu\text{m}$  (diamètre médian de  $0.85 \mu\text{m}$  pour le mode 5). La concentration en masse, proportionnelle au rayon au cube, est

donc fortement influencée par les plus grosses particules. Ceci peut donc expliquer en partie la surestimation de la concentration en masse émise par le schéma de Schulz et al. (2004) par rapport au schéma d'Ovadnevaite et al. (2014). Le deuxième point concerne la dépendance de la fonction source aux paramètres intervenant dans l'émission. On a pu observer sur les figures 4.8 que les flux d'émission étaient beaucoup plus importants, d'un facteur quatre environ, pour SCH01 que pour OVA14. Les deux schémas utilisant la même paramétrisation pour le transport et le dépôt des particules, si SCH01 émet plus de particules, cela impacte forcément la concentration en masse à la surface. C'est ce que l'on observe à la station de mesure d'Ersa.

## 4.4 Nesting et Forçage

Cette dernière partie porte tout d'abord sur une des particularités du modèle MesoNH ; l'imbrication de plusieurs domaines. Les méthodes de forçages et d'appel aux champs météorologiques sont ensuite évoquées.

### 4.4.1 Grid nesting

Des domaines imbriqués ont été utilisés pour la simulation du cas d'étude ADRIMED. Le domaine principal, appelé domaine père, s'étend de l'océan Atlantique à l'extrémité Est du bassin méditerranéen et a une résolution horizontale de  $15 \text{ km} \times 15 \text{ km}$ . Pour pouvoir prendre en compte des effets de plus petite échelle ou des effets de relief, il est nécessaire de descendre en résolution. Pour réduire les coûts de calcul, on utilise le grid nesting, c'est-à-dire l'imbrication de plusieurs domaines de résolutions différentes. Ainsi, pour cette simulation, deux domaines imbriqués ont été rajoutés au domaine principal. Le deuxième domaine, appelé domaine fils, a une résolution horizontale de  $3 \text{ km} \times 3 \text{ km}$  et est centré au niveau de la Corse. Le troisième domaine est doublement imbriqué. Il est centré au niveau du Cap Corse, afin de mieux représenter le relief proche de la station de mesure d'Ersa, et a une résolution de  $0.5 \text{ km} \times 0.5 \text{ km}$ . Ces trois domaines sont représentés sur la figure 4.10.

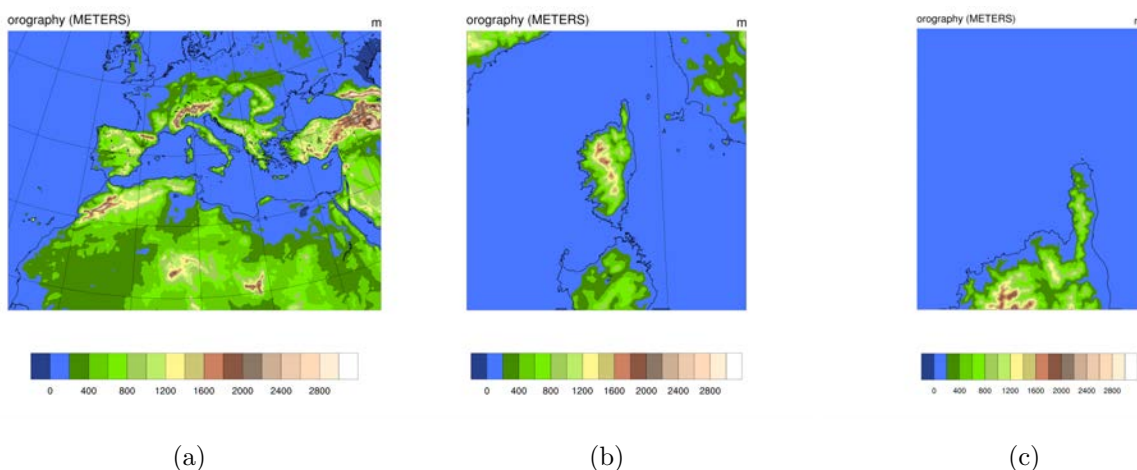


FIGURE 4.10 – Domaines père (a), fils (b) et petit-fils (c) utilisés pour la simulation ADRI-MED, de résolution horizontale respective de  $15 \times 15$  km,  $3 \times 3$  km et  $0.5 \times 0.5$  km.

Afin d'évaluer l'apport du grid-nesting et de la résolution horizontale à  $0.5 \times 0.5$  km, nous avons comparé les observations météorologiques (Température, humidité relative (RH), vitesse (WS) et direction (WD) du vent) obtenues à la station de mesure d'Ersa avec les résultat de la simulation. La comparaison de ces quatre paramètres est représentée sur les figures 4.11 (a) à (d). Sur ces quatres figures, les observations sont représentées en bleu marine et les simulations à 15 km et 500 m de résolution horizontale en bleu clair et rouge, respectivement.

En ce qui concerne la température, l'amplitude journalière est mieux représentée par le domaine à 500 m, dénotée par une amplitude plus proche des observations (ecart-type de 1.7 et 2.6 pour les résolutions de 15 km et 500m et de 3.7 pour les observations). Le biais est également réduit de 2 à 1.5 en augmentant la résolution horizontale, contrairement à la corrélation temporelle qui reste inchangée (0.85). La température ayant une dépendance diurnale forte (rayonnement solaire), la corrélation temporelle n'est donc pas le paramètre qui illustre le mieux la capacité du modèle à la représenter.

Contrairement à la température, la corrélation temporelle pour l'humidité relative est significativement améliorée en passant d'une résolution de 15 km à 500 m et on passe ainsi d'une corrélation de 0.25 à 0.61. La dispersion augmente légèrement (de 12.9 à 14), se rapprochant également des observations (20.2). Cependant, le biais est légèrement augmenté en améliorant la résolution (-8.6% à -10.8%). Concernant la vitesse du vent, on remarque que la simulation à 15 km est très éloignée des observations et ne suit pas le même schéma temporel, ce qui est caractérisé par la très faible corrélation (0.06). Bien que la corrélation entre les observations et la simulation à 500 m ne soit pas significative (0.38), on note tout de même une nette amélioration de ce score. Le biais est également presque réduit de moitié, on passe ainsi d'une sous-estimation de  $-0.6 \text{ m s}^{-1}$  à une sur-estimation de  $0.38 \text{ m s}^{-1}$ . Enfin,

la direction du vent est également mieux représentée par la simulation à plus fine résolution, avec un biais sensiblement réduit (22.1 à 3.1) et une corrélation qui devient significative (0.39 à 0.58). On note particulièrement un biais le 22 juin en fin de journée pour la simulation à 15 km, conjointement à une sous-estimation forte de la vitesse du vent. Pour finir, on observe que les deux simulations surestime la direction du vent à partir du 24 juin d'environ 80°. Si la résolution horizontale plus fine sur ce petit domaine améliore la représentation des effets locaux, les dérives du modèle au niveau régional ont tout de même un impact (direction du vent à partir du 24 juin).

La représentation de ces quatre paramètres est donc améliorée avec l'apport des domaines imbriqués, autant en terme de corrélation temporelle qu'en amplitude des valeurs. Le grid nesting apporte ainsi une plus value significative dans la représentation des paramètres météorologiques à fine échelle.

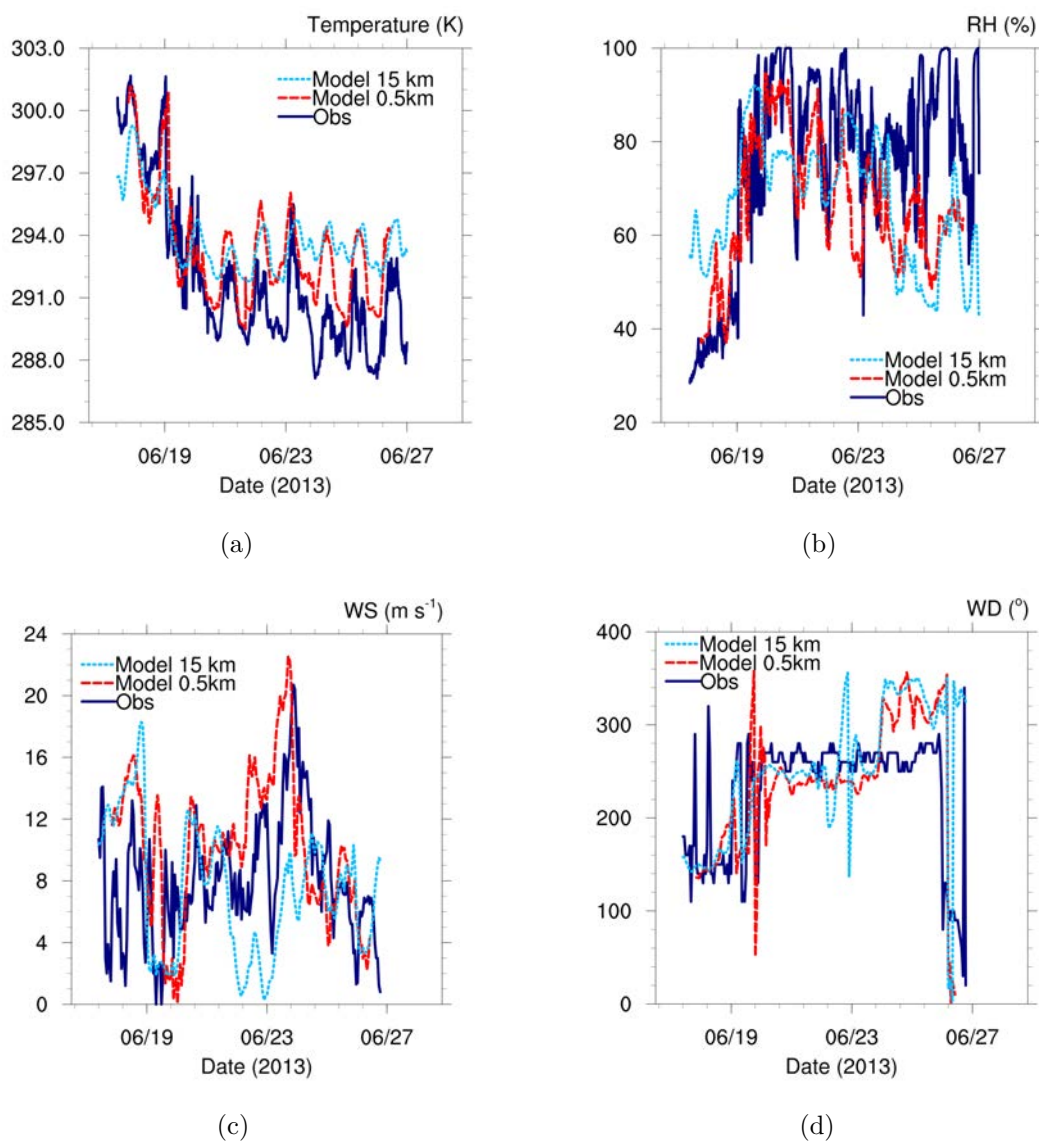


FIGURE 4.11 – Comparaison de la représentation de la température (a), de l’humidité relative (b) et de la vitesse (c) et direction du vent (d) à la station d’Ersa pour les simulations à 15 km et 500 m de résolution horizontale avec les observations.

	Temperature		RH		WS		WD	
	15 km	0.5 km	15 km	0.5 km	15 km	0.5 km	15 km	0.5 km
Corr	0.85	0.85	0.25	0.61	0.06	0.38	0.39	0.58
Biais	2.0	1.5	-8.6	-10.8	-0.6	0.38	22.1	3.1
std(Obs)	3.7	3.7	20.2	20.2	4.0	4.0	64.6	64.6
std(Modèle)	1.7	2.6	12.9	14.0	4.3	4.7	72.6	72.2

TABLE 4.8 – Scores entre la modélisation de la température, de RH, ainsi que de la vitesse et de la direction du vent à Ersi simulées à 15 km et 500m de résolution, en comparaison avec les observations

#### 4.4.2 Forçages météorologiques

Les simulations présentées au chapitre suivant utilisent le même forçage météorologique. Les analyses du centre européen (ECMWF), d'une résolution horizontale de  $0.14 \times 0.14^\circ$  et verticale de 91 niveaux avant le 25 juin 2013 et 137 niveaux par la suite, sont utilisées pour la préparation des fichiers atmosphériques initiaux. Ce forçage est réalisé sur tout le domaine pour le départ de la simulation, le 12 juin 0000 UTC puis toutes les 6 heures et uniquement aux limites latérales du domaine père pour la suite de la simulation. La hauteur significative des vagues provient des réanalyses ERA-Interim du centre européen (résolution horizontale de  $1.125^\circ$ ). Ce forçage est également effectué toutes les 6 heures. Etant donné que le modèle de surface ne pronostique pas la hauteur des vagues, ces valeurs sont interpolées à chaque pas de temps à partir des forçages. La température de surface de l'eau (SST) est constante pendant toute la simulation et est représentée sur la figure 4.12.

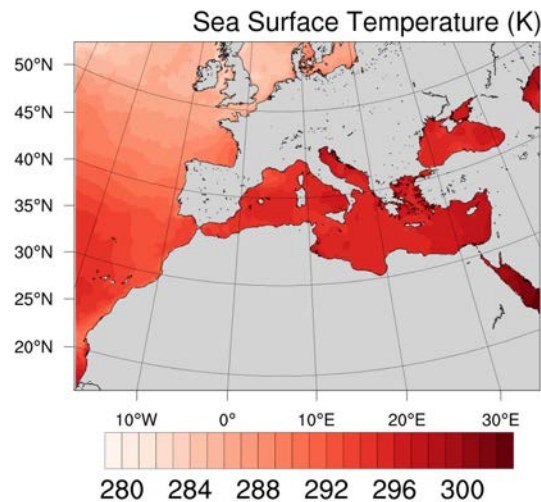


FIGURE 4.12 – Température de surface de l'eau utilisée pour la simulation ADRIMED.

La simulation ADRIMED se déroule sur une période de 2 semaines, ce qui représente une durée assez longue et une dérive des champs météorologiques a été observée. Afin d'empêcher la dynamique du modèle de dériver au cours de la simulation, plusieurs solutions existent. Il est possible d'appliquer la technique dite du "nudging" ou de forcer le modèle sur tout le domaine avec les données météorologiques du centre européen. La première méthode, le nudging, consiste en un rappel fréquent des champs de vent, température et humidité relative des données utilisée pour le forçage. L'inconvénient de cette technique est la perte d'information à petite échelle, d'autant plus contraignante pour les simulations ayant une résolution horizontale fine.

La deuxième technique est plus brutale puisque les champs sont forcés après quelques jours de simulation, et le modèle a besoin d'un temps de spin-up pour réimposer sa physique. L'avantage de cette technique est que le modèle est libre d'appliquer sa propre physique sans contrainte pendant le reste de la simulation (excepté sur les bords du domaine). Ces deux méthodes ont été testées pour la simulation ADRIMED. Le nudging a été appliqué du 18 juin 0000 UTC au 27 juin 0000 UTC pour les domaines père et fils, de résolution horizontale respective de 15 km et 3 km, avec une constante de temps de rappel (pour les champs de vent, température et humidité relative) de 6 heures. Le forçage sur le domaine complet a été appliqué le 18 juin 0000 UTC et le 22 juin 0000 UTC. Les meilleurs résultats ont été obtenu avec la méthode du forçage sur tout le domaine. De plus, l'utilisation du grid nesting améliore significativement la représentation des variables vent, température et humidité relative, et cette technique permet de conserver cet apport. De ce fait, un rappel aux champs météorologiques du centre européen sur le domaine complet a été effectué à deux reprises, le 18 juin 0000 UTC et le 22 juin 0000 UTC. Ce forçage concerne uniquement ces variables, les champs aérosols étant conservés.

## 4.5 Conclusion

Le modèle MesoNH utilisé pour l'étude numérique de l'émission, du transport et des effets radiatifs des aérosols marins a été présenté dans ce chapitre. Les différents schémas intervenant dans leur simulation, i.e les schémas de surface (SURFEX) et d'aérosols ainsi que le schéma radiatif ont été décrits. Les développements apportés au modèle ont ensuite été présentés, en commençant par le nouveau schéma d'émissions d'aérosols marins basé sur la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014). La nouveauté apportée par ce schéma est sa dépendance à l'état de la mer, via la hauteur significative des vagues, ainsi qu'à la salinité et à la température de surface de l'eau. De plus, une paramétrisation basée sur le travail de Gerber (1985) représentant la croissance hygroscopique des aérosols marins a été également rajoutée pour le calcul de leurs propriétés optiques. Les tests de sensibilité des différents paramètres de la fonction source d'Ovadnevaite et al. (2014) ont mis en évidence le fait que la variation

de la salinité n'impactait pas de manière significative les flux d'émission, alors que la SST pouvait avoir une influence importante. Ensuite, la comparaison entre deux situations où les vitesses de vent à la surface étaient identiques alors que les hauteurs de vagues différaient a mis en évidence l'importance de la prise en compte de la hauteur significative des vagues pour les émissions d'aérosols marins.

Enfin, la comparaison entre le schéma d'émissions de Schulz et al. (2004), anciennement implémenté dans MesoNH, avec celui d'Ovadnevaite et al. (2014) a été réalisée, notamment en ce qui concerne leur dépendance aux paramètres d'émission pour le cas d'étude d'ADRI-MED. Au niveau régional, les flux d'émission sont réduits d'un facteur 4 avec OVA14. Au niveau local, par rapport aux concentrations en masse observées à la station d'Ersa, le nouveau schéma simule des valeurs beaucoup plus proches des observations. Ainsi, la dispersion et les valeurs maximales observées sont plus proches des valeurs simulées avec le schéma d'Ovadnevaite et al. (2014) qu'avec le schéma de Schulz et al. (2004). Enfin, les particularités de la simulation ADRI-MED, contenant 3 domaines imbriqués et forcées plusieurs fois pendant son déroulement sont présentées. L'apport du grid nesting pour la représentation des variables météorologiques (température, humidité relative, vitesse et direction du vent) a été présenté ainsi que les avantages du forçage sur le domaine complet par rapport au nudging pour ce cas d'étude.



# Chapitre 5

## Etude numérique

### Sommaire

---

<b>5.1</b>	<b>Présentation des simulations ADRIMED et SAFMED+ . . . . .</b>	<b>116</b>
5.1.1	Configuration des simulations . . . . .	116
5.1.2	Représentation de la dynamique . . . . .	118
5.1.3	Origine des aérosols marins . . . . .	131
<b>5.2</b>	<b>Evaluation du schéma d'émission d'aérosols marins primaires et propriétés physiques (ADRIMED) . . . . .</b>	<b>150</b>
5.2.1	1 <sup>er</sup> épisode (19 juin - 22 juin) . . . . .	150
5.2.2	2 <sup>eme</sup> épisode (22 juin - 26 juin) . . . . .	154
<b>5.3</b>	<b>Etudes des propriétés optiques et effet radiatif direct des aéro- sols marins . . . . .</b>	<b>160</b>
5.3.1	Caractérisation générale des aérosols marins pendant SAFMED+ .	160
5.3.2	Extinction du rayonnement . . . . .	164
5.3.3	Epaisseur optique atmosphérique . . . . .	170
5.3.4	Effet radiatif direct . . . . .	179
<b>5.4</b>	<b>Conclusion . . . . .</b>	<b>186</b>

---

*Ce chapitre présente les résultats des études numériques réalisées avec le modèle MesoNH. Deux cas d'étude ont été étudiés spécifiquement. Le premier correspond à la campagne de mesure ChArMEx-ADRIMED et se déroule du 12 au 27 juin 2013. Cette étude a servi à évaluer le nouveau schéma d'émission (Ovadnevaite et al., 2014) implémenté dans le modèle, pour des conditions météorologiques spécifiques (vents modérés), à l'aide des nombreuses observations in-situ réalisées pendant cette campagne de mesure. Le second cas d'étude correspond à la campagne de mesure SAFMED+ et représente un vol instrumenté, le 10 juillet 2014, pendant un cas de vent fort (mistral/tramontane). Dans une première partie (Section 5.1.2), la situation météorologique de ces deux périodes est d'abord présentée ainsi que leur représentation par le modèle. L'origine des aérosols marins observés à Erso pour les deux simulations*

est ensuite étudiée, notamment à l'aide des flux d'émissions, des concentrations massiques à la surface ainsi que de la charge en aérosols intégrée sur la colonne atmosphérique. Dans une deuxième partie (Section 5.2) et dans le cadre de la campagne ChArMEx-ADRIMED, une étude sur la concentration en masse et en nombre ainsi que sur la granulométrie des aérosols marins a été réalisée et comparée avec les observations *in-situ* sur les différents sites de mesure (Ersa, Marseille, Barcelone). Le deuxième cas d'étude (SAFMED+) est supporté par des mesures (concentration en nombre des aérosols et propriétés optiques) effectuées à bord de l'avion de recherche ATR-42 de SAFIRE, entre Marseille et le sud de la Corse. Cette étude a permis notamment d'étudier plus spécifiquement les propriétés optiques et les effets radiatifs directs (ERD) des aérosols marins dans les courtes et grandes longueurs d'onde lors d'un cas de mistral.

## 5.1 Présentation des simulations ADRIMED et SAFMED+

### 5.1.1 Configuration des simulations

#### ADRIMED

Comme indiqué précédemment, la première simulation a été réalisée pour la période de la campagne ADRIMED. Celle-ci commence le 12 juin 0000 UTC et se termine 27 juin 0000 UTC 2013, sur un domaine méditerranéen de  $300 \times 400$  mailles horizontales (Fig. 5.1 (a)).

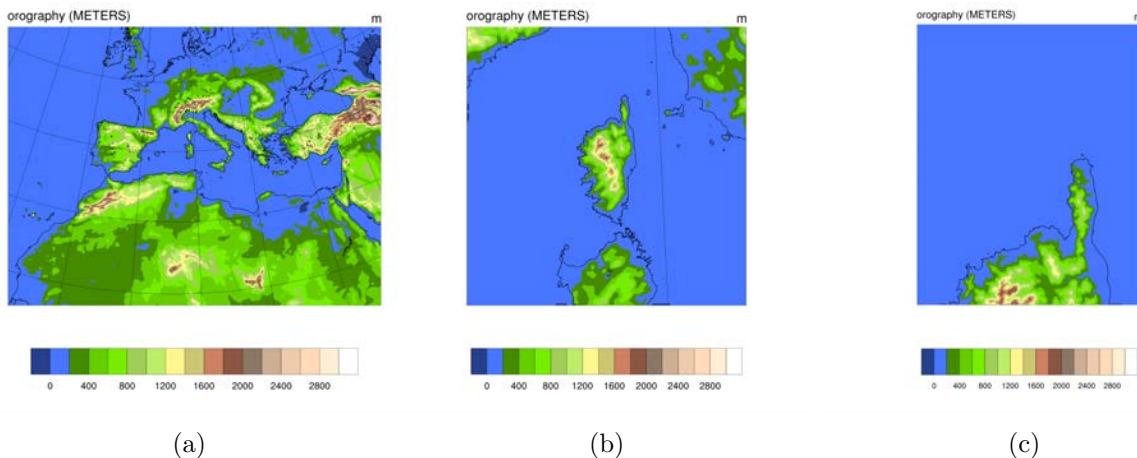


FIGURE 5.1 – Domaines père, fils et petit-fils utilisés pour la simulation ADRIMED, utilisant une résolution horizontale de  $15 \times 15$  km,  $3 \times 3$  km et  $0.5 \times 0.5$  km, respectivement.

Du 12 au 18 juin 0000 UTC, la simulation a été réalisée sur le seul domaine père, d'une résolution horizontale de  $15 \times 15$  km. A partir du 18 juin 0000 UTC et jusqu'à la fin de la simulation, deux domaines imbriqués de résolution horizontale respective de  $3 \text{ km} \times 3 \text{ km}$  et

500 × 500 m ont été rajoutés (Fig. 5.1 (b) et (c)). Ces deux domaines permettent de mieux représenter les différents processus intervenant dans l'émission et le transport des aérosols marins. L'apport du grid nesting a été mis en évidence dans la section 4.4. Le centrage sur la Corse et le Cap Corse a été choisi pour mieux représenter l'environnement proche du site de mesure d'Ersa, dont les données expérimentales sont principalement utilisées pour évaluer ce schéma d'émission. La résolution verticale est la même pour les trois domaines, 64 niveaux verticaux allant jusqu'à une altitude de 22 km. Les 30 premiers niveaux se situent sous les 1000 m, ce qui permet de représenter la couche limite à fine échelle. L'étirement vertical est de 7% dans la première couche (jusqu'à 400 m d'altitude) et de 12 % dans la seconde (avec une hauteur maximale de maille de 1000 m).

Toutes les séries temporelles des variables simulées sur la station d'Ersa sont présentées en utilisant les simulations d'une résolution horizontale de 0.5 × 0.5 km du 18 juin à la fin de la simulation (voir section 4.4).

### SAFMED+

Comme mentionné précédemment, la seconde simulation étudiée ici a été réalisée pour la période du vol instrumenté qui a eu lieu le 10 juillet 2014 de 1021 UTC à 1408 UTC dans le cadre de la campagne de mesure ChArMEx/SAFMED+. La simulation démarre le 8 juillet 0000 UTC afin d'initialiser le modèle avec un spin-up de deux jours. Le domaine utilisé est plus petit que celui défini pour la simulation ADRIMED car le panache d'aérosols marins observé dans le golfe du Lion et sur la zone Marseille-Corse est principalement émis localement (Fig. 5.2). Sa résolution horizontale est de 5 × 5 km et sa résolution verticale est identique à celle utilisée pour la simulation ADRIMED (64 niveaux verticaux).

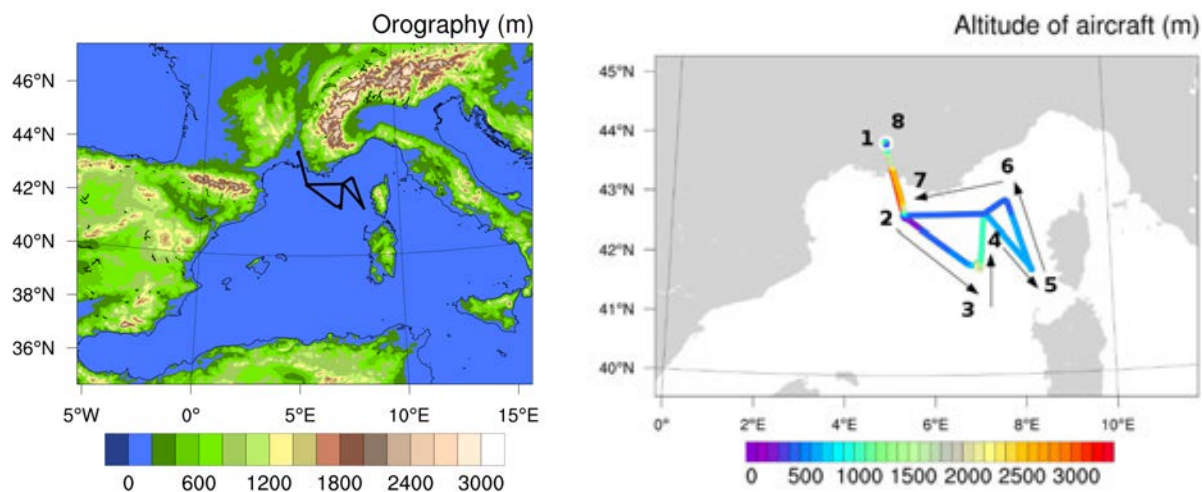


FIGURE 5.2 – A gauche, le domaine utilisé pour la simulation SAFMED+, utilisant une résolution horizontale de  $5 \text{ km} \times 5 \text{ km}$ . La trajectoire de l’avion est représentée en noir. A droite, la trajectoire de l’avion est représentée en fonction de son altitude.

Le forçage météorologique est effectué sur le domaine complet au démarrage de la simulation, et le forçage aux bords du domaine est effectué toutes les 6 heures avec les analyses ECMWF. Le pas de temps utilisé pour calculer la trajectoire de l’avion est de 60 sec.

### 5.1.2 Représentation de la dynamique

#### ADRIDMED

Pour évaluer la représentation de la dynamique par le modèle, nous disposons de plusieurs types d’observations. En premier lieu, les analyses du Centre Européen permettent d’évaluer la dynamique au niveau régional, à plusieurs niveaux verticaux. Dans cette étude sont essentiellement présentées la vitesse et direction du vent à 10 m ainsi que la hauteur significative des vagues qui sont les paramètres primordiaux testés pendant ces simulations pour la formation des aérosols marins primaires.

En deuxième lieu, les stations météorologiques fixes et sur bouées (réseau Météo-France) permettent d’évaluer les sorties du modèle sur plusieurs points au niveau local et à la surface. Ainsi, les données de la station météorologique installée à la station d’Ersa, ainsi que les données de vent mesurées au Sémaphore (à quelques kilomètres d’Ersa), les bouées installées au niveau du Golfe du Lion, du Golfe de Gascogne et près de la côte d’Azur ont été utilisées (Fig. 5.3).

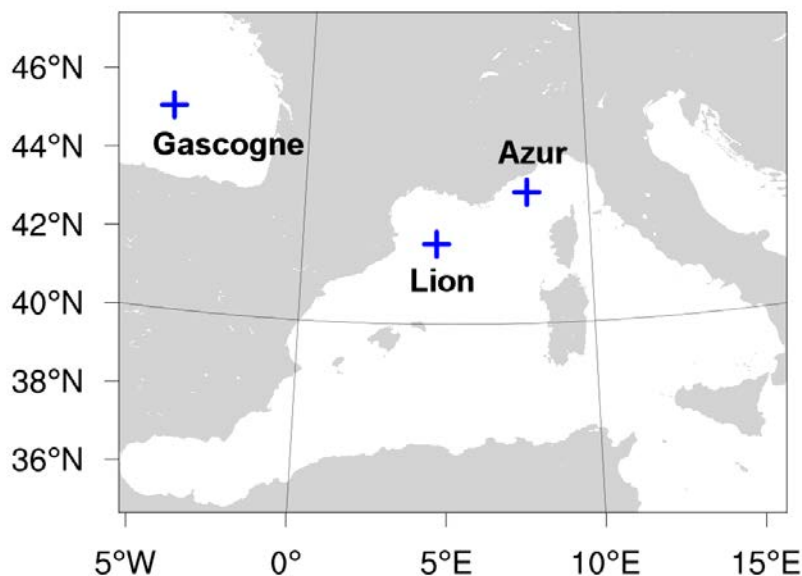


FIGURE 5.3 – Position des trois bouées du réseau Météo-France, situées dans le golfe de Gascogne, le golfe du Lion et proche de la côte d’Azur.

Sur la figure 5.4, les champs de vent à 10 m et 100 m issus des analyses ECMWF sont présentés pour plusieurs dates qui correspondent au début (13 juin 0000 UTC), au milieu (19 et 22 juin 0000 UTC) et à la fin (26 juin 0000 UTC) de la simulation. Les hauteurs significatives des vagues sont également présentées pour les mêmes dates sur la figure 5.4. En début de simulation, pendant la période de spin-up, le bassin méditerranéen ouest n’est pas impacté par de forts vents. A partir du 19 juin 0000 UTC, l’Océan Atlantique est soumis à des vents forts d’origine Nord-Ouest, se dirigeant vers le Golfe de Gascogne. Ces vents atteignent des vitesses de  $20 \text{ m s}^{-1}$  à 10 m et plus de  $25 \text{ m s}^{-1}$  à 100 m d’altitude. En fin de simulation, le 26 juin 0000 UTC, le vent s’est calmé dans l’océan Atlantique Nord, alors qu’il est plus fort dans le golfe du Lion ( $\sim 15 \text{ m s}^{-1}$ ) ainsi qu’au large du Portugal. En ce qui concerne la hauteur significative des vagues, on aperçoit tout d’abord un gradient très prononcé entre l’océan Atlantique et la mer Méditerranée. Dans l’océan Atlantique, les hauteurs significatives de vagues varient entre moins d’un mètre et 8 m (le 22 juin 0000 UTC, associées à des vents de plus de  $20 \text{ m s}^{-1}$ ). En revanche, en mer Méditerranée, les hauteurs significatives de vagues sont inférieures à 3 m pendant cette période. Comme indiqué précédemment, nous disposons des données de hauteurs de vagues acquises sur les bouées du réseau Météo-France, dans le golfe de Gascogne, dans le golfe du Lion et au niveau de la

côte d’Azur, proche de Nice. Ces données sont représentées par des cercles dont le remplissage indique la valeur, sur la même échelle que les sorties du modèle. Pendant cette période, si les vitesses de vent atteintes au niveau de l’océan Atlantique et de la mer Méditerranée sont assez similaires, ce n’est pas le cas de la hauteur significatives des vagues. En effet, les valeurs rencontrées dans l’océan Atlantique peuvent être jusqu’à deux fois plus élevée que celles rencontrées en mer Méditerranée. Les observations et le modèle sont globalement en très bon accord sur ces trois bouées, comme indiqué plus précisément dans le tableau 5.1 et les figures 5.8 (a), (b) et (c).

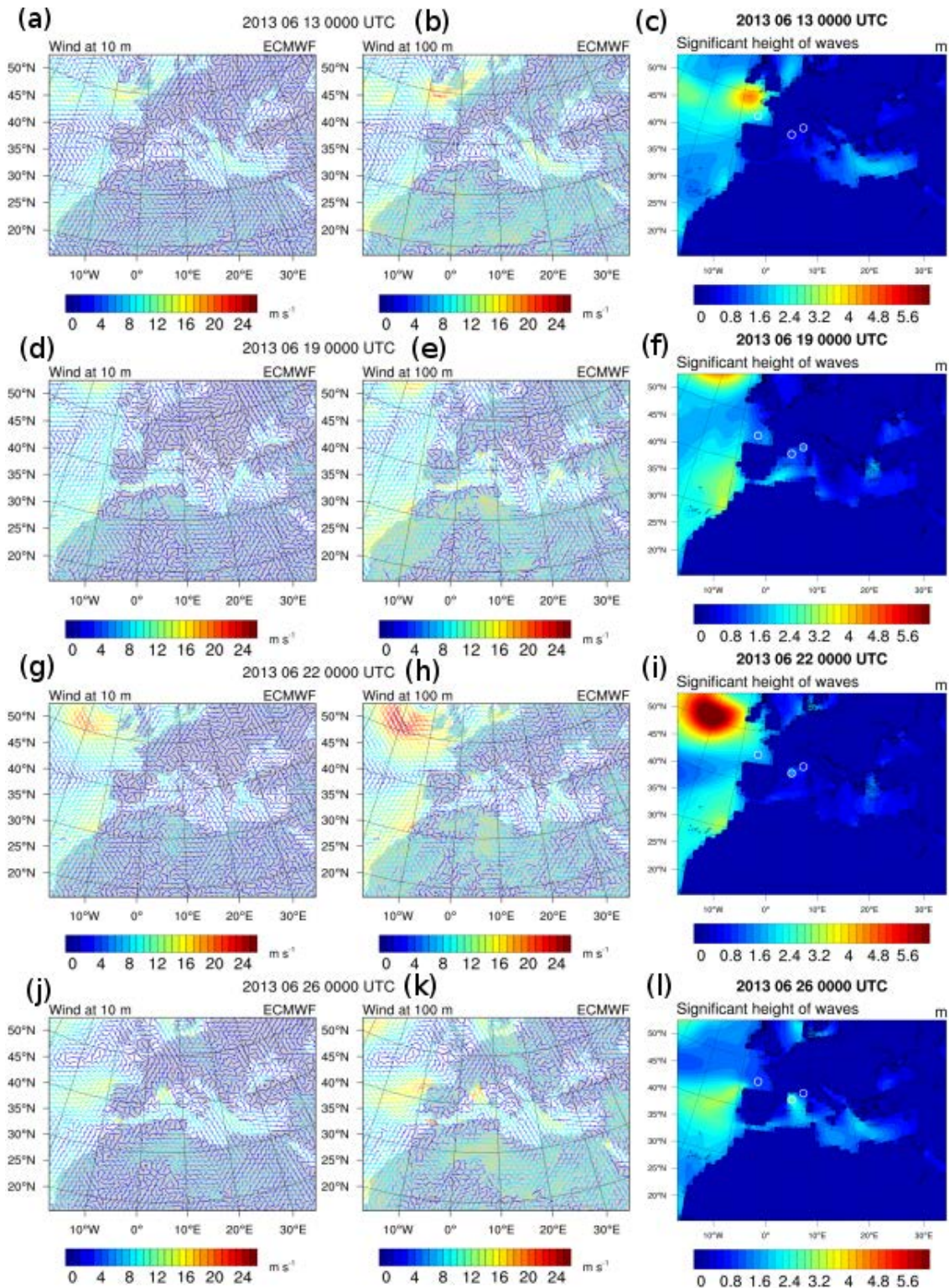


FIGURE 5.4 – Cartes issues des analyses ECMWF représentant le vent à 10 m et à 100 m et la hauteur significative des vagues pendant la période ADRIMED. A gauche le vent à 10 m, au centre le vent à 100 m et à droite les hauteurs de vagues. (a), (b) et (c) pour le 13 juin 0000 UTC, (d), (e) et (f) pour le 19 juin 0000 UTC, (g), (h) et (i) pour le 22 juin 0000 UTC et (j), (k) et (l) pour le 26 juin 0000 UTC. Les observations de hauteurs de vagues issues des bouées du réseau Météo-France ont été ajoutées sur les cartes, au niveau du golfe de Gascogne, du golfe du Lion et de la côte d’Azur.

Dans un premier temps, nous présentons les comparaisons effectuées à la bouée du Golfe du Lion et à la station de mesure d'Ersa pour l'intensité et la direction du vent. Tout d'abord, les figure 5.5 (a) et (b) ainsi que le tableau 5.1 indiquent que le modèle représente correctement ces variables. En effet, la corrélation entre les observations et le modèle au niveau de la bouée du golfe du Lion est de 0.87 pour la vitesse du vent et de 0.73 pour la direction du vent, avec un biais respectif de  $0.56 \text{ m s}^{-1}$  et de  $22.11^\circ$ . La dispersion est similaire pour les observations et le modèle, respectivement de  $4.57 \text{ m s}^{-1}$  et  $3.57 \text{ m s}^{-1}$  pour la vitesse du vent et de  $90.80^\circ$  et  $80.68^\circ$  pour la direction du vent. Au niveau du golfe de Gascogne, la corrélation entre les observations et le modèle est également bonne (0.71 pour la vitesse du vent et 0.66 pour sa direction), avec un biais respectif de  $-0.35 \text{ m s}^{-1}$  et de  $0.29^\circ$ . La dispersion est similaire pour les observations et le modèle, respectivement de  $2.71 \text{ m s}^{-1}$  et  $2.93 \text{ m s}^{-1}$  pour la vitesse du vent et de  $116.49^\circ$  et  $120.35^\circ$  pour la direction du vent. Par rapport aux deux premières bouées étudiées, la représentation du vent par le modèle au niveau de la Côte d'Azur est un peu moins bonne. En effet, la corrélation pour la vitesse du vent est cette fois-ci de 0.42 avec un biais plus important ( $1.51 \text{ m s}^{-1}$ ). La corrélation pour la direction du vent est un peu meilleure, avec une valeur de 0.61, alors que le biais de  $-29.94^\circ$  est plus important. En outre, la dispersion est bien représentée pour la vitesse du vent sur la Côte d'Azur, elle est de 2.67 et de 2.82 pour les observations et le modèle respectivement et de 85.35 et 86.70 pour la direction du vent.

L'analyse des points aux bouées indiquent donc une bonne capacité du modèle à reproduire la direction et la vitesse du vent à l'ouest du bassin, contrairement à la bouée localisée au large de la Côte d'Azur.

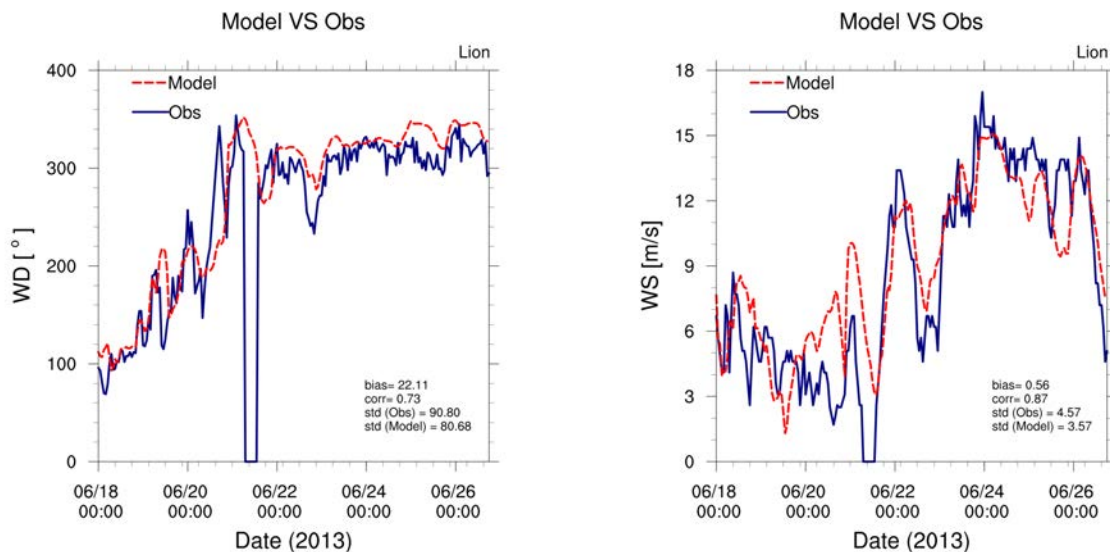


FIGURE 5.5 – Vitesse et direction du vent au niveau de la bouée du Golfe du Lion, comparaison entre le modèle et les observations.

Dans un second temps, les vitesses et directions du vent à Ersa ont également été évaluées

à l'aide des observations réalisées à la station météorologique du Sémaphore (Fig. 5.6). Cette figure indique que le modèle reproduit de manière assez satisfaisante la direction du vent sur la période étudiée sauf à partir du 24 juin 0000 UTC. En effet, du 24 juin 0000 UTC au 26 juin 0000 UTC, le modèle simule un vent provenant du Nord-Ouest alors que dans les observations, le vent est d'origine Ouest. Du 18 au 22 juin, la direction du vent est correctement représentée par le modèle, à part trois pics courts à  $300^\circ$  qui ne sont pas dans la simulation et un léger biais négatif. En parallèle, la vitesse du vent est représentée convenablement par le modèle, avec de légers biais positifs et négatifs. On note également un léger décalage temporel pour la vitesse du vent, le modèle étant un peu en avance par rapport aux observations. La corrélation temporelle qui n'est donc pas très élevée est de 0.36 à la station d'Ersa.

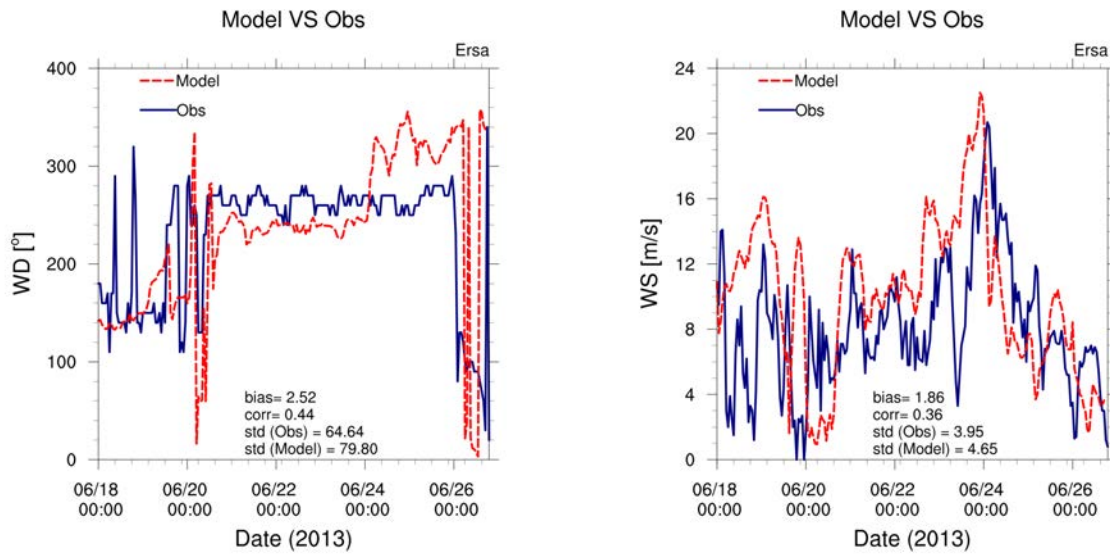


FIGURE 5.6 – Vitesse et direction du vent à la station d'Ersa, comparaison entre le modèle et les observations.

Comme la période du 22 au 26 juin est importante dans le cadre de notre étude, nous avons étudié plus spécifiquement la dynamique autour du 24 juin, lorsque le biais dans la direction du vent est identifié (Fig. 5.6)

La section 4.4.2 mettait l'accent sur la difficulté de représenter correctement la météorologie sans dérive du modèle pendant la simulation, et en particulier pendant la période proche du 24 juin. On s'intéresse donc particulièrement à la représentation du vent à 10 m par le modèle.

Pour cette analyse, les champs de vents à 10 m du centre européen ont été comparés aux sorties du modèle (Fig. 5.7) pour trois dates : 24 juin 0000 UTC, 24 juin 1200 UTC et 25 juin 0000 UTC. Pour rappel, le dernier forçage météorologique sur le domaine complet pendant la simulation a eu lieu le 22 juin 0000 UTC. Le 24 juin 0000 UTC, le Golfe du Lion est sous l'influence de vents O-N-O assez forts, atteignant les  $20 \text{ m s}^{-1}$ . Le modèle reproduit bien cette situation mais au niveau du Cap Corse, le front est modélisé un peu plus au sud que

les analyses. Cette différence s'intensifie le 24 juin 1200 UTC. Les analyses indiquent que le Cap corse est sous influence Ouest alors que pour le modèle, Ersa est sous influence de vent venant du Nord-Ouest. On retrouve la même situation le 25 juin 0000 UTC.

Ainsi, malgré une représentation globale du vent à 10 m satisfaisante, la représentation du front un peu trop au sud au niveau d'Ersa a une conséquence sur l'origine des masses d'air impactant le site de mesure les jours suivants. Au lieu d'être impactée par des masses d'air provenant d'ouest (golfe du Lion), la station d'Ersa est sous l'influence de masses d'air provenant du nord, du golfe de Gênes, où les vitesses de vent à 10 m et les hauteurs de vagues sont moins importantes. Ceci peut également expliquer la moins bonne représentation des variables météorologiques à la bouée Azur, qui se situe au niveau de cette zone.

En parallèle de la vitesse et direction du vent, nous avons étendu les comparaisons aux hauteurs significatives des vagues. Cette variable n'étant pas diagnostiquée par MesoNH, elle est interpolée temporellement entre chaque forçage. La comparaison entre les sorties du modèle et les mesures effectuées aux bouées sur trois sites (Golfe du Lion, Golfe de Gascogne et Côte d'Azur) (Fig. 5.8) entre le 18 juin 0000 UTC et le 26 juin 0000 UTC montre une très bonne représentation de la hauteur significative des vagues sur ces stations. En effet, la corrélation entre le modèle et les observations est de 0.93, 0.95 et 0.83 pour chaque site, respectivement. L'amplitude des valeurs est également très proche pour le modèle et les observations, bien que le modèle sous-estime légèrement ces valeurs (Tableau 5.1). Ainsi, le biais entre les observations et le modèle est faible, respectivement de -0.30, -0.07 et -0.14 et la dispersion des observations et du modèle sont très proches, respectivement de 0.97 et 0.90 dans le golfe du Lion, de 0.94 et 0.82 dans le golfe de Gascogne et de 0.34 et 0.40 au niveau de la Côte d'Azur. La dispersion des données nous indique également que les hauteurs de vagues subissent moins de variations sur la Côte d'Azur que dans le golfe du Lion ou de Gascogne. On note aussi que l'effet combiné de la résolution horizontale des données du CEP (moins bonne que celle de MesoNH) et de l'interpolation temporelle provoque un effet de lissage de la variabilité des vagues.

Même si le modèle ne pronostique pas la hauteur significative des vagues, le forçage du centre européen d'une résolution de  $1.125^\circ$  est suffisant pour représenter correctement cette variable. De ce fait, ce résultat justifie l'utilisation de la fonction source d'Ovadnevaite et al. (2014). Ces variables sont représentées pour les trois bouées sur la figure 5.8 et les différents scores sont présentés dans le tableau 5.1.

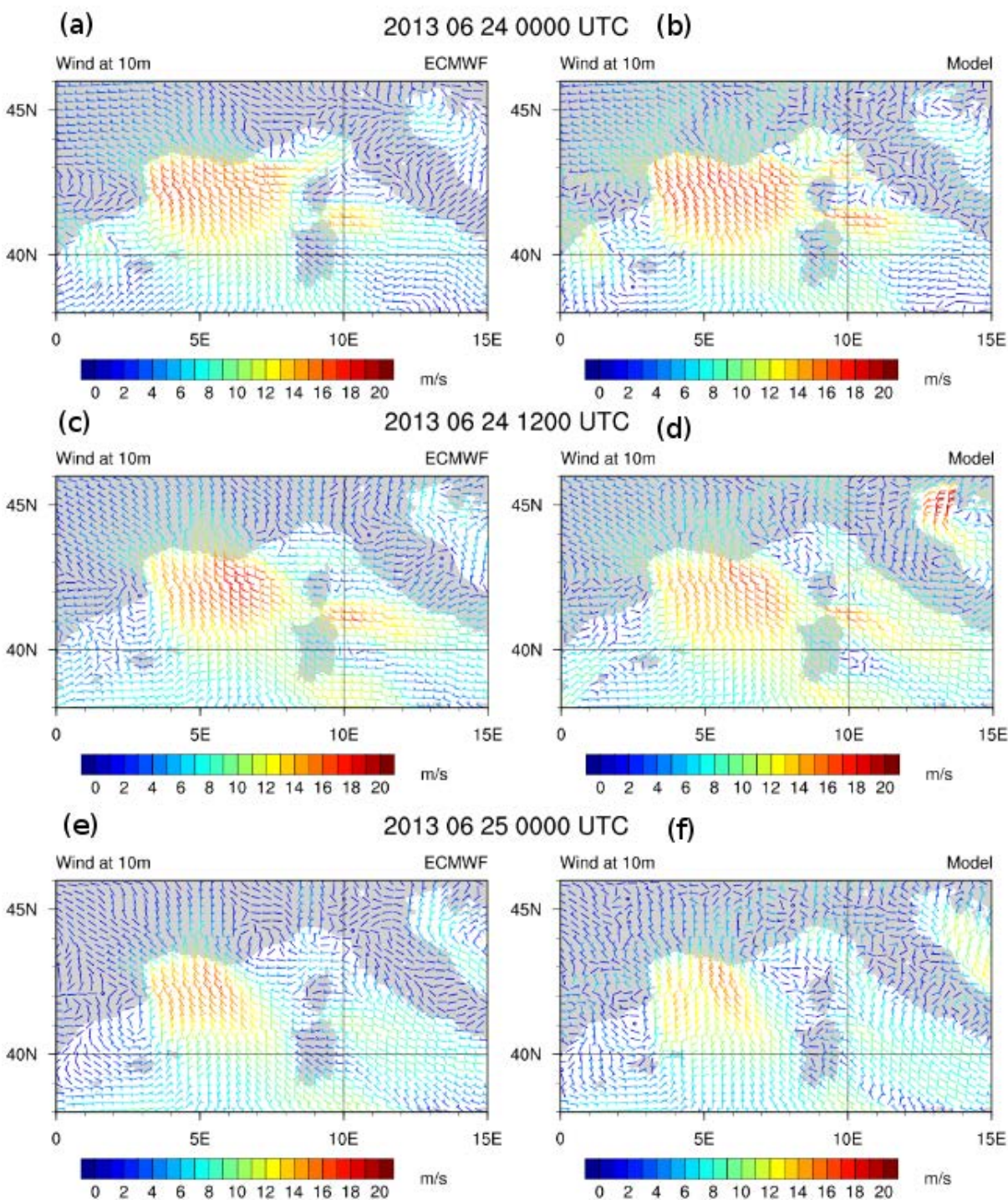


FIGURE 5.7 – Cartes représentant le vent à 10 m à trois dates différentes. A gauche les analyses ECMWF et à droite la sortie du modèle. (a) et (b) pour le 24 juin 0000 UTC, (c) et (d) pour le 24 juin 1200 UTC et (e) et (f) pour le 25 juin 0000 UTC.

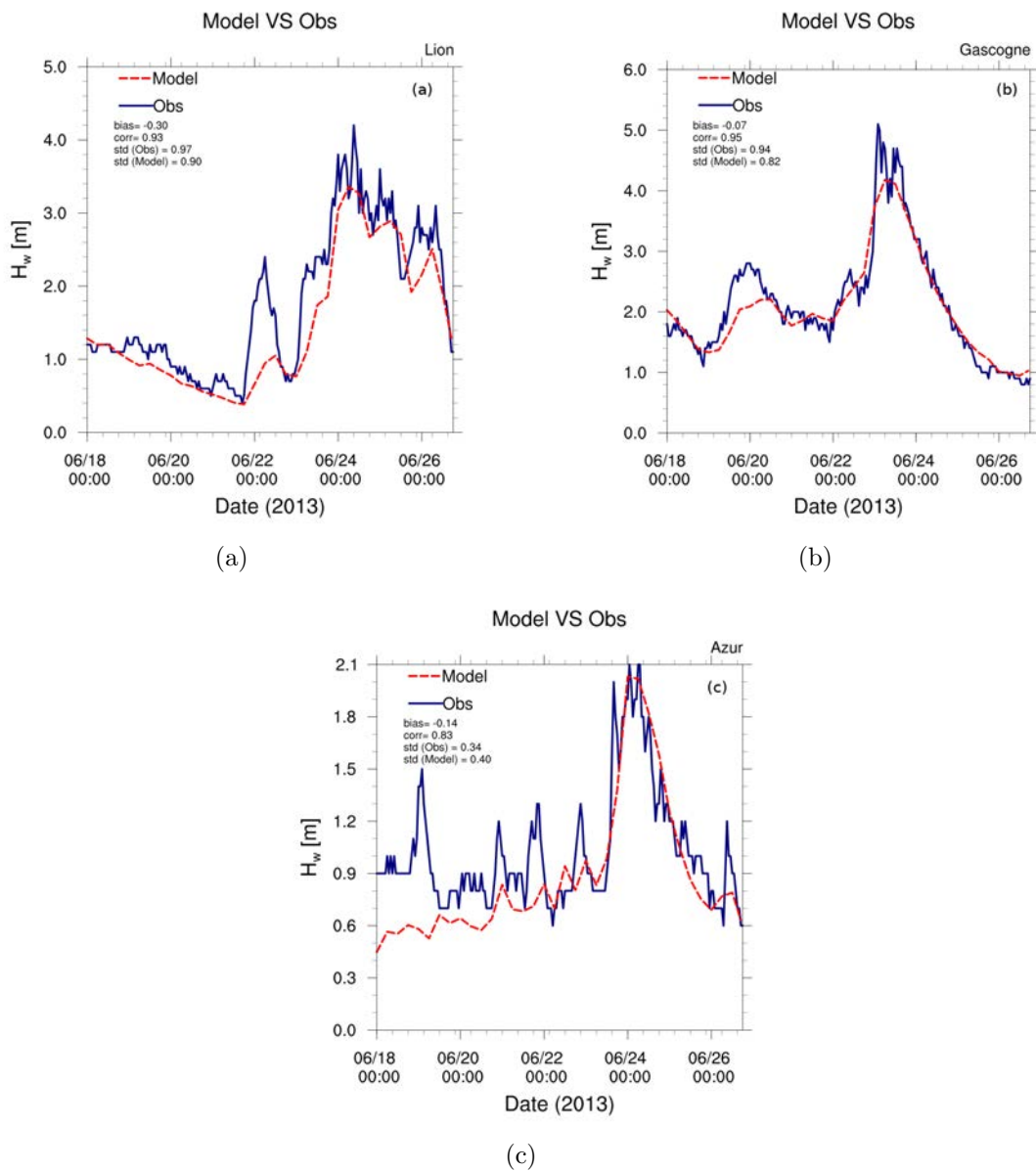


FIGURE 5.8 – Hauteur significative des vagues aux trois bouées situées dans le Golfe du Lion (a), le Golfe de Gascogne (b) et proche de la côte d’Azur (c). La simulation est représentée en rouge et les observations en bleu.

		Golfe du Lion	Golfe de Gascogne	Côte d’Azur	Ersa
$H_w$ (m)	Corr	0.93	0.95	0.83	
	Biais	-0.30	-0.07	-0.14	
	std(Obs)	0.97	0.94	0.34	
	std(Modèle)	0.90	0.82	0.40	
WS (m s <sup>-1</sup> )	Corr	0.87	0.71	0.42	0.36
	Biais	0.56	-0.35	1.51	1.86
	std(Obs)	4.57	2.71	2.67	3.95
	std(Modèle)	3.57	2.93	2.82	4.65
WD (°)	Corr	0.73	0.66	0.61	0.44
	Biais	22.11	0.29	-29.94	2.52
	std(Obs)	90.80	116.49	85.35	64.64
	std(Modèle)	80.68	120.35	86.70	79.80

TABLE 5.1 – Hauteur significative des vagues, vitesse et direction du vent : Comparaison entre modèle et observations sur quatre sites de mesure ; Golfe du Lion, Golfe de Gascogne, Côte d’Azur et Ersa.

Finalement, l’analyse des comparaisons entre le modèle et les observations sur la période de campagne ADRIMED indique que le modèle reproduit de manière assez satisfaisante la vitesse du vent, sa direction ainsi que la hauteur significative des vagues. On note également que la situation météorologique, en plus de la topographie, est assez complexe au niveau du Cap Corse pour le second épisode étudié. La station de mesure se retrouve donc, dans la simulation, influencée par des masses d’air provenant du Nord-Ouest. On verra dans la suite de l’étude que ce biais dans la dynamique a des conséquences sur le transport du panache d’aérosols marins et sur les concentrations simulées en surface à Ersa.

Pendant la période où on observe ce biais de la dynamique, afin de comparer les concentrations et granulométries mesurées à Ersa, nous utilisons dans la suite de l’étude deux autres positions situées plus au sud, en plus de la station de mesure d’Ersa (Fig. 5.9). La première se situe dans le bassin algéro-provençal, non loin des côtes ouest de la Corse (8.26°N 41.79°E), et la deuxième se situe au sud-ouest de la Corse (8.97°N 41.89°E,  $\sim 700$  m asl). La modélisation de ce cas d’étude particulier, avec cette dynamique Ouest-Est, ce front situé proche du Cap Corse et le relief complexe dans le bassin méditerranéen Nord-Ouest a nécessité cette adaptation. Ce ne serait pas forcément nécessaire pour d’autres cas d’étude ayant une dynamique différente comme c’est le cas pour le début de la simulation où la dynamique est mieux représentée.



FIGURE 5.9 – Carte représentant l’emplacement des positions choisies dans le panache d’aérosols marins. En blanc : 8.26°N 41.79°E. En rouge : 8.97°N 41.89°E,  $\sim 700$  m asl.

### SAFMED+

La deuxième période étudiée correspond à la campagne de mesures SAFMED+. Les conditions météorologiques observées du 8 au 10 juillet 2014 sont différentes de celles rencontrées lors d’ADRI-MED et sont caractérisées par un cas de mistral fort. Le mistral est un vent régional provoqué par une dépression vers le nord de l’Italie, dans le Golfe de Gênes, et un anticyclone localisé sur l’Espagne, le Golfe de Gascogne et jusqu’au Sud-Ouest de la France. Ce vent est accompagné de rafales de vent pouvant atteindre les  $100 \text{ km h}^{-1}$ . La direction du mistral au niveau de Marseille est nord-ouest.

Afin de caractériser cet épisode de mistral, les champs de vent en surface issus des analyses ECMWF ainsi que leur représentation par le modèle sont présentés sur la figure 5.10.

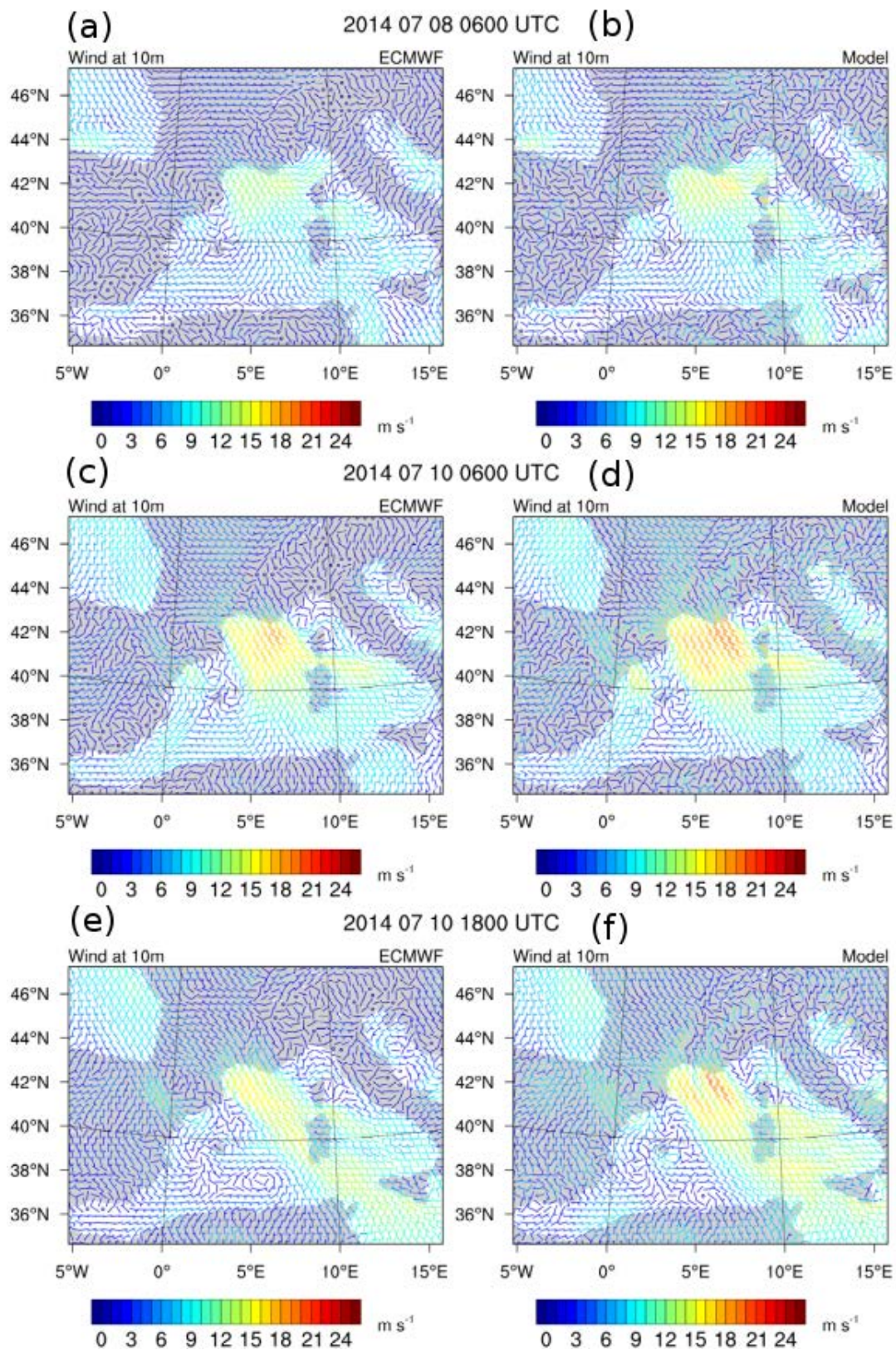


FIGURE 5.10 – Cartes représentant le vent à 10 m à trois dates différentes : le 8 Juillet à 0600 UTC, en début de simulation, le 10 juillet à 0600 UTC et à 1800 UTC avant et après le vol. A gauche les analyses ECMWF et à droite les simulations MesoNH.

Comme on peut le voir sur la figure 5.10, la région du golfe du Lion est impactée par de forts vents à 10 m, de direction Nord-Ouest, de la côte d’Azur à la Sardaigne. La zone survolée par l’avion de recherche, au large de Marseille et de la Corse est également impactée par des vents forts. Les analyses du centre européen indiquent des vitesses de vent à 10 m allant jusqu’à  $15 \text{ m s}^{-1}$  sur le golfe du Lion et au large de Marseille en début de simulation, le 8 juillet à 0600 UTC. Quelques heures avant le début du vol instrumenté, le 10 juillet à 0600 UTC, la situation météorologique est similaire dans le golfe du Lion. Les vents se sont renforcés et atteignent des vitesses dépassant les  $20 \text{ m s}^{-1}$ . Par effet Venturi, le vent en sortie des bouches de Bonifacio, entre le sud de la Corse et le nord de la Sardaigne, atteint des vitesses importantes, de l’ordre de  $16 \text{ m s}^{-1}$ . A l’inverse, les vitesses de vent sont faibles au nord de la Corse, ne dépassant pas les  $6 \text{ m s}^{-1}$ . Après le vol instrumenté, à 1800 UTC, la direction du vent est identique dans le golfe du Lion mais les vitesses de vent sont redescendues autour des  $15 \text{ m s}^{-1}$ . Le 10 juillet à 1800 UTC, les figure 5.10 (e) et (f) illustrent clairement le trajet de ce vent régional, du golfe du Lion à Lampedusa, avec des vitesses de vent élevées, en opposition aux vitesses beaucoup plus faibles dans le reste du bassin méditerranéen ( $< 9 \text{ m s}^{-1}$ ).

Les données issues des bouées situées dans les golfes de Gascogne et du Lion ainsi qu’au large de la Côte d’Azur ont également servi à évaluer cette simulation (tableau 5.2). Durant SAFMED+, la hauteur des vagues, l’intensité et la direction du vent sont bien représentées par le modèle au niveau du golfe du Lion, avec des corrélations respectives de 0.82, 0.87 et 0.76. La vitesse du vent à 10 m atteint donc des valeurs maximales de  $17 \text{ m s}^{-1}$  le 10 juillet. Il y a un léger biais positif pour la direction du vent qui est constante ( $\sim 320^\circ$ ) les 9 et 10 juillet dans la simulation, alors que les observations indiquent une direction de vent constante autour de  $300^\circ$ . Le biais pendant cette simulation pour la direction du vent est de  $19.15^\circ$ . Cependant, il n’est pas significatif et n’impactera pas les émissions d’aérosols marins pendant cette période.

La hauteur des vagues et la vitesse du vent sont également bien représentées dans le golfe de Gascogne (corrélation respective de 0.75 et 0.75) et au large de la Côte d’Azur (corrélation respective de 0.61 et 0.69). Cependant la direction du vent dans le golfe de Gascogne n’a une corrélation que de 0.16 et la dispersion des valeurs modélisée est trois fois plus faible que celle des mesures ( $21.34^\circ$  et  $74.67^\circ$  respectivement).

En réalité, la direction du vent est quasiment toujours constante autour de  $340^\circ$  pendant ces trois jours. Les observations montrent trois changement brusques et courts de direction autour de  $10^\circ$  ce qui équivaldrait à  $370^\circ$ . La corrélation n’est pas ici un indicateur de la représentation de la direction du vent par le modèle. Au niveau de la Côte d’Azur en revanche la direction du vent est moins bien représentée, avec une corrélation de 0.32 et un biais de  $12.57^\circ$ . A cette station, on observe à la fois des biais positifs et négatifs ainsi que des décalages temporelles. Les figures représentant ces paramètres sont disponibles en Annexe A sur les figures A.1.

		Golfe du Lion	Golfe de Gascogne	Côte d’Azur
$H_w$ (m)	Corr	0.82	0.75	0.61
	Biais	-0.56	-0.11	0.03
	std(Obs)	0.73	0.30	0.64
	std(Modèle)	0.59	0.12	0.49
WS (m s <sup>-1</sup> )	Corr	0.87	0.75	0.69
	Biais	0.05	0.58	1.29
	std(Obs)	2.93	1.34	4.16
	std(Modèle)	2.89	1.07	5.33
WD (°)	Corr	0.76	0.16	0.32
	Biais	19.15	23.03	12.57
	std(Obs)	11.64	74.67	67.79
	std(Modèle)	17.68	21.34	77.50

TABLE 5.2 – Hauteur significative des vagues ( $H_w$ ), Vitesse et direction du vent (WS et WD) : Comparaison entre modèle et observations sur trois sites de mesure ; Golfe du Lion, Golfe de Gascogne et Côte d’Azur.

Pour résumer la campagne SAFMED+, le modèle représente globalement bien la hauteur significative des vagues ainsi que la vitesse et direction du vent. On note néanmoins une légère surestimation de la vitesse du vent dans le golfe du Lion, zone où elle atteint sa valeur maximale. Au niveau local, l’utilisation des observations des trois bouées indique une bonne représentation par le modèle du vent ainsi que de la hauteur des vagues au niveau des golfes de Gascogne et du Lion. Comme pour la simulation ADRIMED, la représentation du vent au niveau de la Côte d’Azur est plus éloignée des analyses ECMWF.

Dans cette partie, les situations météorologiques des deux simulations ADRIMED et SAFMED+ ont été étudiées et leur représentation par le modèle MesoNH évaluée. La section suivante s’attache à analyser l’origine des aérosols marins observés pendant la campagne de mesure ADRIMED et à bord de l’ATR-42 pendant la campagne SAFMED+. Cette étude est réalisée en analysant les flux d’émissions, les concentrations en masse à la surface ainsi que la charge massique en aérosols sur toute la colonne atmosphérique.

### 5.1.3 Origine des aérosols marins

Comme indiqué dans Claeys et al. (2016), les mesures expérimentales effectuées sur la station d’Ersa nous ont permis de repérer un épisode (22 au 26 juin) où la concentration massique en aérosols marins primaires inorganiques représentait jusqu’à 40 % de la masse

des  $PM_{10}$  (voir section 3.2). En plus de cet épisode, un second cas d'étude intéressant, caractérisé par des concentrations en aérosols marins significatives à la station de mesure d'Ersa, a également été détecté du 19 au 22 juin 2013.

On distingue donc deux événements d'aérosols marins différents pendant cette période, illustrés sur la figure 5.11; le premier du 19 au 22 juin et le second du 22 au 26 juin. Ces deux épisodes sont caractérisés par des situations dynamiques différentes sur le bassin méditerranéen et dans l'océan Atlantique, ce qui implique des origines et des temps de transports différents pour les aérosols marins affectant le site de mesure d'Ersa. Chacun des deux épisodes est traité séparément et sont appelés respectivement épisodes 1 et 2.

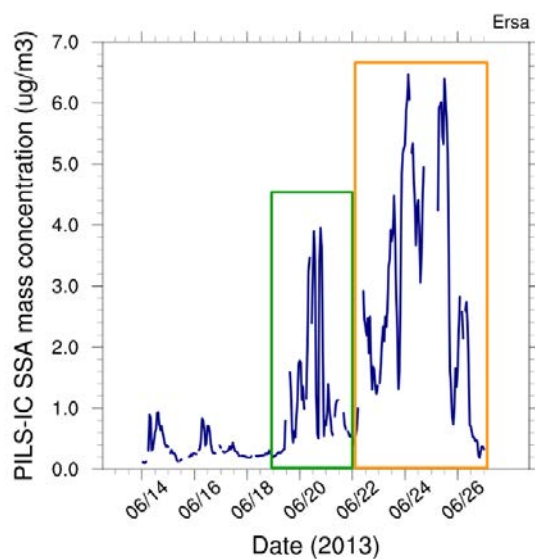


FIGURE 5.11 – Concentration en masse des aérosols marins calculée à partir des mesures PILS-IC à Ersa. Les deux périodes où Ersa est impactée par des aérosols marins sont respectivement encadrées en vert et orange.

Ces deux épisodes sont différenciés par la concentration maximale en aérosols marins observées ainsi que par leur durée. Le premier épisode est plus court puisqu'il dure entre 2 et 3 jours alors que le second épisode dure 4 jours. La concentration maximale observée pendant l'épisode 1 est de  $4 \mu\text{g m}^{-3}$ , et cette valeur n'est observée que quelques heures. Au contraire, pendant l'épisode 2, la valeurs maximale observée est de plus de  $6 \mu\text{g m}^{-3}$  et la concentration est supérieure à  $3 \mu\text{g m}^{-3}$  pendant plus de 2 jours.

Comme mentionné précédemment et afin d'évaluer l'origine des aérosols marins impactant la station d'Ersa, une analyse des flux d'émission en masse, ainsi que de la masse totale modélisée (i.e, somme de la concentration massique des 5 modes) a été effectuée. Des coupes verticales sur 3 transects (présentées sur la figure 5.12) ont également été analysées. Ces transects ont été choisis en fonction de l'origine des masses d'air impactant Ersa.

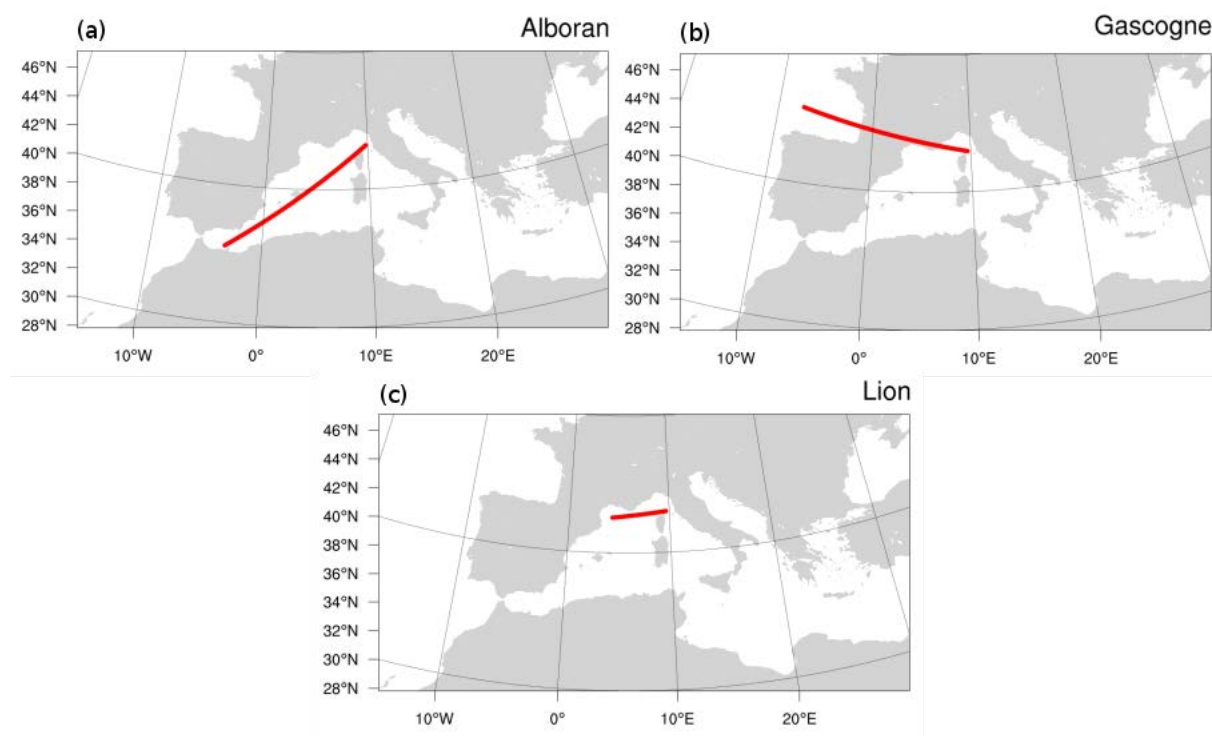


FIGURE 5.12 – Cartes indiquant la position des 3 transects, tracés en rouge. a) Mer d’Alboran - Ersa, b) Golfe de Gascogne - Ersa, c) Golfe du Lion - Ersa.

Le premier transect (Fig. 5.12 (a)), reliant la mer d’Alboran à Ersa, passe par les îles Baléares et traverse une grande partie du bassin méditerranéen ouest. De ce fait, il permet de visualiser les émissions d’aérosols marins à la fois locales et plus lointaines, susceptibles d’être transportés sur de plus grandes distances avant d’atteindre Ersa. Le second transect (Fig. 5.12 (b)) reliant le golfe de Gascogne à Ersa passe au dessus du Massif Central, des Alpes Maritimes et traverse la mer Méditerranée jusqu’à Ersa. Ce transect nous permet d’observer si des aérosols émis en Atlantique traversent le continent pour atteindre le site de mesure d’Ersa. Enfin le dernier transect (Fig. 5.12 (c)) relie Ersa au golfe du Lion. Etant donné que le deuxième épisode est caractérisé par des vents fort et des émissions au niveau du golfe du Lion, ce transect nous renseigne sur des émissions plutôt régionales et locales.

### 1<sup>er</sup> épisode (19 juin - 22 juin)

La figure 5.13 représente les flux d’émission totaux (somme des 5 modes) en aérosols marins simulés sur le domaine méditerranéen, la masse totale (somme des 5 modes) à 10 m au-dessus de la surface ainsi que la charge totale en aérosols marins (somme des 5 modes) pour quatre dates, les 18 juin 1500 UTC, 19 juin 1500 UTC, 20 juin 1500 UTC et 21 juin 1500 UTC.

Les flux d’émission, les concentrations massiques en surface ainsi que la charge massique sur la colonne atmosphérique sont analysés sur les jours précédents et pendant l’observation

des aérosols marins à la station d'Ersa afin de prendre en compte les émissions régionales et leur temps de transport jusqu'à la station de mesure.

Ces trois paramètres sont complémentaires et nous permettent d'analyser les sources ainsi que les zones où la concentration en masse en aérosols marins à la surface et sur toute la colonne atmosphérique est importante. Cette dernière information permet notamment de prendre en considération les aérosols qui n'ont pas été fraîchement émis mais transportés dans l'atmosphère à de plus hautes altitudes.

On remarque sur les figures 5.13 (a), (d), (g) et (j) qu'il n'y a d'émissions d'aérosols marins supérieures à  $0.15 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  que dans le bassin méditerranéen ouest et dans l'océan Atlantique. Les bassins méditerranéens Central et Est n'émettent que très peu d'aérosols marins pendant cette période et en conséquence, la concentration en masse à la surface ainsi que la charge massique y sont faibles. Le 18 juin 1500 UTC, les émissions se situent au niveau de la mer d'Alboran ainsi que proche des côtes Portugaises et Marocaines. Les flux sont équivalents dans ces trois zones, de l'ordre de  $0.4 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ . La situation évolue et le 19 juin 1500 UTC, les émissions ont diminué dans la mer d'Alboran et au large du Portugal. Les 20 et 21 juin 1500 UTC, alors que les aérosols marins sont observés à la station d'Ersa, les émissions sont faibles dans le bassin méditerranéen. Au niveau des flux d'émissions, Spada et al. (2013) ont réalisé une simulation globale sur 5 ans (2002-2006) avec le schéma d'émission de Smith et al. (1993) et la moyenne pour le mois d'août est d'environ  $1 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  dans l'océan Atlantique et comprise entre 0 et  $0.6 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$  au niveau de la mer Méditerranée. On retrouve ici le même ordre de grandeur pour cette simulation.

Les cartes représentant la concentration à la surface ainsi que la charge en aérosols marins permettent de visualiser l'évolution du panache d'aérosols impactant Ersa. On remarque ainsi que le 18 juin 1500 UTC, la concentration massique à la surface dans la mer d'Alboran et au large de Majorque est comprise entre 10 et  $25 \mu\text{g m}^{-3}$ . Cette valeur est légèrement supérieure à la moyenne annuelle observée par (Pey et al., 2009) à Majorque ( $14 \mu\text{g m}^{-3}$  pour l'année 2004). Cependant, cette valeur n'est pas aberrante puisqu'on compare un cas d'étude à une moyenne annuelle. Ce panache d'aérosols en surface se décale ensuite progressivement vers le Nord-Est le 19 juin 1500 UTC, vers la Sardaigne et la Corse, avec des valeurs légèrement plus faibles ( $\sim 20 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Le 20 juin 1500 UTC, ce panache atteint les côtes de la Corse et plus particulièrement la station de mesure d'Ersa. La concentration a cependant diminué autour de  $15 \mu\text{g m}^{-3}$ . On retrouve ce schéma en ce qui concerne la charge massique. Le panache qui se situe au niveau de la mer d'Alboran et au large de Majorque le 18 juin 1500 UTC ( $\sim 0.015 \text{ g m}^{-2}$ ) se déplace vers le Nord-Est le 19 juin 1500 UTC et atteint la Corse le 20 juin 1500 UTC, avec des valeurs proches de  $0.02 \text{ g m}^{-2}$ .

En plus de ces émissions dans le bassin méditerranéen, l'océan Atlantique est également une zone source importante pendant cette période et les valeurs sont plus importantes que dans le bassin méditerranéen. Ces fortes émissions conduisent à des concentrations en masse à la

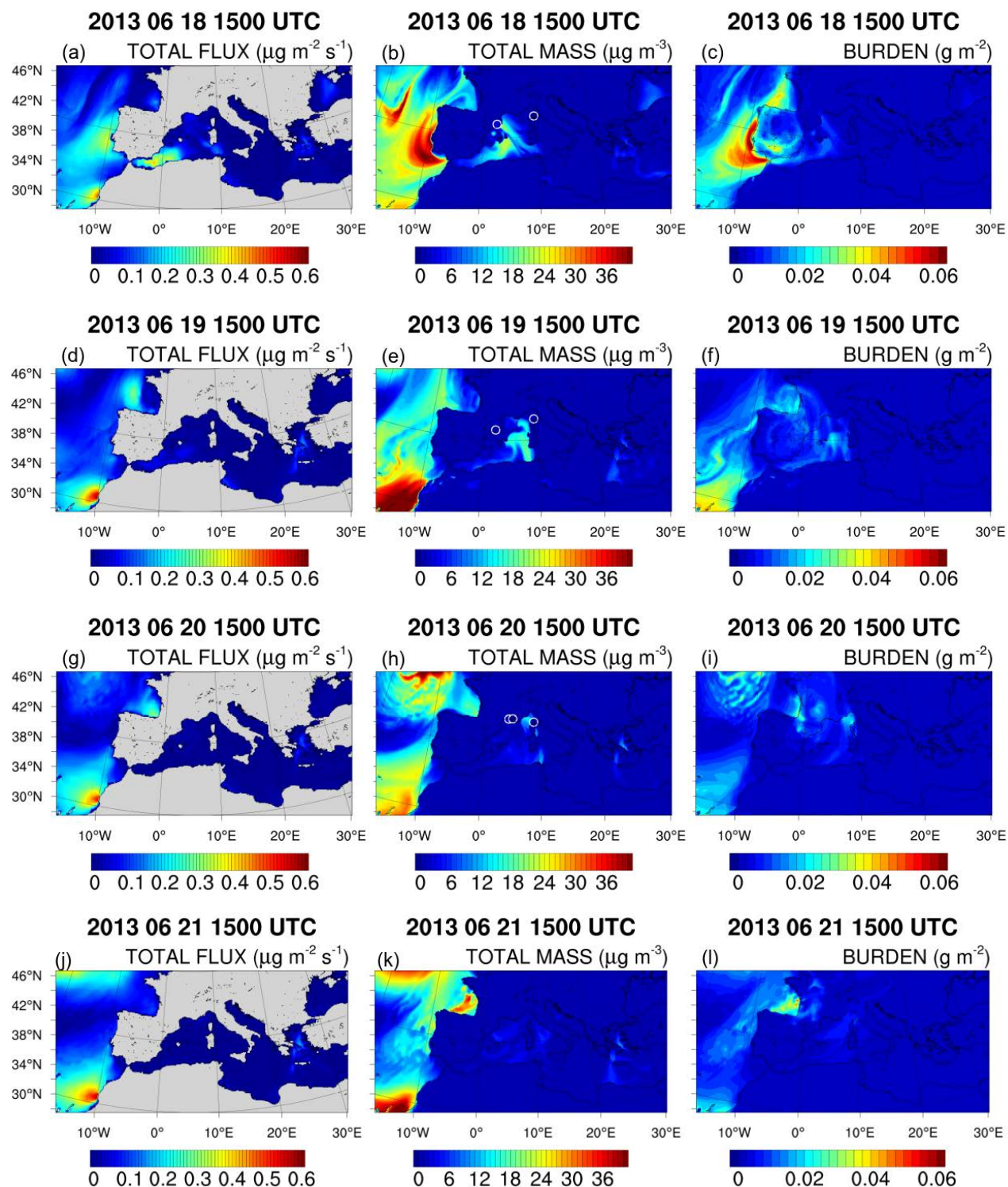


FIGURE 5.13 – Pour quatre dates, les flux d’émission d’aérosols marins ( $\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ), la masse totale ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) à 10 m et la charge massique en aérosols marins sur la colonne atmosphérique sont représentés. (a), (b) et (c) pour le 18 juin à 1500 UTC; (d), (e) et (f) pour le 19 juin à 1500 UTC; (g), (h) et (i) pour le 20 juin à 1500 UTC; (j), (k) et (l) pour le 21 juin à 1500 UTC. Sur les cartes représentant la masse à 10 m, les cercles indiquent les mesures in-situ réalisées à Barcelone ( $\text{PM}_{10}$ ), Ersaa ( $\text{PM}_{10}$ ) et à Fos-sur-mer ( $\text{PM}_{2.5}$ ).

surface atteignant des valeurs de plus de  $40 \mu\text{g m}^{-3}$  (le 19 juin 1500 UTC au large du Maroc). De telles valeurs ont déjà été observées à l’Observatoire Atmosphérique du Cap Vert ( $> 50 \mu\text{g m}^{-3}$ ) (Fomba et al., 2014). L’évolution de la charge massique entre le 18 juin 1500 UTC et le 20 juin 1500 UTC entre le golfe de Gascogne et la Corse nous montre la possibilité que des aérosols marins émis dans le golfe de Gascogne soient transportés jusqu’à la station d’Ersa. En effet, la charge en aérosols marins au dessus du sud de la France n’est pas nulle, bien que la concentration en masse à la surface le soit (Fig. 5.13). Cela signifie que des aérosols marins sont potentiellement transportés en altitude et franchissent la barrière montagneuse. On ne peut pas non plus négliger le possible transport d’aérosols marins émis dans l’océan Atlantique, proche du détroit de Gibraltar. La concentration en masse à la surface est faible au niveau du détroit (côté méditerranéen) pendant ces quatre jours ( $< 5 \mu\text{g m}^{-3}$ ), mais la charge massique est plus importante ( $> 0.02 \text{ g m}^{-2}$  le 18 juin 1500 UTC à l’entrée de la mer d’Alboran), dénotant un transport en altitude.

Kushta et al. (2014) indiquent une charge massique en aérosols marins comprises entre  $1 \cdot 10^{-2}$  et  $0.1 \text{ g m}^{-2}$  en mer Méditerranée et océan Atlantique. De même, Zakey et al. (2008) retrouve des charges massiques en aérosols marins proches de  $8 \cdot 10^{-3} \text{ g m}^{-2}$  en mer Méditerranée et dans l’océan Atlantique (moyenne saisonnière des mois d’été, juin, juillet et août). Les valeurs que l’on retrouve pendant l’épisode 1 se situent bien dans cet intervalle. On obtient cependant des valeurs d’un ordre de grandeur plus forte pendant l’épisode 1 par rapport à la charge en aérosols marins obtenue pendant une simulation sur un cas d’étude dans le bassin méditerranéen par Salameh et al. (2007). Les charges reportées dans cette étude sont comprises entre  $0.1$  et  $5 \text{ mg m}^{-2}$ .

Cette première analyse nous a donc permis de repérer plusieurs zones émettrices d’aérosols marins qui impactent Ersa à partir du 20 juin. Ces zones sont essentiellement le Golfe de Gascogne, la mer d’Alboran ainsi que la zone située entre la mer d’Alboran et la Corse. Ersa étant impacté par des masses d’air d’origine Ouest et Sud-Ouest, le reste de l’étude se focalise sur le bassin méditerranéen Ouest, i.e. les zones situées à l’ouest de la Corse.

Après avoir identifié les zones émettrices au niveau régional, les foyers au niveau local ont également été analysés. La figure 5.14 présente les flux d’émission sur le domaine de résolution horizontale de  $3 \text{ km}$  toutes les  $12 \text{ h}$ , du 18 juin 1200 UTC au 22 juin 0000 UTC. Les émissions les plus importantes sur ce domaines se situent à l’ouest, entre la Corse et la Sardaigne les 18 juin 1200 UTC et 19 juin 0000 UTC. Les flux atteignent  $0.12 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Ils sont plus faibles sur le reste du domaine pour ces deux dates ( $\sim < 0.02 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ). Du 19 juin 1200 UTC au 22 juin 0000 UTC, les émissions sont quasiment nulles sur tout le domaine excepté à partir du 21 juin 0000 UTC à l’ouest du Cap Corse. Ces émissions sont cependant faibles, ne dépassant pas  $0.03 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ). Les émissions au niveau local sont donc bien plus faibles que dans l’océan Atlantique et sont considérées comme très faibles où nulles pendant ce premier épisode d’aérosols marins.

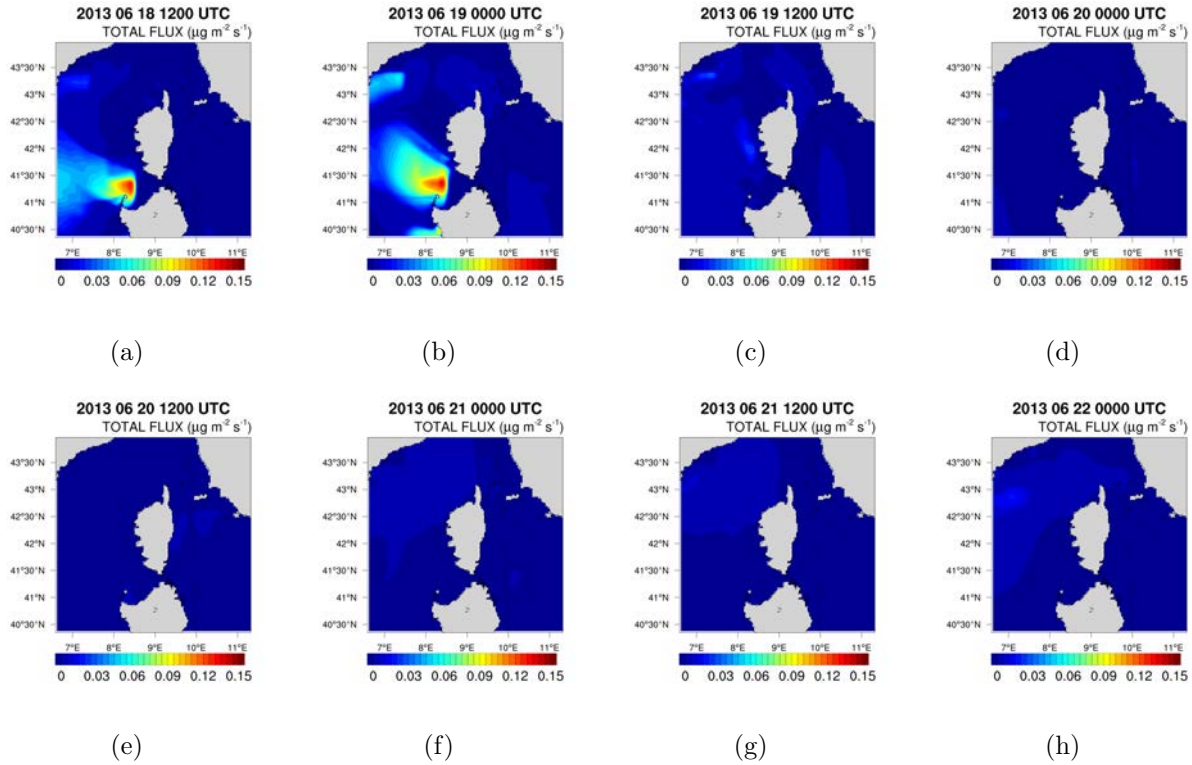


FIGURE 5.14 – Cartes représentant les flux d’émission d’aérosols marins sur le domaine à 3 km de résolution horizontale du 18 juin 1200 UTC (a) au 22 juin 0000 UTC (h). Un pas de temps de 12 h sépare chaque carte.

Comme mentionné précédemment, des coupes verticales réalisées sur 2 transects ont également été analysées (figure 5.12). La figure 5.15 présente le détail des coupes, avec le relief ainsi que les golfes ou mers présents sur les transects mer d’Alboran - Ersa (a) et golfe de Gascogne - Ersa (b). Sur ces figures, l’altitude maximale du relief ne dépasse pas 1000 m. Cela est dû au lissage de la surface sur les mailles d’une résolution horizontale de  $15 \times 15$  km, l’altitude du relief est moyennée, ce qui conduit à une diminution de l’orographie.

Les figures 5.16 et 5.17 représentent la hauteur significative des vagues et la vitesse du vent en surface, les flux d’émission instantanés ainsi que la concentration en masse totale des aérosols marins en fonction de l’altitude. Confronter ces deux derniers paramètres nous permet de différencier les aérosols émis au large d’Ersa de ceux transportés. Il faut toutefois prendre en compte le fait que ces coupes ne suivent pas forcément la direction de transport de ces aérosols. La hauteur de la couche limite marine (CLM) y est également représentée (correspondant au maximum de gradient de TKE, Turbulence Kinetic energy). Les séries temporelles couvrent la période du 18 au 20 juin. Les figures 5.16 et 5.17 correspondent respectivement au transect Alboran-Ersa et Gascogne-Ersa.

Premièrement, les transects entre la mer d’Alboran et Ersa nous indiquent que la vitesse

du vent, entre la mer d'Alboran et les Baléares, est importante le 18 juin 1200 UTC ( $\sim 15 \text{ m s}^{-1}$ ) et décroît progressivement pour atteindre des vitesses faibles de l'ordre de  $5 \text{ m s}^{-1}$ . Associées à ces vitesses de vent importantes, la hauteur significative des vagues est aussi plus élevée le 18 juin ( $\sim 2 \text{ m}$ ) puis décroît jusqu'à descendre en dessous du mètre le 20 juin. En conséquence, les flux d'émissions sont plus importants ( $> 0.3 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) au niveau de la mer d'Alboran jusqu'au 19 juin 0000 UTC. Les émissions diminuent ensuite jusqu'à devenir négligeables sur ce transect le 20 juin. La figure 5.16 représentant la concentration en masse nous montrent que le transport des aérosols marins pendant cette période se fait à la fois dans la troposphère libre et dans la CLM. En effet, la concentration en masse des panaches d'aérosols marins proches de la surface dépassent les  $20 \mu\text{g m}^{-3}$ , et cette valeur décroît très rapidement pour des altitudes proches de 1000 m. En revanche, la concentration des panaches transportés en altitude est beaucoup plus faible. Les valeurs sont comprises entre  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  juste après l'émission au début du transport en altitude (19 juin 0000 UTC), et moins de  $6 \mu\text{g m}^{-3}$  quand le panache redescend dans la CLM. Bien que des aérosols marins ait déjà été observés sur des sites en altitude, les valeurs simulées ici sont tout de même assez importantes.

Du 18 juin 1200 UTC au 20 juin 1200 UTC, le panache d'aérosols marins est transporté des îles Baléares à Ersa pour atteindre le site de mesure le 20 juin 0000 UTC. Etant donné que les flux d'émission sont nuls proche d'Ersa pendant cette période, une des sources des aérosols marins observés à Ersa est donc la zone proche des Baléares. En parallèle, les aérosols marins qui ont été émis au niveau de la mer d'Alboran (19 juin 0000 UTC), sont transportés en altitude, dans la troposphère libre (FT). Ce panache se mélange ensuite dans la CLM le 20 juin, indiquant donc une deuxième source impactant la station de mesure d'Ersa. Enfin, en plus des émissions dans la mer d'Alboran, des aérosols marins émis dans l'océan Atlantique, proche du détroit de Gibraltar sont également transportés dans la FT (non montré ici) et contribuent aux panaches observés dans la FT le 18 juin 1200 UTC). On a donc pour cet épisode une double origine des aérosols marins transportés en FT ; détroit de Gibraltar et mer d'Alboran.

Les coupes verticales réalisées entre la mer d'Alboran et Ersa indiquent donc que les aérosols observés à Ersa sont en partie originaires de la mer d'Alboran ainsi que de la zone située entre les Baléares et Ersa. La première origine par transport d'une partie du panache en altitude, et la seconde principalement dans la CLM. Une contribution à plus grande échelle (Gibraltar) est également identifiée.

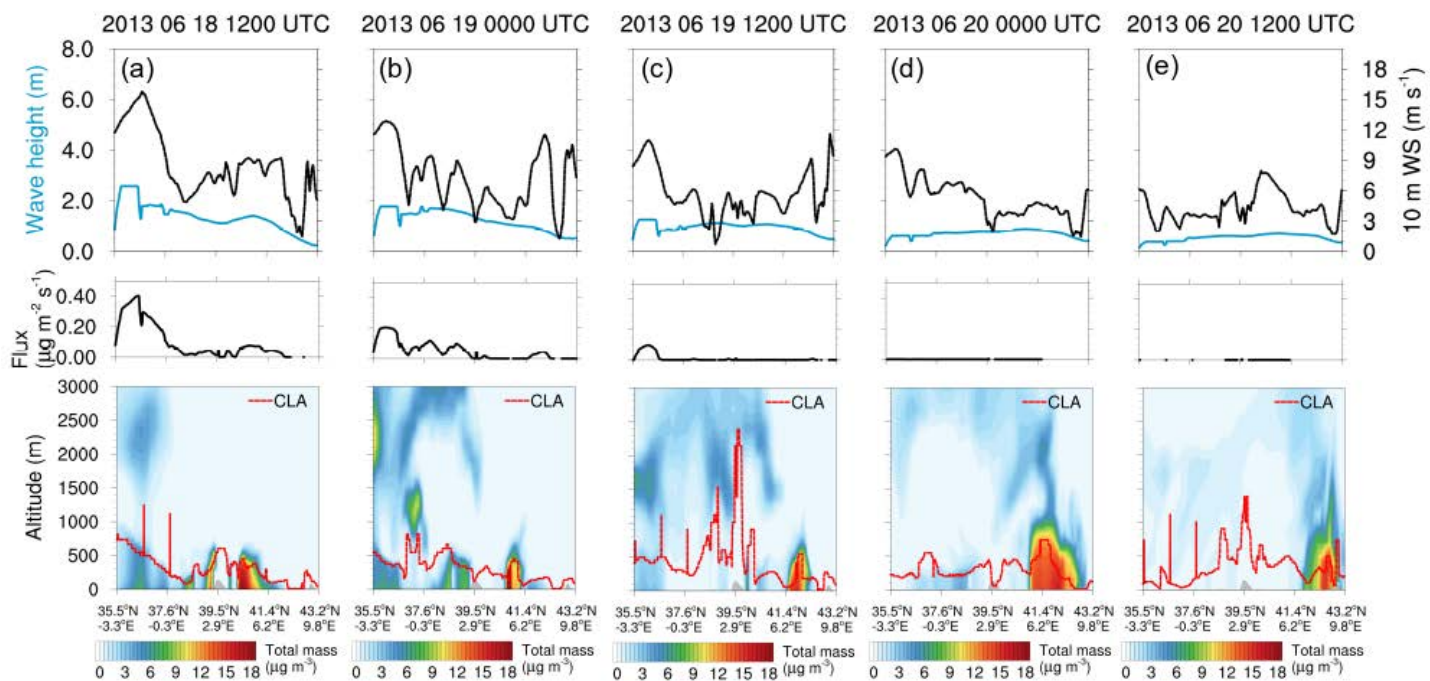


FIGURE 5.16 – Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect mer d’Alboran-Ersa (détails de la coupe sur la figure 5.15 (a)), au centre les flux d’émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 18 juin 1200 UTC au 20 juin 1200 UTC, toutes les 12 h.

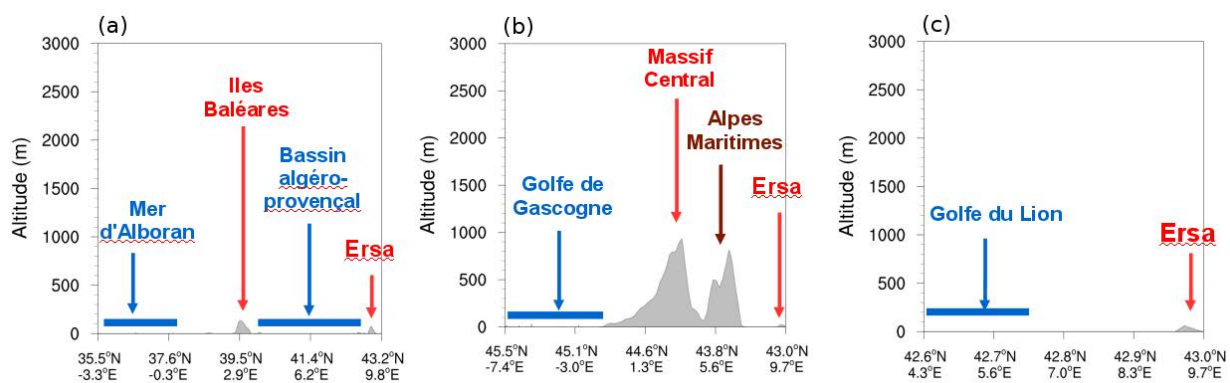


FIGURE 5.15 – Détail des transects : (a) mer d’Alboran - Ersa, (b) Golfe de Gascogne - Ersa et (c) Golfe du Lion - Ersa

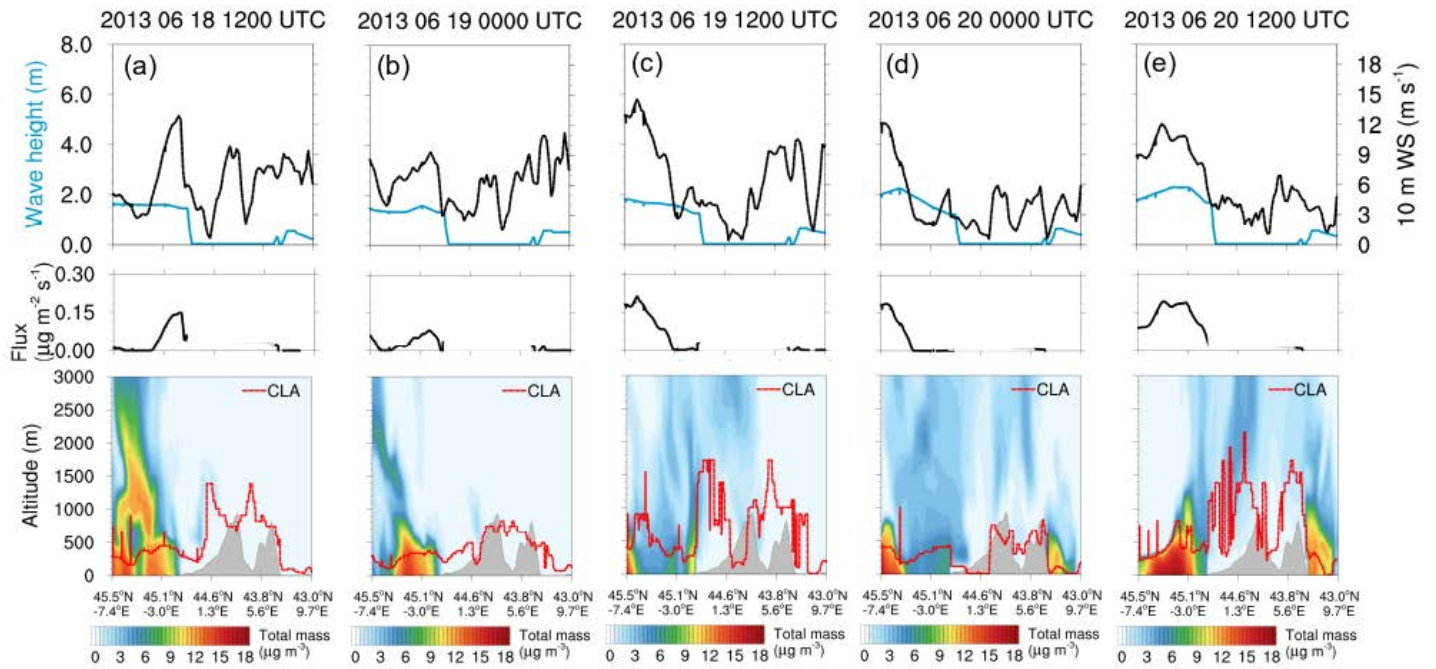


FIGURE 5.17 – Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect golfe de Gascogne-Ersa (détails de la coupe sur la figure 5.15 (b)), au centre le flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 18 juin 1200 UTC au 20 juin 1200 UTC, toutes les 12 h.

Les coupes verticales représentées sur la figure 5.17 sont celles estimées entre le golfe de Gascogne et Ersa (Fig. 5.12). Ce transect diffère de celui entre la mer d'Alboran et Ersa puisqu'une partie de la coupe traverse la France et n'est donc pas émettrice d'aérosols marins. De plus, le relief du Massif Central et des Alpes Maritimes constitue une barrière naturelle au transport longue distance des aérosols. Du début à la fin de cette série temporelle, sur ce transect, la vitesse du vent dans le golfe de Gascogne est plus importante que dans le bassin méditerranéen ( $\sim 12 \text{ m s}^{-1} > \sim 8 \text{ m s}^{-1}$ ). On retrouve ce schéma pour la hauteur significative des vagues ( $\sim 2 \text{ m} > \sim 1 \text{ m}$ ). On note également qu'il n'y a pas d'émission dans le bassin méditerranéen sur cette coupe. Les émissions surviennent essentiellement dans le golfe de Gascogne mais sont cependant plus faibles que celles estimées au niveau de la mer d'Alboran ( $\sim 0.15 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ). Du 19 juin 1200 UTC au 20 juin 1200 UTC, on observe un transport en altitude des aérosols marins émis les 18 et 19 juin. Le panache est advecté à des altitudes atteignant les 3000 m, puis son altitude diminue jusqu'à atteindre le sommet de la CLM le 20 juin 1200 UTC, entre Marseille et la Corse. Ces figures nous indiquent donc que les aérosols émis dans le golfe de Gascogne impactent probablement le site de mesure d'Ersa

à partir du 20 juin 1200 UTC, après un transport en FT. Le transport d'aérosols marins en troposphère libre est un phénomène assez peu référencé dans la littérature sur notre genre d'étude. En revanche, des aérosols marins ont déjà été observé sur des sites à haute altitude, dénotant un transport en troposphère libre. Par exemple, Holmgren et al. (2014) ont observé des aérosols marins sur le site du Puy de Dôme (1465 m asl) et Marengo et al. (2006) à la station GAW installée au Mont Cimone (Italie, 2165 m asl), avec des concentrations de l'ordre de  $0.5 \mu\text{g m}^{-3}$ . Il faut également indiquer que la mauvaise représentation du relief par le modèle favorise possiblement le transport des aérosols marins au-dessus des massifs montagneux par rapport à la réalité. Néanmoins, la contribution des aérosols marins émis dans l'océan Atlantique n'est pas négligeable sur ce cas d'étude. Cependant, les valeurs simulées au dessus du Massif Central atteignent des valeurs plus importantes ( $\sim 5 \mu\text{g m}^{-3}$ ) que celles observées au Mont Cimone. Il est donc possible que le modèle surestime le transport des aérosols marins en FT.

En résumé, les aérosols marins impactant Erse du 19 au 22 juin 2013 proviennent majoritairement de zones éloignées comme la mer d'Alboran et le golfe de Gascogne, ainsi que de zones plus proches entre les Baléares et la Corse. En outre, le transport longue distance du golfe de Gascogne et de la mer d'Alboran est simulé en troposphère libre alors que le transport entre les îles Baléares et la Corse s'effectue en majorité dans la CLM. Les émissions d'aérosols marins au niveau local, très proche du site de mesure, sont ici très faibles et considérées comme nulles.

### **2<sup>eme</sup> épisode (22 juin - 26 juin)**

La situation dynamique qui mène à l'émission des aérosols marins pour le deuxième épisode est très différente du premier. Les figures 5.18 (a), (d), (g) et (j) présentent les flux d'émission pendant le deuxième épisode, les 22 juin 1200 UTC, 23 juin 1200 UTC, 24 juin 1200 UTC et 25 juin 1200 UTC au niveau régional (mer Méditerranée et Est de l'océan Atlantique). Au début de l'épisode, les émissions sont importantes au niveau de l'océan Atlantique ( $\sim 0.8 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) alors qu'elles sont faibles en Méditerranée ( $< 0.15 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ). Les jours suivants, la situation s'inverse. Les émissions diminuent en Atlantique le 23 juin 1200 UTC ( $\sim 0.5 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) et augmentent dans le Golfe du Lion ( $\sim 0.3 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ). Dans le reste du bassin méditerranéen, les émissions restent faibles ( $< 0.1 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ). Le 24 juin 1200 UTC, les émissions sont inférieures à  $0.1 \mu\text{g m}^{-2}$  dans le Golfe de Gascogne et sont en revanche assez fortes dans le Golfe du Lion où elles atteignent  $0.6 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ . Le 25 juin 1200 UTC, à la fin de l'épisode, les flux d'émission dans le bassin méditerranéen Ouest sont réduits à une zone moins étendue et leur amplitude diminue également ( $0.3 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1} < F < 0.5 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ).

Les figures (b), (e), (h) et (k) présentent la concentration en masse en surface pour les quatre mêmes dates. Le gradient entre la concentration en masse au niveau de l'océan Atlantique et la mer Méditerranée est manifeste. Alors que les concentrations dépassent les  $40 \mu\text{g m}^{-3}$  du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 1200 UTC dans l'océan Atlantique Nord ainsi qu'au large de l'Afrique du Nord, la concentration ne dépasse pas  $20 \mu\text{g m}^{-3}$  en mer Méditerranée (les 24 juin 1200 UTC et 25 juin 1200 UTC, à l'Ouest de la Sardaigne). La charge massique intégrée sur la colonne atmosphérique est également beaucoup plus importante au dessus de l'océan Atlantique ( $> 0.05 \text{ g m}^{-2}$  le 22 juin 1200 UTC) et du golfe de Gascogne ( $> 0.05 \text{ g m}^{-2}$  le 23 juin 1200 UTC) alors que la charge ne dépasse pas  $0.01 \text{ g m}^{-2}$  au niveau de la mer Méditerranée pour ces deux dates. La charge diminue ensuite au niveau du golfe de Gascogne ( $\sim 0.03 \text{ g m}^{-2}$  le 24 juin 1200 UTC et  $\sim 0.015 \text{ g m}^{-2}$  le 25 juin 1200 UTC) et augmente à l'ouest de la Sardaigne, au niveau de la mer Méditerranée ( $> 0.015 \text{ g m}^{-2}$  les 24 et 25 juin 1200 UTC). Même si les flux d'émission sont plus importants à partir du 24 juin 1200 UTC en mer Méditerranée, à l'ouest de la Corse, la concentration en masse à la surface est beaucoup plus importante au niveau de l'océan Atlantique. De même, la charge en aérosols marins sur la colonne atmosphérique est beaucoup plus importante au niveau de l'océan Atlantique et en particulier dans le golfe de Gascogne pendant cette période. A partir de ces informations, les zones potentiellement émettrices à grande échelle des aérosols marins sont donc l'océan Atlantique, et en particulier le golfe de Gascogne ainsi que le golfe du Lion.

Pour comprendre la situation au niveau régional, sur une zone comprenant une partie du golfe du Lion et à plus fine échelle, les flux d'émission sur le domaine à 3 km de résolution horizontale sont représentés sur la figure 5.19, du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 0000 UTC. Sur cette figure, on visualise bien l'évolution temporelle des flux d'émission. Ceux-ci sont quasiment nuls les 22 juin 1200 UTC et 23 juin 0000 UTC (Fig. 5.19 (a) et (b)), et deviennent plus importants à l'Ouest de la Corse ( $\sim 0.2 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) le 23 juin à 1200 UTC. On note également des émissions au niveau de la côte Ouest du Cap Corse, de l'ordre de  $0.1 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . Les flux d'émission s'intensifient ensuite jusqu'à atteindre des valeurs de plus de  $0.6 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  dans le golfe du Lion et de  $0.3 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  sur le Cap Corse. Ces émissions impactent toujours le Cap Corse jusqu'au 24 juin 0000 UTC. A partir du 24 juin 0600 UTC, les émissions proches de la côte Ouest du Cap Corse diminuent fortement ( $\sim 0.12 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) pour devenir quasiment nulles le 25 juin 0000 UTC. Les émissions dans le golfe du Lion restent cependant importantes pendant cette période mais ces aérosols marins impactent peu le site d'Ersa. Le modèle simule donc des émissions à la fois locales, sur la côte Ouest du Cap Corse, et régionale, dans le golfe du Lion. Cependant, la représentation de la dynamique décale le panache d'aérosols marins vers le sud comme vu précédemment, figure 5.18.

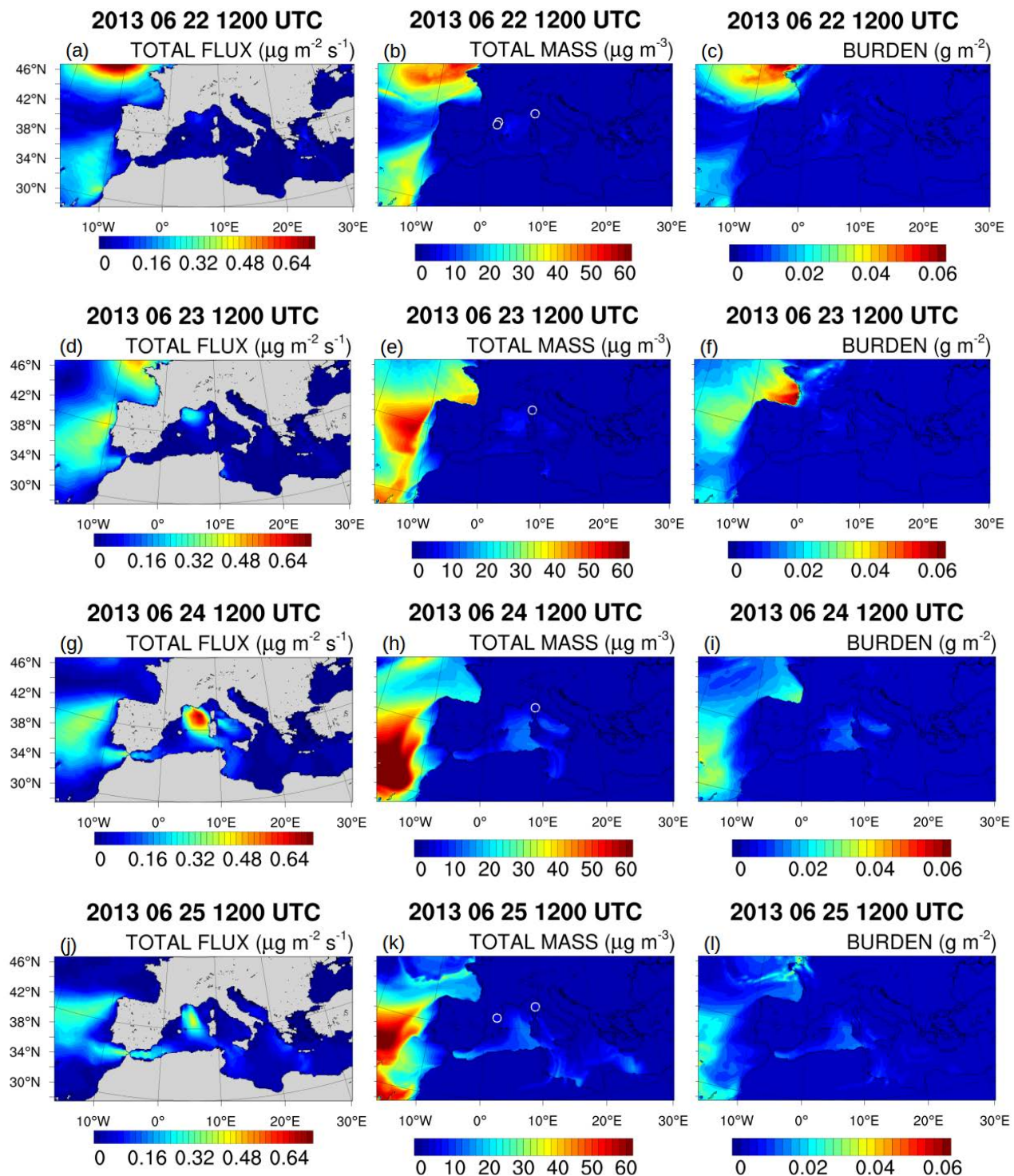


FIGURE 5.18 – Pour quatre dates, les flux d'émission, la masse totale à 10 m et la charge en aérosols marins sur la colonne atmosphérique sont représentés. (a), (b) et (c) pour le 22 juin à 1200 UTC; (d), (e) et (f) pour le 23 juin à 1200 UTC; (g), (h) et (i) pour le 24 juin à 1200 UTC; (j), (k) et (l) pour le 25 juin à 1200 UTC. Sur les cartes représentant la masse à 10 m, les cercles représentent les mesures in-situ réalisées à Barcelone (PM<sub>10</sub>) et Ersar (PM<sub>10</sub>).

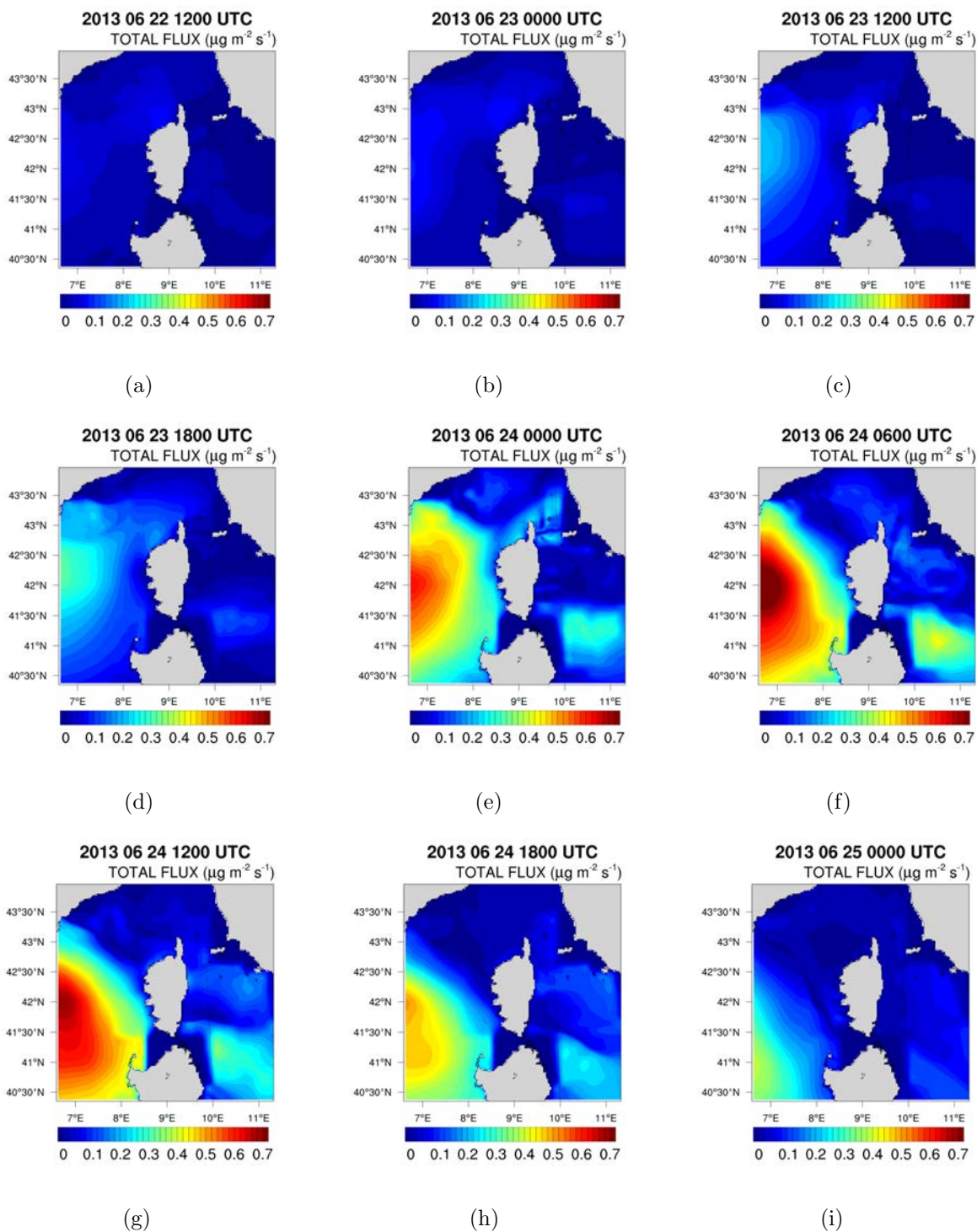


FIGURE 5.19 – Cartes représentant les flux d’émission sur le domaine à 3 km de résolution horizontale, du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 0000 UTC. Le site de mesure d’Ersa est indiqué par la croix rouge.

Afin d’approfondir l’étude sur l’origine des aérosols observés à Ersa pendant ce deuxième épisode, les figures 5.20 et 5.21 présentent les coupes verticales correspondant aux transects

golfe du Lion - Ersà et golfe de Gascogne - Ersà (Fig. 5.12). Ces deux figures sont similaires, en terme de variables représentées, aux figures 5.16 et 5.17 pour les dates suivantes, du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 1200 UTC, séparées de 12 h.

Au niveau du golfe du Lion, on observe que la vitesse du vent à 10 m est plutôt élevée pendant ces 5 jours ( $> 12 \text{ m s}^{-1}$ ), alors que la hauteur significative des vagues ne commence à dépasser 1 m qu'à partir du 23 juin 1200 UTC pour atteindre 4 m le 24 juin. La vitesse du vent devient forte à partir du 23 juin 1200 UTC également, avoisinant les  $18 \text{ m s}^{-1}$  et dépassant les  $15 \text{ m s}^{-1}$  jusqu'au 25 juin 0000 UTC. En conséquence, les flux d'émission augmentent également à partir du 23 juin 1200 UTC jusqu'à la fin de la période, et atteignent leur maximum ( $0.6 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) le 24 juin 0000 UTC. Malgré les vitesses de vent dépassant les  $12 \text{ m s}^{-1}$  les 22 et 23 juin, les émissions d'aérosols marins sont faibles ( $\sim 0.1 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ). Il existe un gradient très prononcé entre le golfe du Lion et le reste du transect, où les vitesses de vent, les hauteurs de vagues ainsi que les émissions sont beaucoup moins importantes ( $0 < F < 0.2 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ).

En ce qui concerne le transport des aérosols marins, on observe deux voies différentes; la première dans la CLM et la seconde dans la FT. La majeure partie de la masse est simulée dans la CLM mais on note l'influence d'un panache d'aérosols dans la FT (figures 5.20 (a) à (c)) qui impacte Ersà le 22 juin en fin d'après-midi, jusqu'au 23 juin 0000 UTC. La concentration en masse de ce panache atteint  $5 \mu\text{g m}^{-3}$ . Ce panache d'aérosols a été émis dans l'océan Atlantique, au large du golfe de Gascogne (non montré ici).

L'analyse du transect golfe du Lion - Ersà indique que des panaches d'aérosols émis localement, régionalement et transportés dans la CLM, ainsi que des aérosols transportés sur de plus longues distances (dans la FT) impactent la station d'Ersà. On a donc pour ce deuxième épisode une contribution plus complexe indiquant; des aérosols émis localement (côtes du Cap Corse), considérés comme « frais », des aérosols émis « régionalement » (golfe du Lion) et ayant probablement subis un vieillissement avant d'atteindre Ersà, et enfin des aérosols émis dans l'océan Atlantique considérés comme « âgés ».

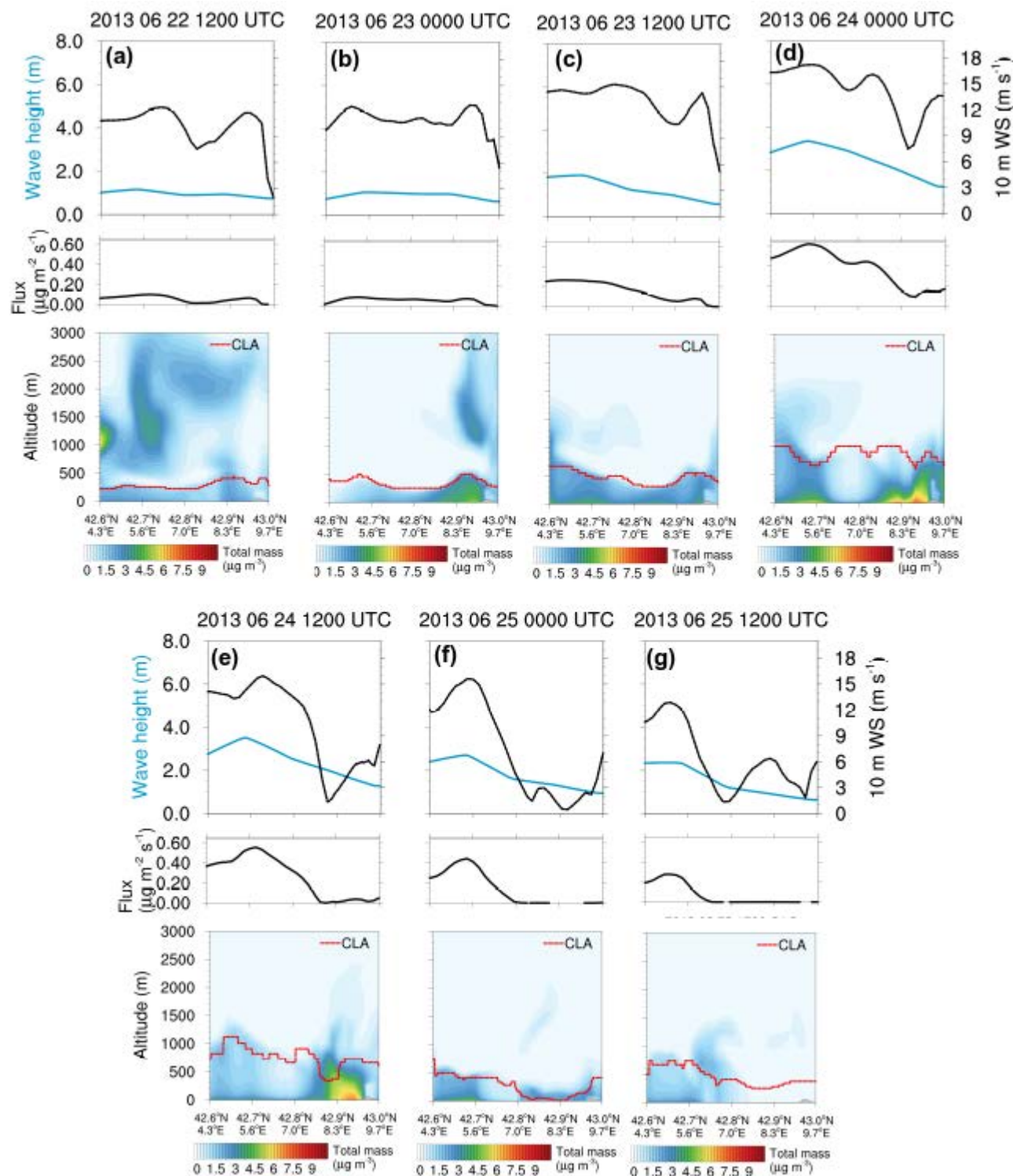


FIGURE 5.20 – Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect golfe du Lion-Ersa, au centre les flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 1200 UTC, toutes les 12 h.

Sur la figure 5.21 qui représente le transect Gascogne-Ersa, du 22 juin 1200 UTC au 24 juin 0000 UTC (figures (a) à (d)), on observe tout d’abord une différence importante de hauteurs significatives des vagues entre le golfe de Gascogne et la mer Méditerranée, alors que les vitesses de vent à 10 m sont similaires dans ces deux zones, voire supérieures en Méditerranée ( $\sim 9 \text{ m s}^{-1}$  dans le golfe de Gascogne et  $\sim 12 \text{ m s}^{-1}$  en Méditerranée). Malgré des vitesses de vent plus élevées en Méditerranée, les flux d’émissions simulés sont plus importants dans le golfe de Gascogne ( $\sim 0.3 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ) que dans la mer Méditerranée ( $< 0.1 \mu\text{g m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ). L’importance de la longueur de fetch et donc de la hauteur des vagues sur l’émission des aérosols marins, beaucoup plus importante dans l’océan Atlantique pendant ce cas d’étude, est soulignée une nouvelle fois ici. A partir du 24 juin 1200 UTC, les flux d’émissions diminuent fortement et deviennent quasiment nuls sur la totalité du transect. Associées aux émissions fortes dans le golfe de Gascogne, la concentrations en masse simulée dans la CLM est très importante ( $> 40 \mu\text{g m}^{-3}$ ), mais ces aérosols marins sont en majorité bloqués dans la CLM par le Massif Central, comme on peut le voir sur les figures 5.21 (a), (b) et (c). Un peu plus tôt dans cette période, du 22 juin 1200 UTC au 23 juin 0000 UTC, on note également un panache d’aérosols transporté dans la FT atteignant Ersa le 23 juin 0000 UTC. Ce panache est caractérisé par une concentration en masse beaucoup plus faible ( $< 3 \mu\text{g m}^{-3}$ ) que celle simulée dans la CLM ( $> 40 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Ces concentrations en masse, à la fois en FT et dans la CLM, sont importantes et il existe peu de mesures expérimentales qui relatent de telles valeurs. Une analyse de la vitesse verticale du vent dans la CLM permettrait de mettre en évidence les processus de transport d’aérosols marins de la CLM dans la FT.

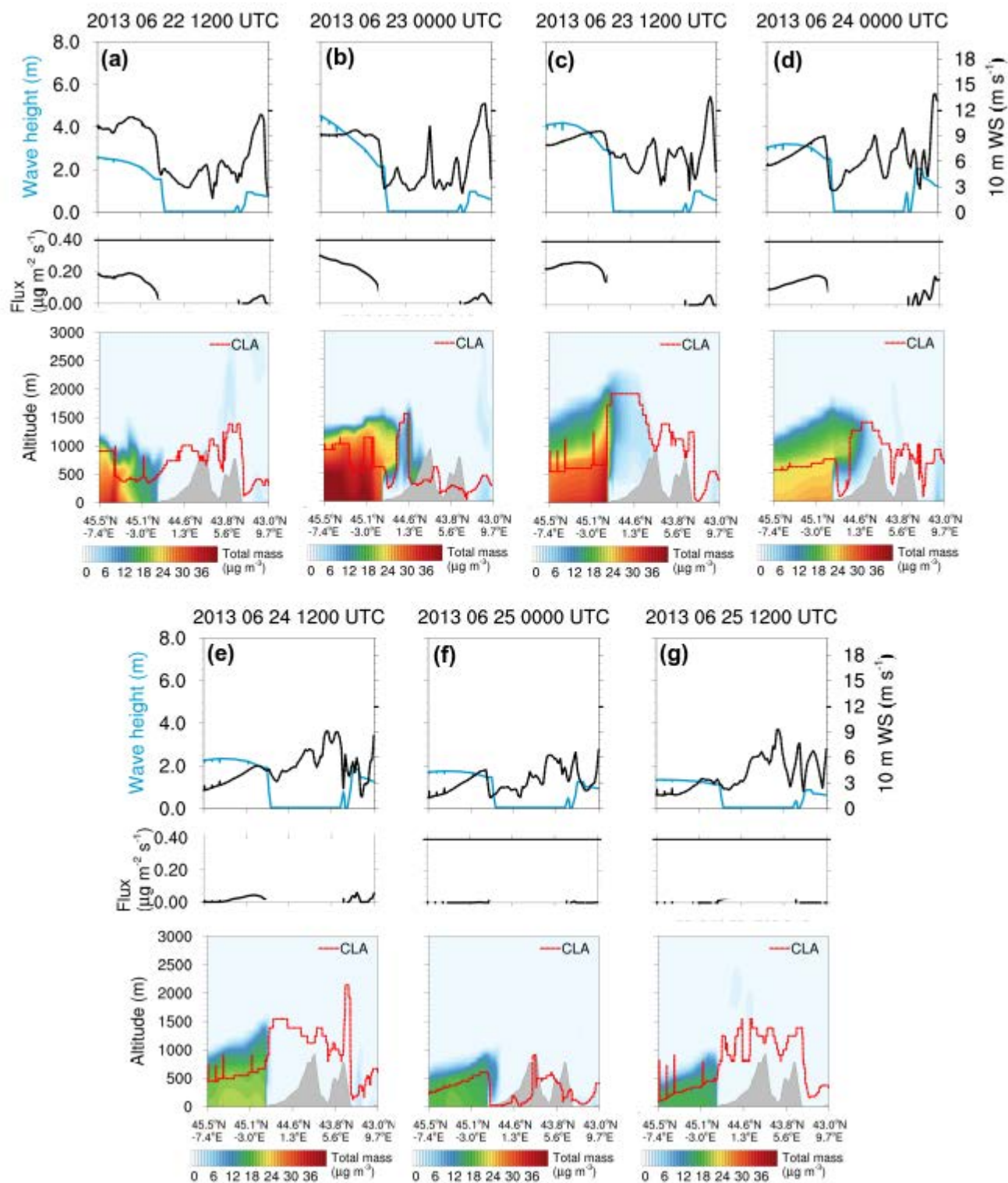


FIGURE 5.21 – Série temporelle représentant en haut la vitesse du vent à 10 m (axe droit) ainsi que la hauteur significative des vagues (axe gauche) sur le transect golfe de Gascogne-Ersa, au centre les flux d'émission en masse à la surface et en bas, la concentration en masse de la surface à 3000 m ainsi que la hauteur de la couche limite. Le relief est illustré en gris. Coupes allant du 22 juin 1200 UTC au 25 juin 1200 UTC, toutes les 12 h.

De la même manière que pour l'épisode 1, l'épisode 2 est donc aussi probablement impacté par des aérosols marins transportés sur de longues distances provenant de l'océan Atlantique. La différence entre ces deux épisodes est qu'Ersa n'est impacté que sporadiquement (le 23 juin) pour le second épisode et par des panaches dont la concentration est plus faible que pendant l'épisode 1.

Les deux périodes où les aérosols marins impactent le site de mesure d'Ersa sont donc caractérisées par des situations météorologiques différentes. Pendant le premier épisode, du 19 au 22 juin, la station d'Ersa est influencée par des masses d'air provenant du Sud-Ouest. Au niveau de la mer d'Alboran et du détroit de Gibraltar, des vents forts accompagnés de hauteurs significatives de vagues importantes (jusqu'à 3 m) provoquent des émissions d'aérosols marins qui vont être transportés jusqu'à Ersa. On a ensuite des émissions importantes d'aérosols entre les Baléares et le Cap Corse qui vont également être transportés jusqu'à la station de mesure. Une influence probable du golfe de Gascogne a également été mise en évidence. La station d'Ersa est donc impactée par des aérosols d'origines régionales et longue distance. Il y a très peu d'émissions locales pendant cette épisode et les aérosols observés n'ont donc probablement pas été émis au niveau de la Corse.

Pendant le deuxième épisode, du 22 au 26 juin, la station d'Ersa est influencée principalement par des masses d'air originaires d'ouest. L'analyse des cartes de flux d'émissions, de concentration en masse à la surface et de charge atmosphérique, ainsi que des transects verticaux entre le Cap Corse et les golfes du Lion et de Gascogne a mis en avant que les émissions d'aérosols marins les plus importantes se situaient au niveau de ces deux golfes. Des émissions plus locales ont également été mises en évidence. L'origine des aérosols marins impactant le site d'Ersa est résumée dans le tableau 5.3 pour les deux épisodes.

Une des conclusions importantes de cette partie est que l'analyse de l'origine des aérosols marins observés à Ersa concorde bien avec une des conclusions de Claeys et al. (2016) sur le vieillissement des aérosols observés à Ersa pendant la campagne de mesure ChArMEx-ADRIMED. En effet, les données issues de l'ATOFMS et du PILS-IC montraient un vieillissement plus prononcé pour les aérosols mesurés à Ersa, entre le 19 et le 22 juin, et donc catégorisés majoritairement comme « Plutôt Agés » et « Agés ».

Pendant le second épisode, Claeys et al. (2016) ont majoritairement catégorisés les aérosols comme « Plutôt frais », associés à des aérosols marins catégorisés comme « Plutôt Agés ». Ce résultat est synonyme d'un mélange entre aérosols émis localement (au large d'Ersa) et émis au niveau régional et transporté sur de longues distances. Les résultats de la modélisation confirment bien la variabilité des aérosols marins observés à Ersa, qui serait liée à des sources et/ou des processus de vieillissement différents. De plus, un deuxième résultat de Claeys et al. (2016) indique que le site de mesure d'Ersa était toujours impacté par des

aérosols marins âgés, indépendamment des conditions météorologiques locales. Or, pendant le premier épisode et de façon plus hypothétique pendant le second, les résultats de la simulation montrent un impact des aérosols transportés sur de longues distances dans la FT sur le site d'Ersa, en concordance avec les mesures expérimentales présentées dans Claeys et al. (2016).

	Episode 1 19-22 juin	Episode 2 22-26 juin
Emission locale	Non	Côte Ouest de la Corse
Emission régionale <i>Mediterranee</i>	mer d'Alboran & entre les îles Baléares et la Corse	Golfe du Lion
Emission régionale <i>Atlantique</i>	Golfe de Gascogne & Détrioit de Gibraltar	Golfe de Gascogne

TABLE 5.3 – Récapitulatif des zones d'émission d'aérosols marins pendant les deux épisodes de la simulation ADRIMED.

## 5.2 Evaluation du schéma d'émission d'aérosols marins primaires et propriétés physiques (ADRIMED)

Afin d'évaluer le schéma d'émission d'aérosols marins dans MesoNH, les paramètres physiques étudiés dans cette partie sont :

- La concentration en masse et en nombre.
- La contribution des différents modes à la distribution en taille (nombre et masse).
- La granulométrie en masse (pour le deuxième épisode uniquement).

### 5.2.1 1<sup>er</sup> épisode (19 juin - 22 juin)

#### Concentration massique

La figure 5.22 présente la série temporelle de la concentration en masse en aérosols marins pendant le premier épisode, du 19 juin 0000 UTC au 22 juin 0000 UTC. Les observations issues des mesures effectuées avec le PILS-IC sont représentées en trait plein bleu et la simulation en trait pointillé rouge. Le modèle reproduit bien le timing de cet évènement. En effet la corrélation temporelle entre les observations et le modèle est de 0.62. On observe cependant un léger décalage pour le début de l'épisode; les premiers panaches d'aérosols impactant le site sont observés le 19 juin en milieu de journée alors que le modèle indique un début d'impact un peu plus tard, le 20 juin 0000 UTC. L'intensité maximale du panache est bien synchronisée pour ces deux approches. On observe également deux pics de concentrations plus fortes pendant la journée du 20 juin qui sont bien représentés au niveau du timing par

le modèle, alors que leur intensité est surestimée d'un facteur 2. Le modèle surestime ainsi la concentration en masse à la surface pendant la période, comme l'indique le biais positif de  $0.32 \mu\text{g m}^{-3}$  (Tableau 5.5).

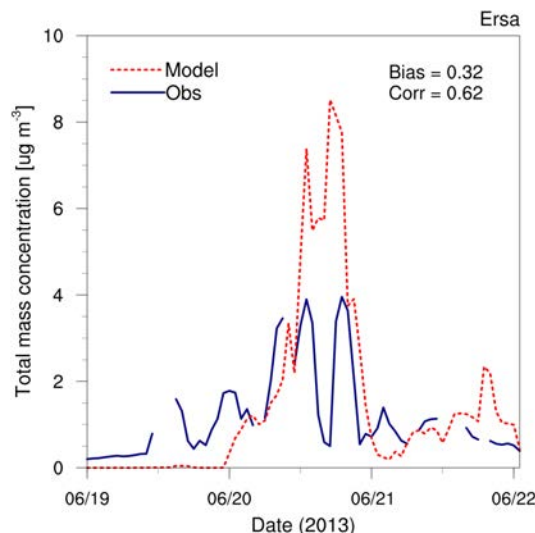


FIGURE 5.22 – Concentration massique en aérosols marins primaires inorganiques observée à Ersa par le PILS-IC (courbe bleue) et simulée par MesoNH (courbe rouge) pendant l'épisode 1.

### Contribution des différents modes à la concentration massique

La contribution de chaque mode à la masse totale est présentée sur la figure 5.23 (a). Pour rappel, la concentration en masse modélisée correspond à la masse sèche des aérosols marins. Les paramètres des cinq modes sont rappelés dans le tableau 5.4.

Le mode 5, représenté en bleu, contribue à plus de 90 % de la concentration en masse à partir du 20 juin 0000 UTC. Du 19 au 20 juin, la concentration en masse observée à Ersa est proche de  $1 \mu\text{g m}^{-3}$  mais la concentration modélisée reste très faible. Le mode 4 représente jusqu'à 20 % de la masse totale, le reste provenant majoritairement du mode 5. Les modes 1, 2 et 3 ont une contribution négligeable à la concentration en masse ( $< 5 \%$ ). La masse étant proportionnelle au rayon au cube, les deux plus grands modes contribuent majoritairement à la concentration en masse, comme attendu.

	Mode 1	Mode 2	Mode 3	Mode 4	Mode 5
Gamme	Ultra-fin	Fin	Accumulation	Accumulation	Grossier
Diametre ( $\mu\text{m}$ )	0.018	0.041	0.09	0.23	0.85
$\sigma$	1.37	1.50	1.42	1.53	1.85

TABLE 5.4 – Diamètre modal, écart-type modal de la distribution de taille lognormale utilisés dans la paramétrisation de Ovadnevaite et al. (2014).

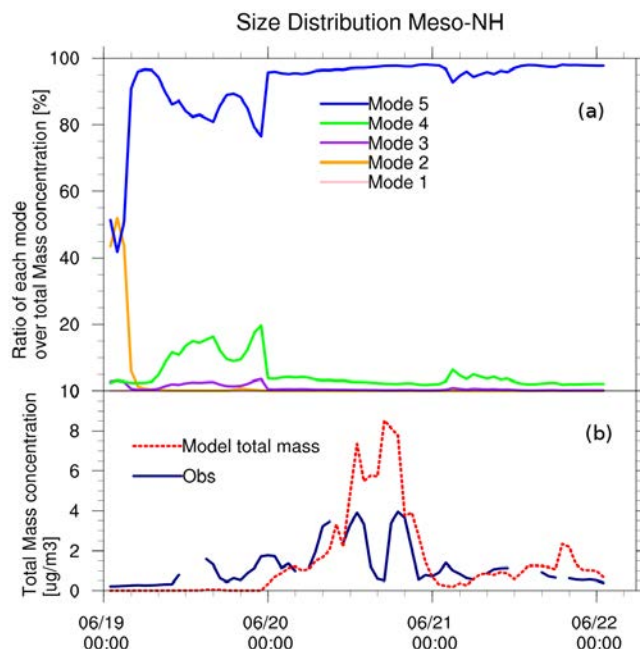


FIGURE 5.23 – (a) Contribution de chaque mode à la concentration massique totale pendant l'épisode 1. (b) Concentration massique totale.

### Concentration en nombre et contribution des différents modes

La concentration en nombre ainsi que la granulométrie des aérosols a été mesurée à Ersa pendant la campagne de mesure. L'instrument de mesure SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) détecte les particules dont le diamètre est compris entre 10 et 500 nm. Les particules de cette gamme de taille sont dominantes en nombre et correspondent généralement à des aérosols anthropiques (voir section 2.1.1). L'instrument de mesure OPS (Optical Particle Sizer) détecte les particules plus grossières, dont le diamètre varie de 0.3 à 10  $\mu\text{m}$ , et qui sont plutôt caractéristiques de poussières désertiques ou d'aérosols marins. La figure 5.24 (a) présente la contribution de chaque mode à la concentration en nombre totale modélisée. La figure 5.24 (b) présente la concentration en nombre totale modélisée (courbe rouge), la concentration en nombre totale mesurée par l'OPS (courbe bleue marine) et la concentration en nombre totale (intégrée) mesurée par le SMPS (courbe bleu roi). On se focalise tout d'abord sur la concentration en nombre totale. La concentration mesurée par le SMPS est beaucoup plus importante que celle de l'OPS (en moyenne de  $1658 \pm 379 \text{ cm}^{-3}$  et  $21 \pm 14 \text{ cm}^{-3}$ ).

La concentration en nombre totale modélisée est très faible en dehors des épisodes d'aérosols marins ( $< 0.1 \text{ cm}^{-3}$ ). Pendant l'épisode 1, elle atteint  $25 \text{ cm}^{-3}$  à son maximum. Cette valeur est en adéquation avec les valeurs que l'on retrouve dans la littérature pour les aérosols marins, de l'ordre de plusieurs dizaines de particules  $\text{cm}^{-3}$  pour des conditions de vents forts (D O'Dowd et De Leeuw, 2007; O'Dowd et Smith, 1993; Kreidenweis et al., 1998). En com-

parant ces valeurs avec les observations, on observe une différence importante, de plusieurs ordres de grandeur entre les mesures du SMPS et la concentration en nombre modélisée. Les simulations n'intègrent pas les émissions anthropiques et les aérosols secondaires, principalement localisées dans les modes fin et accumulation, ce qui peut expliquer en partie ce biais. Cependant, les valeurs de l'OPS sont plus proches de la concentration modélisée, mais représentent uniquement le mode 5 et une partie du mode 4. En effet, le diamètre minimal de coupure de l'OPS est de 300 nm et les diamètres modaux des modes sont de 230 nm (mode 4) et de 850 nm (mode 5). Afin de comparer les mêmes tailles de particules, la concentration mesurée par l'OPS (en bleu) et la concentration en nombre des modes 4 et 5 cumulées (en orange) ont été représentées sur la figure 5.24 (d). La concentration moyenne mesurée par l'OPS ( $28.5 \pm 14.7 \text{ cm}^{-3}$ ) est égale à  $11.7 \pm 8.8$  fois la concentration en nombre des modes 4 et 5 ( $3.7 \pm 2.4 \text{ cm}^{-3}$ ) entre le 20 juin 0000 UTC et le 21 juin 0000 UTC. Pendant cette période, un épisode de poussières désertiques a également été observé sur le site d'Ersa (voir section 3.2). Ces aérosols désertiques sont caractérisés par des tailles dans le mode grossier et contribuent donc à la concentration en nombre mesurée par l'OPS. Une autre explication à cette différence entre la concentration en nombre modélisée et observée est la suivante. La configuration de cette simulation ne prend pas en compte les phénomènes de coagulation, qui vont modifier la distribution de taille des aérosols.

En ce qui concerne la distribution de taille en nombre, on observe sur la figure 5.24 (c) que ce sont les modes 3 et 4 (modes d'accumulation) qui représentent la majeure partie de la concentration en nombre. Ce résultat était attendu car ce sont les particules dans cette gamme de taille qui ont le plus long temps de résidence dans l'atmosphère.

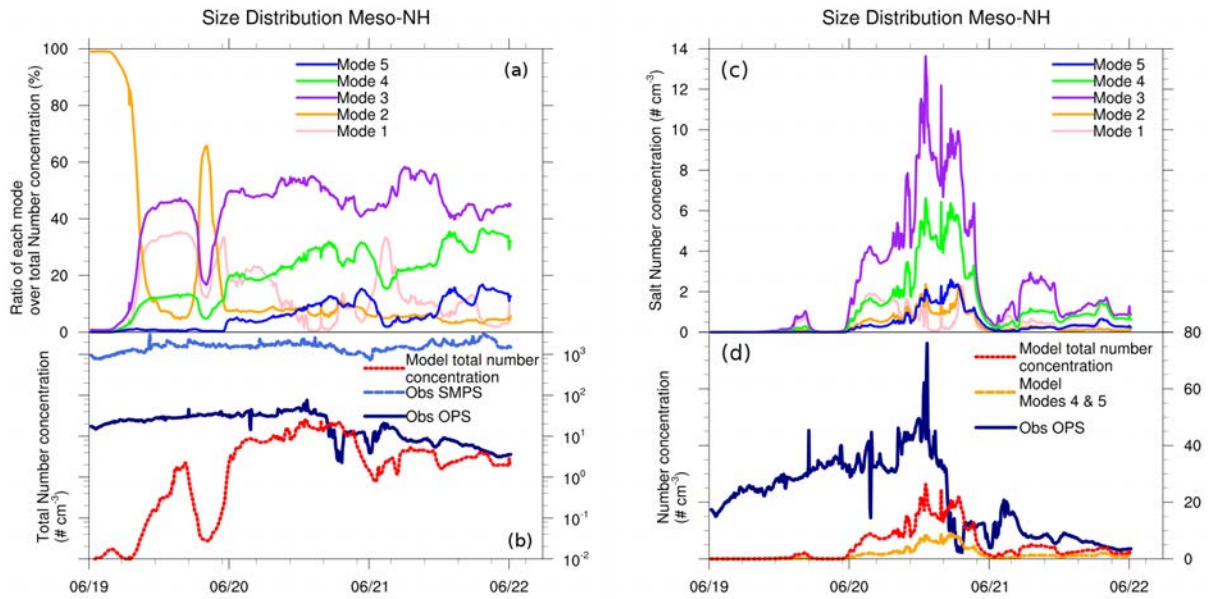


FIGURE 5.24 – (a) Contribution de chaque mode à la concentration en nombre totale pendant l'épisode 1. (b) Concentration en nombre totale modélisée (courbe rouge), et mesurée par l'OPS (courbe bleue marine,  $0.3 < d < 10 \mu\text{m}$ ) et par le SMPS (courbe bleu roi,  $10 < d < 500 \text{ nm}$ ) (échelle log). (c) Concentration en nombre simulée de chaque mode. (d) Concentration en nombre totale (courbe rouge) et cumulée pour les modes 4 et 5 (courbe orange) par le modèle, concentration mesurée par l'OPS (courbe bleue).

### 5.2.2 2<sup>ème</sup> épisode (22 juin - 26 juin)

#### Concentration massique

Comme présenté dans la section 5.1.2, le panache d'aérosols marins impactant la station à Ersa pendant le deuxième épisode est modélisé un peu trop au sud par rapport aux observations. Deux positions supplémentaires ont donc été utilisées. La figure 5.25 présente la concentration en masse modélisée et observée sur les trois sites, du 22 au 26 juin 2013. Les observations sont représentées en trait plein bleu et correspondent à la concentration en masse des aérosols marins calculée à partir des mesures du PILS-IC. En trait pointillé rouge est représentée la concentration en masse totale modélisée. La figure 5.25 (a) correspond à la station de mesure d'Ersa, la figure (b) représente la concentration en mer à l'ouest de la Corse (appelée MER pour la suite de l'analyse) et la figure (c) au sud-ouest de la Corse (appelée SOC). Pour rappel, les deux dernières positions sont présentées sur la figure 5.9. A Ersa, en plus des concentrations en masse issues des mesures du PILS-IC, nous disposons des données des filtres dekati. On remarque que la concordance entre les deux observations à Ersa est très bonne, les concentrations moyennes du PILS et du dekati étant de  $3.21 \pm 1.77$

$\mu\text{g m}^{-3}$  et de  $3.80 \mu\text{g m}^{-3}$  respectivement, entre le 22 et le 26 juin.

Les deux derniers sites se situent dans le panache d'aérosols marins pendant cette période et les concentrations en masse du modèle sont celles calculées au premier niveau au-dessus de la surface, c'est à dire à 10 m.

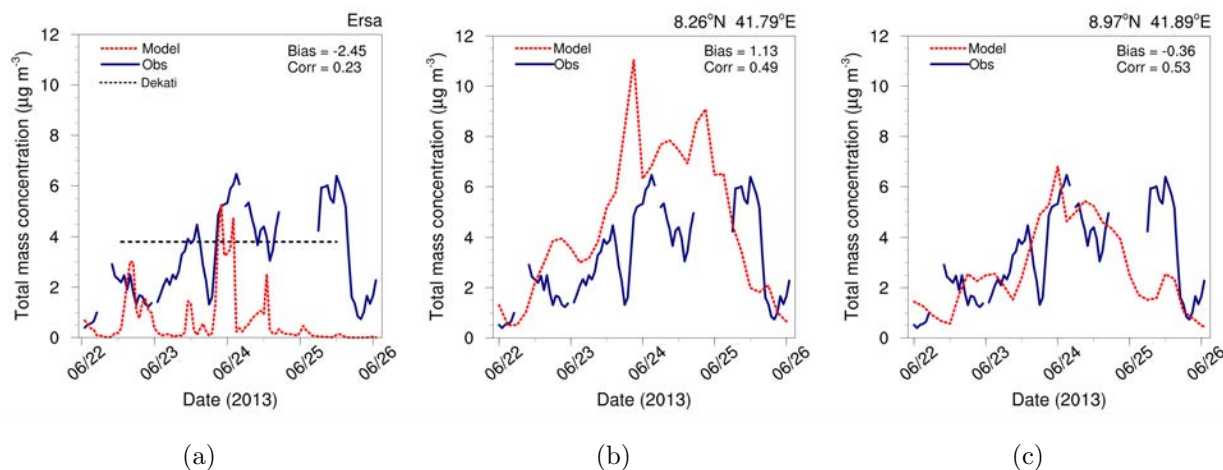


FIGURE 5.25 – Comparaison entre la concentration en masse des aérosols marins observée à Erska et la concentration en masse simulée par le modèle en différents points : (a) Erska, (b) en Mer à l'ouest de la Corse (MER) et (c) au sud-ouest de la Corse (SOC). Sur la figure (a), en plus des mesures du PILS-IC, les mesures sur filtres dekati sont représentées en traits pointillés noirs.

On observe sur la figure 5.25 que les deux positions MER et SOC représentent mieux cet épisode (Tableau 5.5). Ainsi la corrélation passe de 0.23 pour Erska, à 0.49 pour MER et à 0.53 pour SOC. La concentration simulée pour MER surestime les concentrations, comme le met en évidence un biais de  $1.13 \mu\text{m m}^{-3}$ . En revanche, le biais est sensiblement réduit pour SOC, passant de  $-2.45 \mu\text{m m}^{-3}$  (pour Erska) à  $-0.36 \mu\text{m m}^{-3}$ . Cette dernière position est plus représentative de la station d'Erska car elle se situe sur les terres également, et à plus haute altitude (700 m asl) que la position en mer. La position située au SOC est donc retenue pour les analyses présentées dans la suite de l'étude, en plus de la station d'Erska.

	Erska		Mer Ouest corse		SOC	
	Corr	Biais	Corr	Biais	Corr	Biais
1er épisode	0.62	0.32				
2ème épisode	0.23	-2.45	0.49	1.13	0.53	-0.36

TABLE 5.5 – Corrélations et biais entre la concentration en masse mesurée par le PILS-IC à Erska et les concentrations en masse simulées par le modèle à Erska, pour MER et SOC.

### Distribution de taille en masse

Pendant ce deuxième épisode, en plus des mesures de composition chimique du PILS et des mesures de distribution de taille en nombre, des mesures sur filtres (Dekati) ont été réalisées. Ces observations fournissent une information sur la composition chimique ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Na}^+$ ) et sur la taille des particules. Ces informations nous permettent de réaliser une comparaison entre la granulométrie massique observée et simulée. La durée d'échantillonnage des filtres était de 3 jours (22/06/13 12h30 au 25/06/13 11h53). L'impacteur est constitué de 13 niveaux, dont les diamètres aérodynamiques sont présentés dans le tableau 5.6. La concentration en masse des aérosols marins a été calculée selon la formule 5.1.

$$[PMA] = [\text{Cl}^-] + 1.46[\text{Na}^+] \quad (5.1)$$

Etage	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13
Diamètre													
aérodynamique	0.3	0.07	0.12	0.19	0.29	0.45	0.73	1.15	1.86	2.83	4.59	7.59	11.75
( $\mu\text{m}$ )													
Diamètre													
géométrique	0.02	0.05	0.08	0.13	0.20	0.30	0.49	0.78	1.25	1.90	3.09	5.12	7.92
( $\mu\text{m}$ )													

TABLE 5.6 – Diamètres aérodynamiques et géométriques des niveaux de l'impacteur Dekati

Cette distribution en masse correspondant à des aérosols marins uniquement peut être comparée directement aux résultats de modélisation, à la différence des concentrations en nombre observées, qui incluent tous les types de particules.

La figure 5.26 représente la distribution de taille en masse mesurée par les filtres de l'impacteur Dekati et simulée par le modèle à Ersa et SOC. Les résultats du modèle ont été moyennés pour correspondre aux dates d'échantillonnage. La distribution de taille massique du Dekati provient d'un ajustement et correspond aux diamètres d'une distribution lognormale caractérisée par trois modes. Pour cette étude, les diamètres utilisés correspondent au diamètre moyen entre chaque niveau de l'impacteur, après conversion du diamètre aérodynamique en diamètre géométrique (tableau 5.6) et la concentration en masse est issue des concentrations mesurées sur chaque filtre. La méthode utilisée pour cette analyse est détaillée dans Mallet et al. (2011). Le détail des modes est présenté dans le tableau 5.7.

Comme attendu, la distribution de taille en masse à la position du Sud-Ouest de la Corse a une plus grande amplitude que celle à Ersa car sa concentration en masse totale était plus importante pendant cet épisode. Les diamètres et écart-types de chaque mode étant fixes

dans la simulation, seule la concentration impacte la distribution de taille modélisée. La figure 5.26 indique que l'amplitude de la distribution de taille en masse, établie à partir des mesures des filtres Dekati, est comprise entre celles simulées à Ersi et au SOC. Les spectres sont assez similaires, même si les observations montrent une réelle différence entre le mode fin et le mode grossier, alors que la distribution de taille du modèle ne contient pas de mode « ultra-grossier » ( $d_{max} = 6 \mu\text{m}$ ).

De façon similaire à l'épisode 1, on observe sur la figure 5.26 la dominance du mode 5 dans la distribution de taille en masse. Pour les observations, le mode grossier est également dominant mais on retrouve une influence du mode fin ( $d=0.05 \mu\text{m}$ ). Le tableau 5.7 indique que les modes grossier issus des filtres dekati ont un diamètre plus important que celui du modèle. On obtient ainsi deux modes à 1.5 et 1.8  $\mu\text{m}$  pour les observations alors que le mode dominant a un diamètre de 0.85  $\mu\text{m}$  pour le modèle. En ce qui concerne la concentration en masse totale, on retrouve un facteur 5.8 et 1.4 entre les mesures des filtres dekati et la masse modélisée à Ersi et Sud-Ouest de la Corse respectivement. La concentration en masse totale est de 3.80  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour les filtres dekati, de 0.65  $\mu\text{g m}^{-3}$  pour le modèle à Ersi et de 2.76  $\mu\text{g m}^{-3}$  au Sud-Ouest de la Corse sur cette période. Cette différence à Ersi peut s'expliquer par le fait que le modèle voit un épisode plus court que les observations, la période d'intégration du dekati contient des périodes où le modèle ne simule que très peu d'aérosols marins. La concentration en masse totale est plus importante pour le dekati que pour la concentration en masse modélisée à la position au Sud-Ouest de la Corse, cependant, la différence est moins importante (rapport proche de 1) et le biais est sensiblement amélioré.

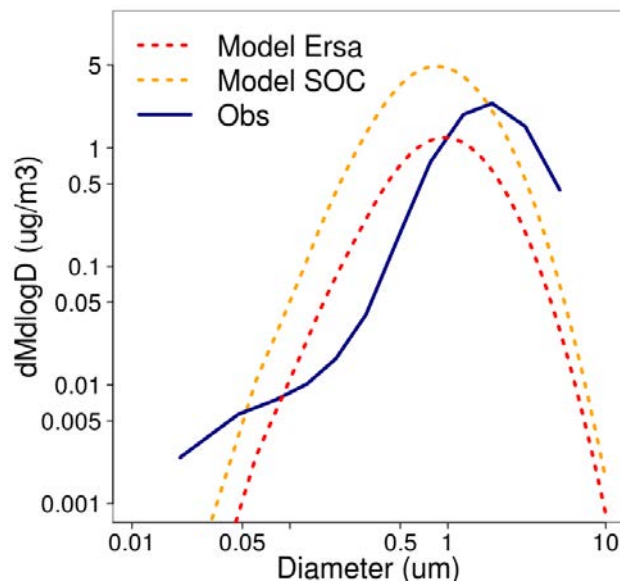


FIGURE 5.26 – Comparaison de la distribution de taille en masse observée par les filtres sur l’impacteur Dekati (courbe bleue) et modélisée à Ersa (courbe rouge) et à la position au SOC (courbe orange). Les résultats du modèles ont été moyennés du 22/06/13 1300 UTC au 25/06/13 1200 UTC pour correspondre à la durée d’échantillonnage des filtres.

Pour conclure sur la distribution de taille en masse pendant la 2ème période (22-26 juin), le modèle représente bien la granulométrie sur la position au Sud-Ouest de la Corse. La distribution de taille en masse est moins bien restituée sur le site d’Ersa mais pour des raisons identifiées qui sont dues à la dynamique globale de la simulation principalement. Comparé à la distribution de taille issue d’un ajustement lognormal des mesures de l’impacteur dekati, le modèle ne considère pas de mode ultra-grossier. Les particules mesurées par le dekati et ayant un diamètre supérieur à  $6 \mu\text{m}$  sont probablement responsables de la différence dans la concentration en masse totale mesurée et modélisée (27%).

	Modèle						Dekati		
	Ersa			SOC					
	M	Diamètre	sigma	M	Diamètre	sigma	M	Diamètre	sigma
Mode 1	$6.2 \cdot 10^{-6}$	0.018	1.37	$3.2 \cdot 10^{-5}$	0.018	1.37			
Mode 2	$4.9 \cdot 10^{-5}$	0.041	1.50	$2.5 \cdot 10^{-4}$	0.041	1.50			
Mode 3	$1.5 \cdot 10^{-3}$	0.09	1.42	$6.2 \cdot 10^{-3}$	0.09	1.42	$4.5 \cdot 10^{-3}$	0.05	2.2
Mode 4	$1.8 \cdot 10^{-2}$	0.23	1.53	$7.2 \cdot 10^{-2}$	0.23	1.53	0.1	1.5	3.0
Mode 5	0.82	0.85	1.85	3.28	0.85	1.85	1.4	1.8	1.7

TABLE 5.7 – Caractéristiques (masse, diamètre modal sec et écart-type) de l'ajustement des modes lognormaux simulés par le modèle à la station d'Ersa et au SOC et mesuré par les filtres Dekati

### Concentration en nombre et contribution des différents modes

La concentration en nombre ainsi que la distribution en taille ont également été étudiées pour la seconde période, de façon similaire à la première. Les figures ne sont pas exposées ici car les résultats sont similaires.

La différence majeure avec l'épisode 1 réside dans la distribution en taille. La contribution du mode 1 est ici plus importante que celle du mode 4, alors que sa concentration pendant l'épisode 1 était négligeable. Cette différence est significative pour des études d'optique car les diamètres des deux modes sont différents ( $0.018 \mu\text{m}$  pour le mode 1 et  $0.230 \mu\text{m}$  pour le mode 4) et ont des propriétés optiques et CCN différentes. En effet, les particules ayant un plus gros diamètre vont avoir plus de facilité à se transformer en gouttelettes d'eau nuageuse (Köhler, 1936) et vont donc avoir un effet radiatif indirect plus important. La concentration en nombre des modes 1 et 4 a été analysées sur les transects Alboran-Ersa, Lion-Ersa et Gascogne-Ersa, de façon similaire à la section 5.1.3. La différence majeure entre ces deux modes réside dans leur zone de transport. Le mode 1 est essentiellement concentré dans la CLM alors que le mode 4 est injecté en troposphère libre. Pour compléter cette étude et pouvoir quantifier la contribution des aérosols émis en Atlantique, une simulation pendant laquelle seules les émissions d'aérosols marins dans l'océan Atlantique seraient possibles devra être réalisée. Ainsi les contributions méditerranéennes et Atlantique pourront être distinguées.

## 5.3 Etudes des propriétés optiques et effet radiatif direct des aérosols marins

### 5.3.1 Caractérisation générale des aérosols marins pendant SAFMED+

Avant de présenter les propriétés optiques et radiatives des aérosols marins pendant la simulation SAFMED+ et en particulier pendant le vol instrumenté, ses caractéristiques en terme de concentrations en masse et en nombre sont abordées. Les figures 5.27 (a), (b) et (c) présentent les concentrations en masse à la surface simulées par MesoNH avant, pendant, et après le vol instrumenté. Ces figures indiquent que la concentration à la surface croît pendant cette journée du 10 juillet, sous l'influence du mistral. Ainsi, le maximum atteint le 10 juillet à 0900 UTC est de  $12.1 \mu\text{g m}^{-3}$  à l'ouest de la Sardaigne alors qu'il est de  $14.2 \mu\text{g m}^{-3}$  à 1517 UTC au large de la Tunisie.

En terme d'ordre de grandeur, la concentration en masse à la surface au coeur du panache est élevée ( $\sim 15 \mu\text{g m}^{-3}$ ) et surpasse les concentrations in-situ observées dans le bassin méditerranéen en site côtiers ou sur bateau, qui sont majoritairement inférieures à  $10 \mu\text{g m}^{-3}$  (Querol et al., 2008; Pey et al., 2009; Koulouri et al., 2008; Piazzola et al., 2012; Sellegri et al., 2001). Elle est cependant inférieure à des concentrations plus importantes observées au Cap Vert pour des conditions de vents forts ( $\sim 40 \mu\text{g m}^{-3}$ ,  $w_s > 10 \text{ m s}^{-1}$  (Fomba et al., 2014)).

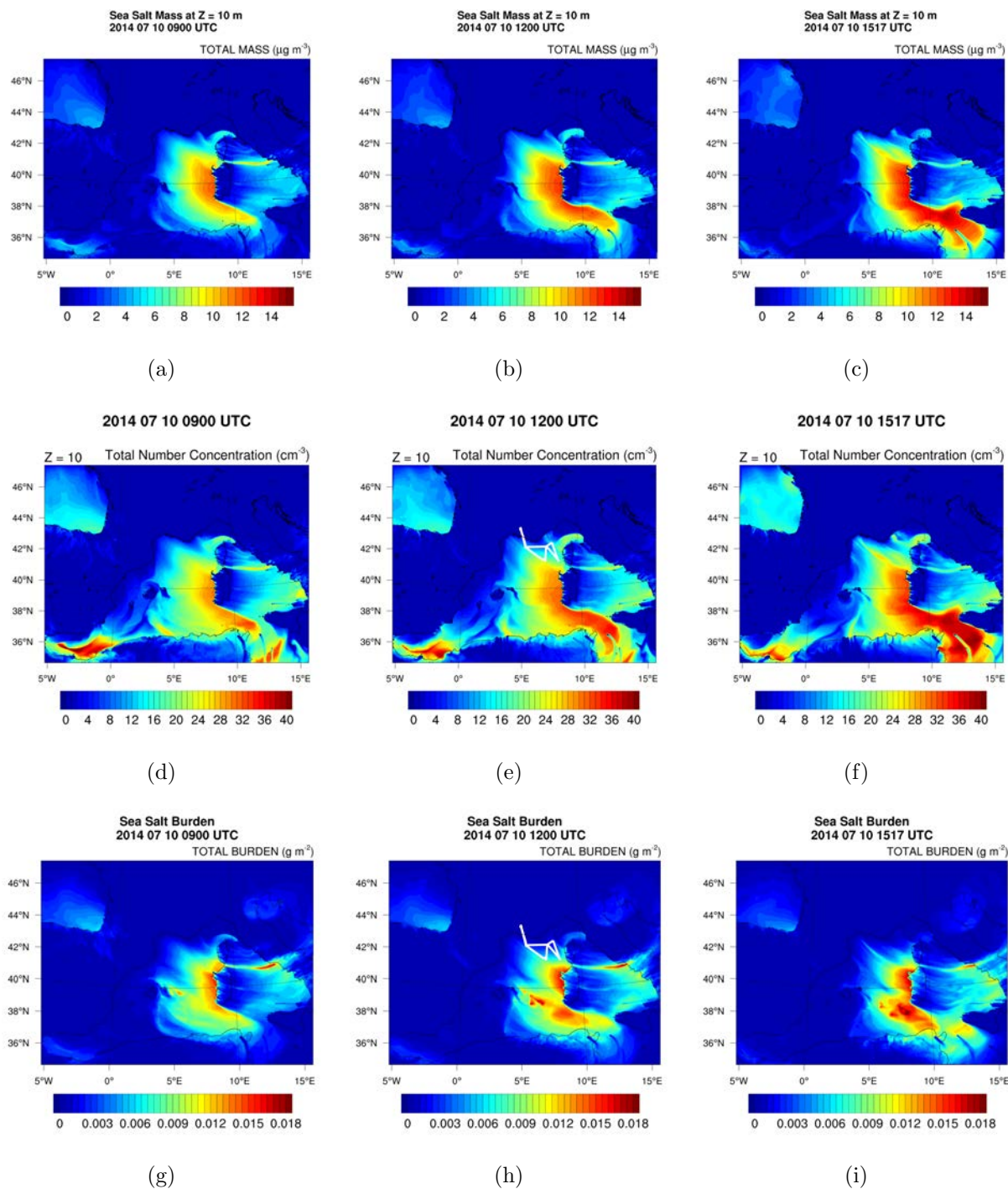


FIGURE 5.27 – Cartes représentant la concentration en masse et en nombre, ainsi que la charge atmosphérique des aérosols marins simulées à la surface le 10 juillet à 0900 UTC (a), (d) et (i), à 1200 UTC (b), (e) et (j) et à 1517 UTC (c), (f) et (k).

On retrouve le même schéma pour la concentration en nombre simulée, représentée sur les figures 5.27 (d), (e) et (f). Ainsi, elle augmente au fil de la journée du 10 juillet, avec un maximum à l'Ouest de la Sardaigne d'environ  $30 \text{ cm}^{-3}$  à 0900 UTC qui passe à plus de

$40 \text{ cm}^{-3}$  à 1517 UTC. La trajectoire de l'avion est représentée sur la figure 5.27 (e) et on remarque qu'elle se situe en bordure du panache d'aérosols marins.

Les concentrations en nombre au coeur du panache ne sont pas très élevées, mais situées dans les ordres de grandeurs des valeurs couramment admises ( $> 150 \text{ cm}^{-3}$  (D O'Dowd et De Leeuw, 2007; Yoon et al., 2007)). Pour un cas de mistral, Piazzola et al. (2012) a observé à Porquerolles une concentration en nombre ( $d < 500 \text{ nm}$ ) de  $320 \text{ cm}^{-3}$ . La concentration en nombre simulée par MesoNH à Porquerolles a été extraite et moyennée pour la journée du 10 juillet. Les quatre premiers modes ont été considérés ici pour comparer la même gamme de taille que les mesures du SMPS. On obtient une valeur moyenne de  $4.5 \pm 0.7 \text{ cm}^{-3}$ , qui est inférieure de deux ordres de grandeur aux mesures de Piazzola et al. (2012)

Ce biais important entre les mesures de Piazzola et al. (2012) et la simulation SAFMED+ peut être attribué aux autres types d'aérosols mesurés par le SMPS ou à la différence intrinsèque entre ces deux épisodes de mistral se déroulant respectivement en 2007 et en 2014. Les fortes valeurs de concentration en nombre obtenues par Piazzola et al. (2012) peuvent également être expliquées par la formation d'aérosols marins secondaires par nucléation dont la concentration peut atteindre quelques milliers de particules  $\text{cm}^{-3}$ .

Pour finir la présentation de la situation, la charge en aérosols marins nous permet d'avoir plus d'informations sur la concentration en particules sur la colonne atmosphérique. Etant donné que l'avion vole à des altitudes supérieures à 300 m, la concentration en masse à la surface n'est pas forcément représentative des concentrations rencontrées dans la CLM. La charge en aérosols marins sur le bassin ouest est comprise entre 6 et  $20 \text{ mg m}^{-2}$  le 10 juillet avec une augmentation au cours de la journée. Ainsi, à 0900 UTC, la charge maximale est de  $17 \text{ mg m}^{-2}$  à l'ouest de la Sardaigne et de  $18 \text{ mg m}^{-2}$  à l'ouest de l'Italie. Elle est de  $20 \text{ mg m}^{-2}$  à 1517 UTC au sud de la Sardaigne. Les valeurs maximales sont situées à l'ouest et au sud-ouest de la Sardaigne. On note avec ces trois paramètres que le panache d'aérosols marins suit bien une direction Nord-Ouest, comme on peut s'y attendre pour un cas de mistral fort. La charge atmosphérique simulée sur cet épisode est plus importante que celle obtenue dans la simulation de Salameh et al. (2007) qui rapportent des valeurs comprises entre 0.1 et  $5 \text{ mg m}^{-2}$ . Cependant, la charge simulée par MesoNH se situe dans la gamme simulée par Kushta et al. (2014) avec le modèle RCFC, comprise entre 10 et  $100 \text{ mg m}^{-2}$  au dessus de l'océan Atlantique et de la mer Méditerranée.

Les figures précédentes illustraient la situation globale pendant la simulation SAFMED+. Nous nous attachons maintenant à présenter les concentrations simulées le long de la trajectoire de l'avion. La figure 5.28 représente à gauche l'altitude de l'avion en fonction de sa trajectoire et au centre et à droite les concentrations en masse et en nombre totales. Cette figure indique tout d'abord que l'avion vole majoritairement à des altitudes assez basses, en dessous des 1000 m. Il réalise 3 profils verticaux, deux au niveau du golfe du Lion, à l'aller

et au retour ainsi qu'un dernier plus au sud-est du golfe du Lion. On remarque également sur cette figure que les concentrations en nombre et en masse simulées sont nulles pendant la phase de décollage et d'atterrissage, notamment au dessus du continent. Sur la trajectoire de l'avion, les concentrations en masse et en nombre ne dépassent pas  $5 \mu\text{g m}^{-3}$  et  $13 \text{ cm}^{-3}$ , respectivement. Comme attendu, les concentrations maximales sont simulées le plus au sud, donc plus proche du panache, mais également pour des altitudes inférieures à 500 m.

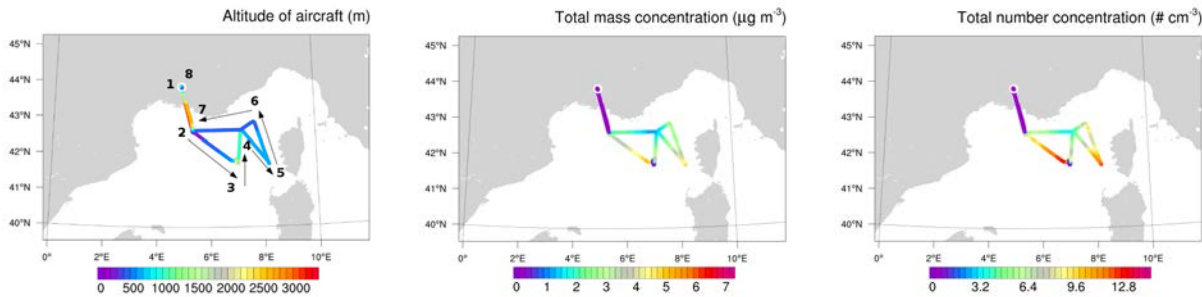


FIGURE 5.28 – Cartes représentant le vol instrumenté. A gauche l'altitude (observations, SAFIRE), au milieu et à droite les concentrations en masse et en nombre totales modélisées, respectivement.

Afin d'évaluer la représentation de ces paramètres pendant ce cas d'étude, nous disposons des observations de concentrations en nombre mesurées par l'instrument GRIMM dans l'avion. Il faut noter qu'il n'y avait pas d'instrumentation à bord de l'avion permettant de quantifier la concentration en masse  $\text{PM}_{10}$  des aérosols marins, cette variable ne peut donc pas être évaluée pendant SAFMED+. Cependant, la concentration en nombre en aérosols (sans distinction de l'espèce chimique) a donc été mesurée par un GRIMM ( $0.25 < d < 32 \mu\text{m}$ , installé sur la veine de prélèvement du CNRM dont le diamètre de coupure était de  $5 \mu\text{m}$ ). La figure 5.29 présente les concentrations observées et simulées pendant le vol. La concentration observée est largement supérieure à celle modélisée. En effet, elle est en moyenne de  $22.48 \pm 18.29 \text{ cm}^{-3}$  pendant le vol alors que celle modélisée est en moyenne de  $4.87 \pm 4.0 \text{ cm}^{-3}$ . Les différents scores sont présentés dans le tableau 5.8. En prenant en compte le diamètre de coupure bas de la veine de prélèvement du GRIMM, la concentration modélisée est encore plus faible ( $1.43 \text{ cm}^{-3}$ ) que la concentration observée. Ceci peut s'expliquer par le fait que le GRIMM mesure toutes les particules atmosphériques et pas uniquement les aérosols marins. De plus, les vents forts rencontrés lors des épisodes de Mistral, dispersent les aérosols situés au dessus du continent, et notamment d'origine anthropique, au large. Les aérosols observés par le GRIMM ont donc probablement en partie une origine anthropique.

Malgré ce biais important, les concentrations modélisées et observées suivent la même tendance temporelle qui est dénotée par une corrélation de 0.63.

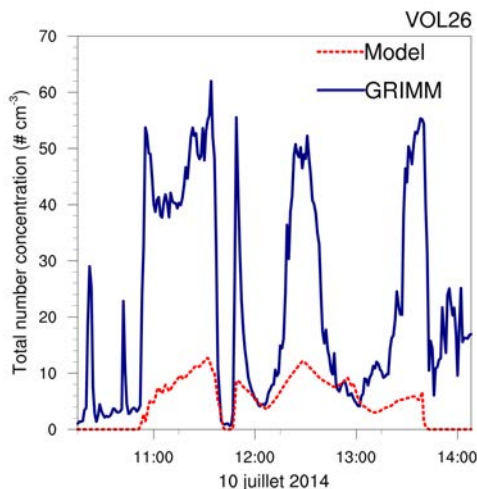


FIGURE 5.29 – Série temporelle du vol instrumenté représentant la concentration en nombre totale modélisée en rouge et la concentration en nombre mesurée par le GRIMM ( $0.25 < d < 32 \mu\text{m}$ ) en bleu.

	Corr	Biais	Mean (Obs)	Mean (Modèle) Concentration totale	Mean (Modèle) Concentration Modes 4 et 5
GRIMM	0.63	-17.61	$22.48 \pm 18.29$	$4.87 \pm 4.0$	1.43

TABLE 5.8 – Comparaison entre la concentration en nombre mesurée par le GRIMM ( $0.25 < d < 32 \mu\text{m}$ ) installé dans l’avion et la concentration en nombre en aérosols marins modélisée.

Dans cette partie, nous avons exposé les caractéristiques du cas d’étude SAFMED+ en ce qui concerne les concentrations en aérosols marins. Pour compléter cette étude, nous présentons à présent les extinctions (dans le visible) simulées pour la période étudiée.

### 5.3.2 Extinction du rayonnement

Le premier paramètre optique évalué pour la simulation SAFMED+ est l’extinction du rayonnement dans le visible, à l’aide des observations réalisées à bord de l’avion par l’instrument CAPS (Cavity Attenuated Phase Shift). Ces mesures in-situ ont été réalisées à la longueur d’onde de 530 nm et à une humidité relative inférieure à 50 %. L’extinction due aux aérosols marins uniquement en sortie du modèle est à 550 nm et estimée à l’humidité relative de la maille considérée. Les figures 5.30 présentent l’extinction modélisée à trois niveaux différents (correspondant à des altitudes de 10 m, 370 m et 1000m) le 10 juillet à 1200 UTC. Tout d’abord, on note que l’extinction du rayonnement simulée sur le domaine Méditerranée est corrélée à la charge en aérosols marins et on retrouve bien visuellement le panache sur

les figures 5.30 (a) (b) et (c). On observe que l'extinction à la surface est plus importante qu'à 370 m. Ainsi, à la surface, l'extinction atteint des valeurs respectives de  $10 \text{ Mm}^{-1}$  et de  $15 \text{ Mm}^{-1}$  à l'ouest et au sud de la Sardaigne. A 1000 m, proche de la hauteur limite de la CLM, l'extinction est moins homogène qu'à la surface et y est plus importante avec des valeurs de  $15 \text{ Mm}^{-1}$  beaucoup plus fréquentes.

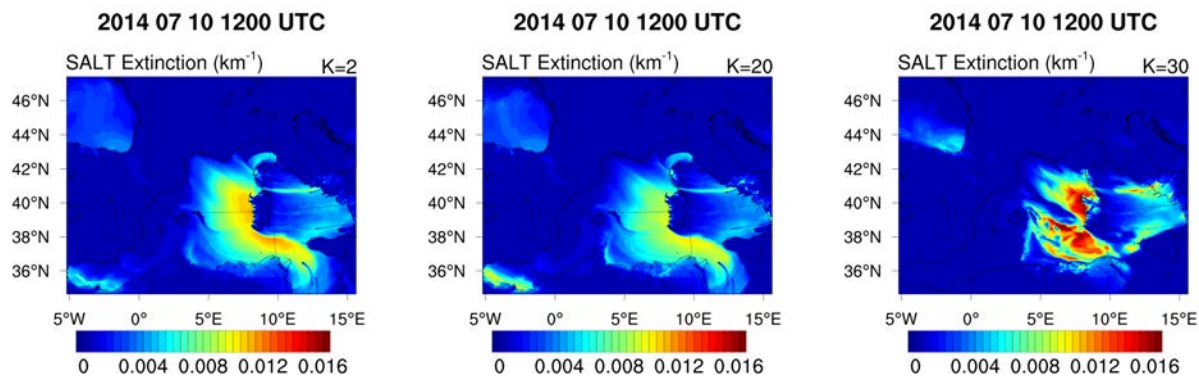


FIGURE 5.30 – Extinction due aux aérosols marins à trois altitudes différentes dans la CLM, 10 m, 370 m et 1000 m, le 10 juillet 2014 à 1200 UTC.

De façon similaire aux analyses de la concentration pendant la simulation ADRIMED, nous avons utilisé ici un transect particulier qui nous aide à mieux appréhender le profil vertical de l'extinction du rayonnement. La figure 5.31 présente le transect « mistral » qui traverse le bassin méditerranéen ouest selon l'axe du vent pendant cet épisode. Ce transect débute à Frioul, passe par Carloforte (Sardaigne) et se termine à Tunis. Ces trois sites, qui correspondent à trois stations AERONET, sont utilisés par la suite pour l'étude de l'AOD et de l'effet radiatif direct (ERD).

La figure 5.32 présente l'extinction du rayonnement à 550 nm, la hauteur de la CLM ainsi que l'humidité relative (RH) pour trois dates, avant le vol ((a) et (d)), pendant le vol ((b) et (e)) et après le vol ((c) et (f)) sur le transect mistral. Pour les trois dates, on observe que l'extinction est maximale ( $\sim 18 \text{ Mm}^{-1}$ ) vers 1000 m, au sommet de la couche limite qui correspond aux valeurs d'humidité relative maximales. En effet, pour des altitudes centrées autour de 1200 m, l'humidité relative (RH) atteint des valeurs proches de 100 %. Ce résultat est lié au facteur de grossissement des aérosols marins qui augmente fortement pour des RH supérieures à 70%. On aperçoit tout de même en parallèle une augmentation de l'extinction en fonction du temps et de la localisation. En effet, l'extinction est plus forte à 1517 UTC entre la Sardaigne et la Tunisie ( $\sim 18 \text{ Mm}^{-1}$ ) qu'à 0900 UTC ( $\sim 12 \text{ Mm}^{-1}$ ).

Comparé à la littérature, Shinozuka et al. (2004) rapportent des valeurs de diffusion (dérivée d'un OPC, à 633 nm) obtenues au niveau de l'océan Austral, comprises entre 70 et  $80 \text{ Mm}^{-1}$  en dessous de 500 m asl. et pour des vitesses de vent comprises entre 8 et  $12 \text{ m s}^{-1}$ . Entre 500 et 1000 m, la diffusion diminue et est comprise entre 20 et  $50 \text{ Mm}^{-1}$  alors qu'elle

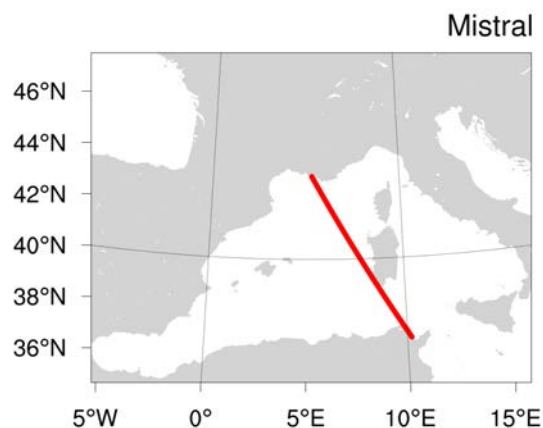


FIGURE 5.31 – Axe du transect "mistral". Ce transect débute à Frioul, passe par Carloforte (Sardaigne) et se termine à Tunis.

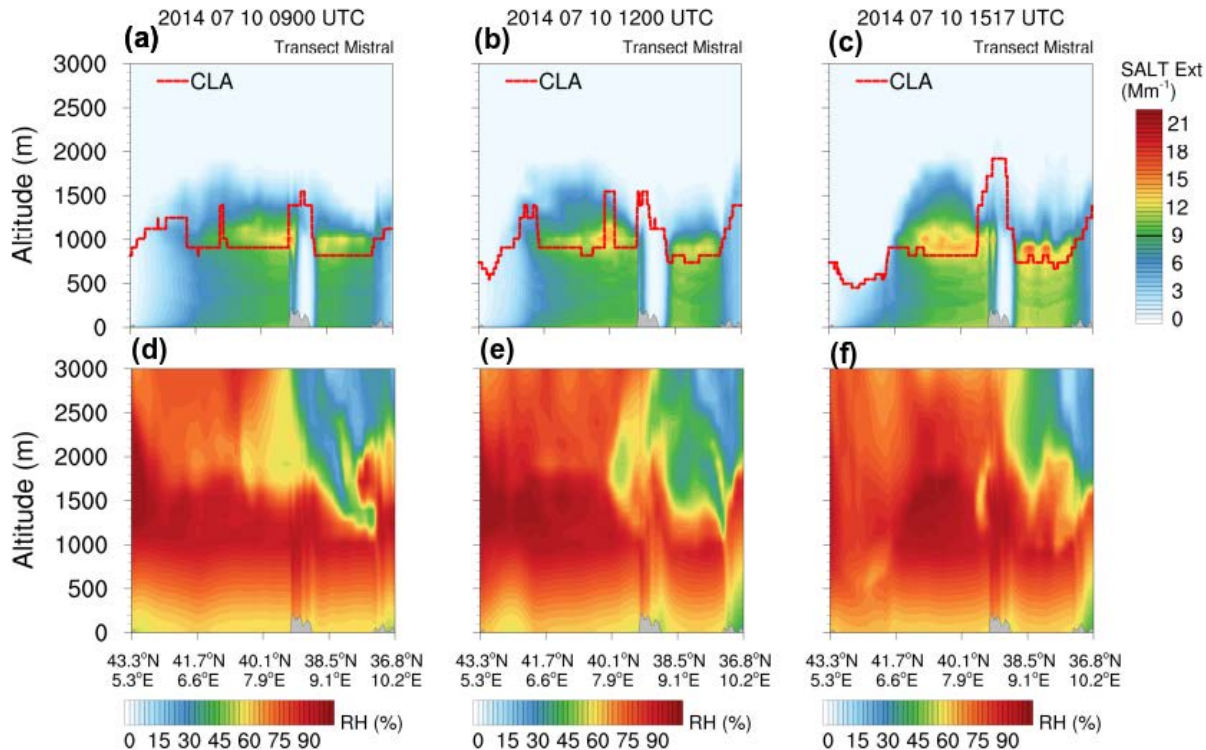


FIGURE 5.32 – Extinction due aux aérosols marins, hauteur de CLA et humidité relative sur l'axe du transect mistral pour trois dates : 10 juillet 2014 0900 UTC ((a) et (d)), 1200 UTC ((b) et (e)) et 1517 UTC ((c) et (f)).

devient quasiment nulle à des altitudes supérieures à 1000 m. Sur le bassin méditerranéen, Lundgren et al. (2013) ont réalisé un cas d'étude avec le modèle régional COSMO-ART (Vogel et al., 2009) à la résolution horizontale de  $0.25^\circ$  et 40 niveaux verticaux. Le mélange interne des aérosols humides composés de chlorure de sodium, sulfate de sodium et d'eau liquide est considéré dans cette étude. Les propriétés optiques des aérosols marins ont été calculées en fonction de leur composition chimique. Pour cette simulation Lundgren et al. (2013) simulent des extinctions dans le sud-ouest de la Méditerranée comprises entre 40 et  $80 \text{ Mm}^{-1}$  dans le premier kilomètre de la CLM, avec un maximum à la surface et pour des vitesses de vent comprises entre 5 et  $7.5 \text{ m s}^{-1}$ . Ainsi, pour des conditions de vent similaires, l'extinction modélisée dans notre cas d'étude, entre la surface et 500 m d'altitude, est inférieure aux valeurs rapportées par Shinozuka et al. (2004) et Lundgren et al. (2013).

Contrairement à Shinozuka et al. (2004) et Lundgren et al. (2013), l'extinction simulée pour SAFMED+ augmente jusqu'au sommet de la couche limite, essentiellement à cause de l'augmentation de RH. Enfin, au dessus de la couche limite, l'extinction décroît très rapidement pour atteindre des valeurs nulles. De plus, Piazzola et al. (2012) indiquent une extinction due à la diffusion des aérosols (à 520 nm) à la station de Porquerolles, après un cas de mistral, inférieure à  $15 \text{ Mm}^{-1}$ . L'extinction moyenne simulée à Porquerolles par MesosNH pour la journée du 10 juillet, pendant l'épisode de mistral, est inférieure d'un ordre de grandeur ( $1.67 \pm 0.10 \text{ Mm}^{-1}$ ). De la même manière que pour la concentration en nombre, il est probable que l'extinction mesurée par Piazzola et al. (2012) soit en partie due à des particules d'origine anthropique. Toutefois, les valeurs obtenues pour la simulation SAFMED sont inférieures aux valeurs rencontrées dans la littérature, à la fois pour des études d'observation et de modélisation, et indiquent possiblement un biais du modèle dans le calcul des propriétés optiques.

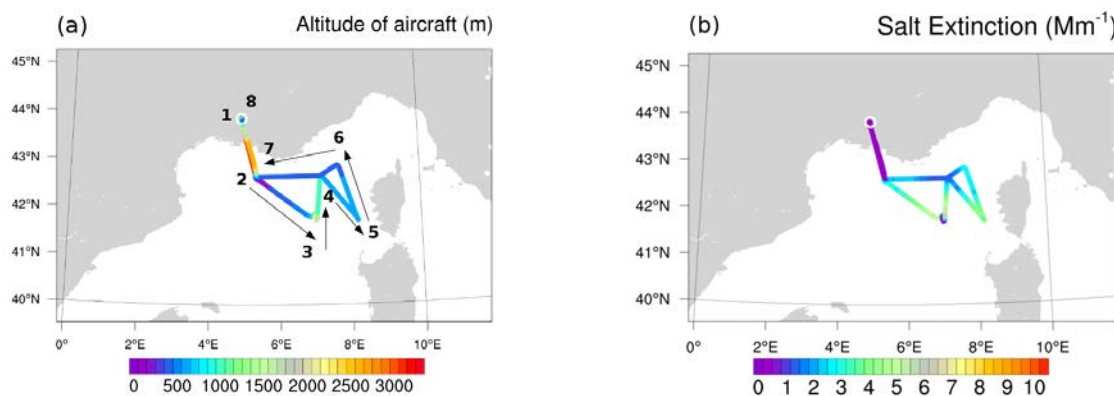


FIGURE 5.33 – (a) Altitude de l'avion pendant le vol, (b) Extinction modélisée à 550 nm due aux aérosols marins primaires

Après avoir présenté les valeurs de l'extinction simulée au niveau régional, nous nous

intéressons aux observations obtenues pendant le vol. Comme mentionné précédemment, l'extinction totale à 530 nm, attribuable à tous les aérosols présents dans l'atmosphère, a été mesurée par l'instrument CAPS dans l'avion. Cette analyse ne permet donc pas une comparaison directe avec l'extinction simulée des aérosols marins uniquement. De plus, cet instrument a effectué ces mesures à une humidité relative faible ( $< 40\%$ ), qui n'est pas représentative de l'humidité relative ambiante. L'extinction étant impactée par la croissance hygroscopique des aérosols marins, deux corrections ont été appliquées aux mesures. Ces corrections correspondent au facteur d'accroissement de la diffusion des aérosols marins en fonction de l'humidité relative. Etant donné que les aérosols marins sont essentiellement diffusifs dans les courtes longueurs d'onde, la diffusion est considérée ici comme égale à l'extinction. Les corrections appliquées sont issues de Hervo (2013) sur les propriétés hygroscopiques des aérosols observés au Puy de Dôme. Ces deux corrections, pour des masses d'air océaniques (O) et océaniques modifiées (OM), s'appuient sur la formule 5.2 :

$$f_{\sigma_{550}} = a_1 e^{a_2 RH} + a_3 e^{a_4 RH} \quad (5.2)$$

Les quatre paramètres  $a_1$  à  $a_4$  sont présentés dans le tableau 5.9.

Masses d'air	$a_1$	$a_2$	$a_3$	$a_4$
Océanique	$9.18 \cdot 10^{-1}$	$6.08 \cdot 10^{-3}$	$3.10 \cdot 10^{-7}$	$1.68 \cdot 10^{-1}$
Océanique modifiée	$9.88 \cdot 10^{-1}$	$5.14 \cdot 10^{-3}$	$8.66 \cdot 10^{-4}$	$8.82 \cdot 10^{-2}$

TABLE 5.9 – Coefficients de la paramétrisation du facteur d'accroissement de la diffusion à 550 nm en fonction de l'humidité relative issus de Hervo (2013).

Les extinctions simulées et observées sont représentées sur la figure 5.34 pendant le vol instrumenté. Sont présentées, en rouge la simulation, en bleu marine les observations (CAPS) sans correction, en bleu roi la correction O et en bleu clair la correction OM. Il faut mentionner ici que les masses d'air océaniques modifiées ont un facteur d'accroissement de la diffusion plus important que les masses d'air océaniques (Holmgren et al., 2014; Freney et al., 2011; Asmi et al., 2013).

Les valeurs moyennes pendant ce vol sont de  $1.89 \pm 1.71 \text{ Mm}^{-1}$ ,  $19.7 \pm 12.4 \text{ Mm}^{-1}$ ,  $29.5 \pm 21.5 \text{ Mm}^{-1}$  et  $37.4 \pm 30.6 \text{ Mm}^{-1}$  pour le modèle, les observations CAPS et les corrections O et OM respectivement.

Les valeurs observées sont beaucoup plus importantes que l'extinction simulée (biais de  $-17.81 \text{ Mm}^{-1}$ ), d'autant plus en appliquant les corrections O et OM (biais respectifs de  $-27.56 \text{ Mm}^{-1}$  et de  $-35.47 \text{ Mm}^{-1}$ ). De la même manière que pour la comparaison avec la littérature au niveau du bassin méditerranéen, les valeurs simulées sont également beaucoup plus faibles que les observations réalisées pendant le vol. Le biais entre le modèle et les observations ne peut pas entièrement être expliqué par la présence d'autres types d'aérosols. En effet, l'ex-

tion simulée due aux aérosols marins est beaucoup plus faible qu'attendue.

Malgré ce biais, on note une bonne cohérence temporelle entre les mesures et la simulation, qui est également améliorée avec les corrections en fonction de RH, illustrée par les corrélations de 0.65, 0.68 et 0.69 pour les mesures sans correction (CAPS), correction O et OM respectivement.

De plus, cinq pics d'extinction sont observés par le CAPS, atteignant des valeurs supérieures à  $50 \text{ Mm}^{-1}$  et supérieures à  $120 \text{ Mm}^{-1}$  pour deux d'entre eux (avec la correction OM). Le modèle représente en effet quelques épisodes avec des concentrations plus importantes qui correspondent à ces pics, mais les valeurs restent très faibles (inférieures à  $10 \text{ Mm}^{-1}$ ). On observe une très forte corrélation entre l'humidité relative et ces extinctions fortes.

L'absence d'observables directement reliées aux aérosols marins limite clairement l'analyse sur la performance du modèle à simuler l'extinction des aérosols utilisés pour étudier leurs effets sur le rayonnement.

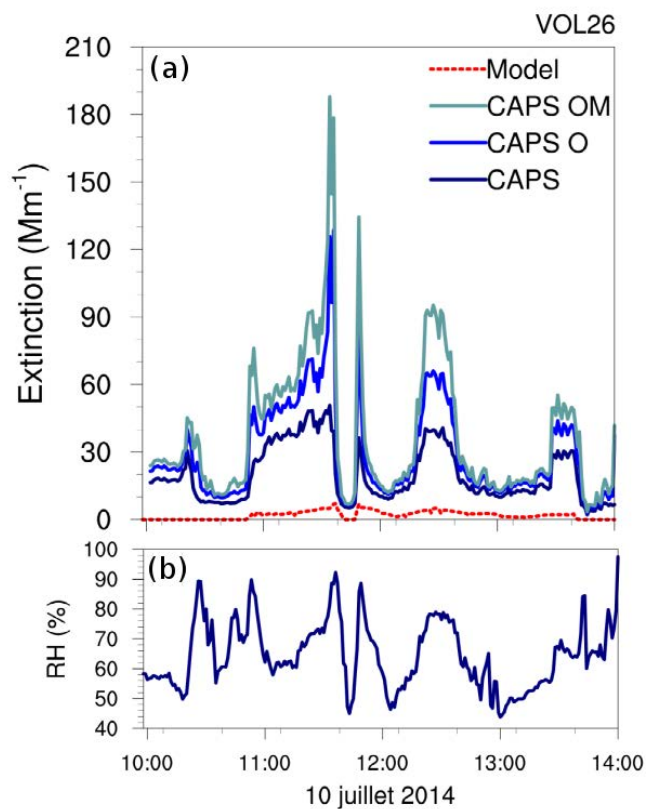


FIGURE 5.34 – (a) Comparaison entre l'extinction des aérosols marins modélisée (courbe rouge), l'extinction totale mesurée par le CAPS et corrigée en fonction de l'humidité relative pour des conditions « océaniques » et « océaniques modifiées ». (b) Humidité relative ambiante pendant le vol.

	CAPS	CAPS O	CAPS OM
Corr	0.65	0.68	0.69
Biais	-17.81	-27.56	-35.47
avg(Obs)	19.74	29.48	37.39
std(Obs)	12.42	21.53	30.58
std(Modèle)	1.71	1.71	1.71

TABLE 5.10 – Scores obtenus entre l’extinction modélisée et observée sans correction de l’humidité relative (CAPS) et avec correction pour des masses d’air océaniques (CAPS O) et océaniques modifiées (CAPS OM).

### 5.3.3 Epaisseur optique atmosphérique

Le second paramètre optique analysé dans cette partie est l’épaisseur optique atmosphérique (AOD) qui est un indicateur de la charge atmosphérique en aérosols. Ce paramètre représente l’extinction du rayonnement sur toute la colonne atmosphérique. Elle est représentée à 550 nm sur le domaine méditerranéen pour la journée du 10 juillet, à 0900 UTC, 1200 UTC et 1517 UTC sur la figure 5.35. On observe tout d’abord que sa valeur croît au fur et à mesure de la journée, comme vu précédemment pour les variables reliées à la concentration en aérosols marins. Ainsi à 0900 UTC, l’AOD est de 0.02 à l’Ouest de la Sardaigne et atteint des valeurs de 0.03 à l’Ouest et au sud de la Sardaigne à 1517 UTC. Ces valeurs ( $< 0.05$ ) sont donc relativement faibles pour ce cas de mistral.

Les AOD simulées sont plus faibles que les valeurs typiques d’AOD rencontrées dans des zones considérées comme « marines propres », c’est-à-dire impactées uniquement par des aérosols marins. Smirnov et al. (2002) indiquent ainsi que la valeur moyenne de l’AOD (à 500 nm) sur cinq site insulaires (océans Pacifique et Atlantique) et pendant 2 à 5 ans de mesure est de 0.07. Dans le bassin Méditerranéen central, Pace et al. (2006) indiquent une valeur moyenne d’AOD de 0.11 à Lampedusa pour des masses d’air catégorisées comme marines entre juillet 2001 et septembre 2003. Ces valeurs sont bien supérieures à celles que l’on obtient lors de la simulation SAFMED+. Cependant, il faut prendre en compte le fait que ces mesures sont impactées par des aérosols autres que d’origine marine, même dans des conditions atmosphériques marines considérées comme propres, y compris pour l’étude de Smirnov et al. (2002).

Une étude réalisée par Mulcahy et al. (2008) à Mace Head pour des conditions atmosphériques marines propres a déterminé une relation entre AOD et vitesse du vent. Ainsi pour des vitesses de vent comprises entre 4 et 18  $\text{m s}^{-1}$ , il y a un ordre de grandeur de différence pour l’AOD (à 500 nm) qui varie respectivement entre 0.03 et 0.38. Ces AOD sont supposées être dues à l’unique contribution des aérosols marins et atteignent des valeurs aussi importantes que celles atteintes par des contributions d’aérosols anthropiques. Dans le bassin Méditer-

ranéen, on ne trouvera pas de conditions atmosphériques marines propres comme à Mace Head (Section 2.1.1). Les valeurs maximales d'AOD que l'on obtient pour ce cas de Mistral fort, avec des vitesses de vent dépassant les  $20 \text{ m s}^{-1}$  sont équivalentes aux valeurs minimales atteintes à Mace Head, pour des vitesses de vent inférieures à  $10 \text{ m s}^{-1}$ .

Afin de pouvoir comparer directement les sorties de simulation à des variables caractérisant uniquement les aérosols marins, nous avons utilisés dans un premier temps les épaisseurs optiques des aérosols marins issues des réanalyses MACC, qui sont utiles ici car directement comparables. Nous avons également utilisé les observations AERUS-GEO (produit disponible sur le site ICARE et basé sur un algorithme développé au CNRM à partir des mesures SEVIRI, représentant l'AOD totale). L'AOD AERUS est cependant disponible à une longueur d'onde de 630 nm. Afin de pouvoir comparer ce produit aux sorties MesoNH, nous avons utilisé le coefficient d'angstrom pour calculer l'AOD à 550 nm, suivant l'équation 5.3, dans laquelle  $\alpha$  est le coefficient d'angstrom,  $\lambda$  et  $\lambda_0$  deux longueurs d'onde différentes et AOD l'épaisseur optique atmosphérique à ces deux longueurs d'onde respectives.

$$AOD(\lambda) = AOD(\lambda_0) \times \left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^{-\alpha} \quad (5.3)$$

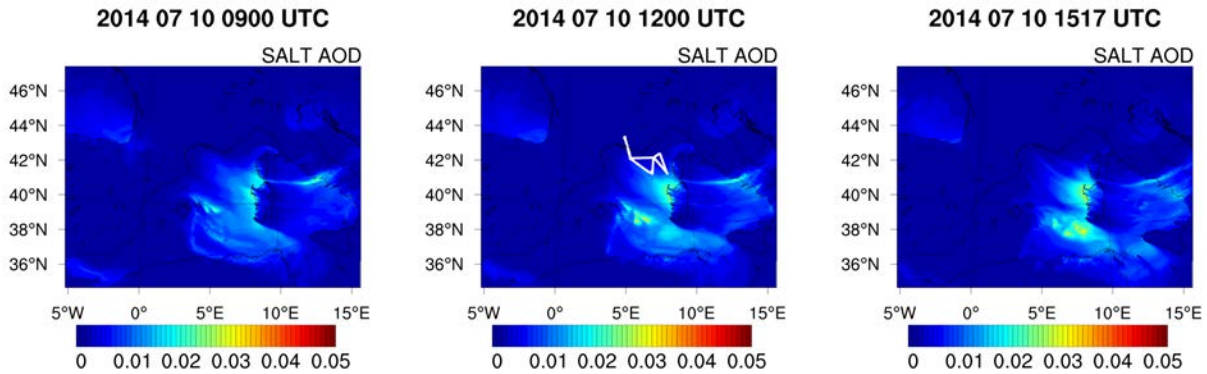


FIGURE 5.35 – Epaisseur optique atmosphérique due aux aérosols marins en début de simulation (08 juillet 1200 UTC et 09 juillet 1200 UTC) et pendant le vol avion (10 juillet 0900 UTC, 10 juillet 1200 UTC, 10 juillet 1500 UTC)

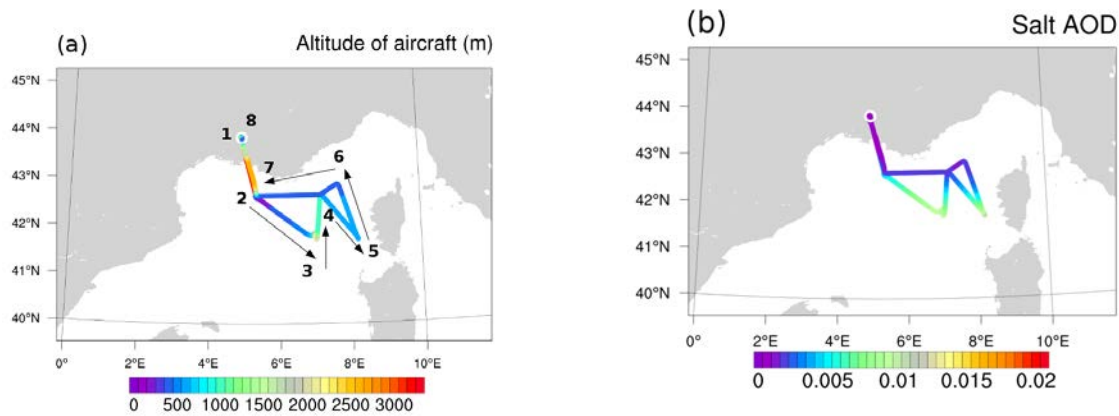


FIGURE 5.36 – (a) Altitude de l’avion pendant le vol, (b) AOD des sels marins

Les réanalyses MACC issues du modèle du centre européen (C-IFS) bénéficient de l’assimilation des observations MODIS mais ont une résolution horizontale de  $1.125^\circ$  alors que le produit AERUS-GEO dispose d’une résolution horizontale de 3 km (au nadir), bien adaptée aux simulations MesoNH présentées ici. Les observations AERUS-GEO sont évidemment limitées par la couverture nuageuse. Pour les réanalyses MACC, les aérosols marins sont représentés par trois bins dont les diamètres limites sont 0.03, 0.5, 5 et  $20\ \mu\text{m}$ . Le schéma d’émission d’aérosols marins est basé sur les paramétrisations de Guelle et al. (2001) et Schulz et al. (2004). Plus d’informations sur les réanalyses MACC sont renseignées dans Cuevas et al. (2015), Morcrette et al. (2009) et Benedetti et al. (2011).

Enfin, les produits MACC et AERUS-GEO correspondent à une moyenne journalière. Ainsi, pour pouvoir les comparer avec les résultats du modèle, les sorties de MesoNH ont été moyennées sur la journée du 10 juillet 2014. L’AOD moyenne pour cette journée, modélisée par MesoNH, est présentée sur la figure 5.37 (a). Sur la figure 5.37 (b), l’AOD due aux aérosols marins extrait des réanalyses MACC est présentée. La différence entre les AOD MACC et MesoNH est représentée sur la figure 5.37 (c) et l’AOD issue du produit AERUS-GEO sur la figure 5.37 (d).

L’AOD simulée par MesoNH est comprise entre 0.01 et jusqu’à 0.025 aux bords et au coeur du panache respectivement. L’impact des aérosols marins sur l’extinction est situé essentiellement au sud et à l’ouest de la Sardaigne. L’AOD atteint également des valeurs atteignant jusqu’à 0.013 sur les côtes Italiennes, et on aperçoit bien l’effet venturi entre le sud de la Corse et le Nord de la Sardaigne. Le panache d’AOD n’est pas homogène sur le bassin méditerranéen et on remarque clairement l’effet du relief et des îles sur sa distribution. L’AOD MACC présente un schéma différent (Fig. 5.37 (b)). Premièrement, les valeurs sont plus homogènes dans le panache et plutôt comprises entre 0.10 et 0.15. Le panache est

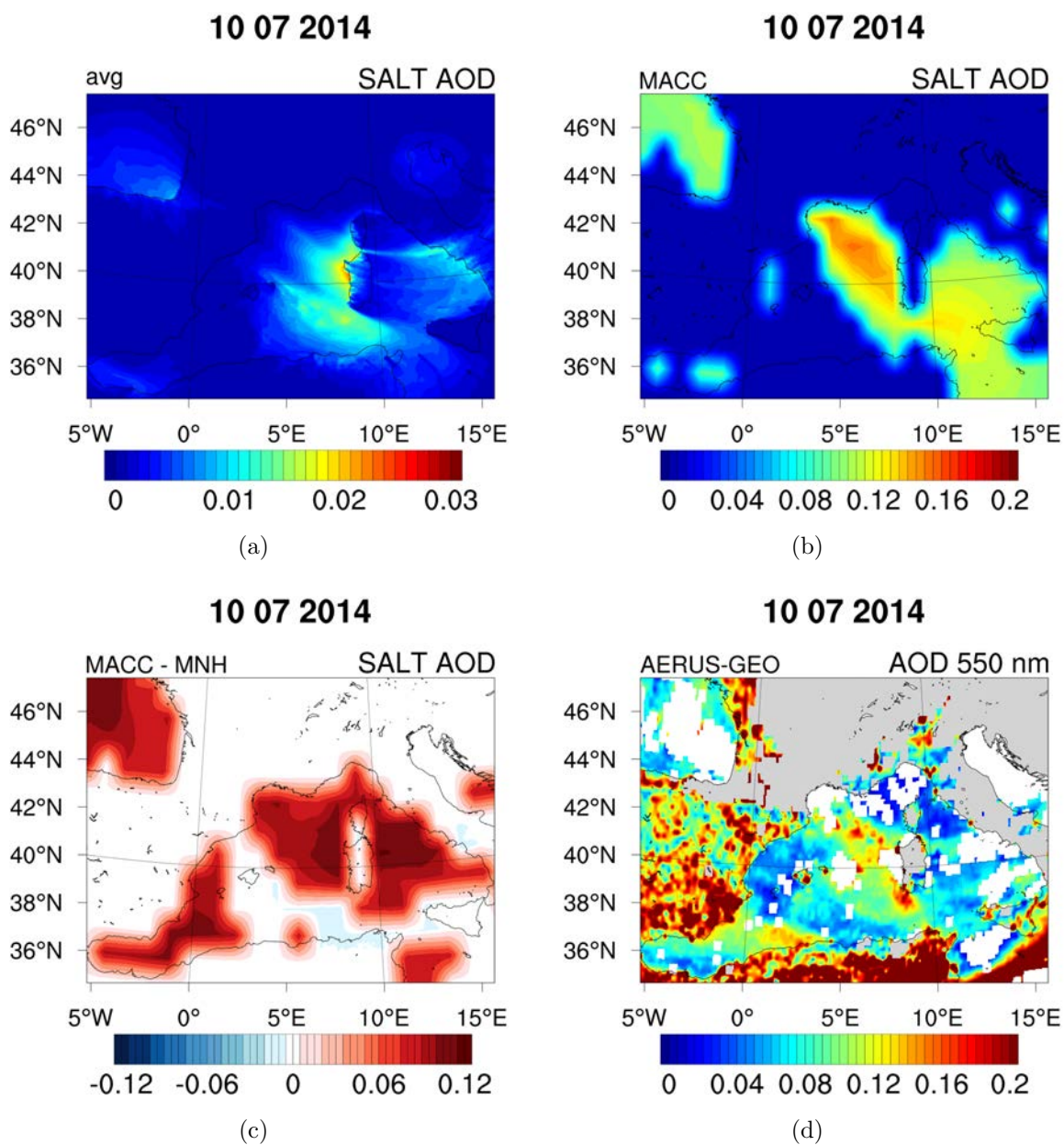


FIGURE 5.37 – AOD due aux aérosols marins pour le 10 juillet 2014 : (a) simulation MesoNH, (b) réanalyses MACC, (c) différence MACC-MNH et (d) AERUS-GEO.

également plus étendu que pour MesoNH. Les valeurs d'AOD les plus importantes se situent sur le trajet du mistral, dans le golfe du Lion et à l'ouest de la Sardaigne mais toute la partie Est du domaine, de l'Est de la Sardaigne à Lampedusa est caractérisée par un AOD d'environ 0.10, alors qu'on s'attendrait à ce que les valeurs soient plus faibles dans les zones qui ne sont pas situées dans l'axe du mistral. L'effet venturi entre la Corse et la Sardaigne n'est pas visible sur cette réanalyse. En plus de ces différences, l'AOD sur tout le domaine est largement inférieure pour MesoNH par rapport à MACC, avec des valeurs moyennes respectives de  $2.0 \cdot 10^{-3} \pm 3.0 \cdot 10^{-3}$  et  $0.033 \pm 0.05$ . La figure 5.37 (c) représentant la différence entre l'AOD MACC et l'AOD MesoNH indique des valeurs essentiellement comprises entre 0.06 et 0.12. Ces différences sont principalement dues à des valeurs beaucoup plus importantes pour MACC ainsi qu'à des disparités dans la position du panache d'aérosols.

En complément de la comparaison entre les AOD dues aux aérosols marins de MesoNH et MACC, les données AERUS (qui ne discriminent pas les aérosols selon leur sources) nous renseignent sur l'étendue spatiale et l'intensité du panache. Ces données sont représentées sur la figure 5.37 (d) où l'on peut apercevoir la couverture nuageuse par les données manquantes. Les AODs très fortes que l'on aperçoit notamment en Espagne ou au Maghreb ne sont pas dues aux aérosols marins, mais probablement à des contributions anthropiques et nous ne nous attarderons pas sur leur analyse. On distingue clairement le même schéma à l'ouest et au sud-ouest de la Sardaigne que pour les sorties MesoNH, que MACC ne simule pas, ainsi que la contribution de l'effet Venturi entre la Corse et la Sardaigne. Les valeurs d'AOD dans ce panache sont comprises entre 0.1 et 0.2 mais étant donné qu'AERUS ne discrimine pas les types d'aérosols, les valeurs les plus fortes ici ne correspondent pas forcément à l'unique contribution des aérosols marins. La couverture nuageuse au niveau du golfe du Lion ne permet pas de conclure sur cette zone, même si les valeurs semblent plus proches des réanalyses MACC. La haute résolution horizontale ( $5 \text{ km} \times 5 \text{ km}$ ) utilisée pour cette simulation MesoNH améliore la représentation du panache par rapport à MACC et globalement, sa représentation spatiale est plus proche des observations AERUS, ce qui nous conforte dans la bonne représentation à fine échelle de la distribution spatiale des aérosols marins avec le nouveau schéma d'émission d'Ovadnevaite et al. (2014).

	MesoNH			MACC			AERUS		
	Moyenne	$\sigma$	max	Moyenne	$\sigma$	max	Moyenne	$\sigma$	max
AOD	0.002	0.003	0.023	0.033	0.05	0.16	0.12	0.07	0.89
aérosols	aérosols marins			aérosols marins			tout aérosols		

TABLE 5.11 – Moyenne, écart-type et valeur maximale d'AOD simulée par le modèle, pour les réanalyses MACC et pour les données AERUS.

Enfin, en plus des réanalyses MACC, nous disposons également des données d'AOD (sans

discrimination par type d'aérosols) issues des radiomètres des stations AERONET. Le niveau 2 des données signifie que seules les mesures en ciel clair sont conservées. Quatre stations ont été choisies pour comparer les AOD modélisées avec les AOD observées. La localisation de ces stations, Frioul, Porquerolles, Cartoforte et Tunis est indiquée sur la figure 5.38. Ces quatre stations sont idéalement placées le long de l'axe du mistral. Les AOD observées sont à 440 nm à la station de Porquerolles (niveau 1.5) et à 500 nm pour les trois autres stations (niveau 1.5 à Carloforte et Tunis et niveau 2 à Frioul). Pour rappel, l'AOD modélisée par MesoNH est à 550 nm. Les moyennes de l'AOD pour la journée du 10 juillet 2014 sont précisées dans le tableau 5.12, pour chaque station.

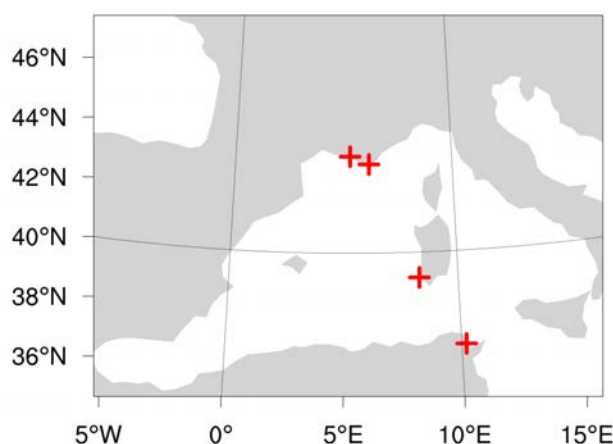


FIGURE 5.38 – Positions des quatre stations AERONET utilisées pour cette étude ; Frioul, Porquerolles, Carloforte et Tunis.

Les figures 5.39 (a) à (d) représentent l'AOD simulée par MesoNH (en rouge), des réanalyses MACC due aux aérosols marins (en vert), des observations in-situ AERONET (en bleu marine) et des observations satellitaires SEVIRI (en violet). En ce qui concerne les observations AERONET, les sites de Frioul (a) et Porquerolles (b), situées près des côtes françaises ont les plus faibles valeurs d'AOD (moyenne de  $0.06 \pm 0.04$  et de  $0.08 \pm 0.02$ , respectivement). On observe d'ailleurs une décroissance de l'AOD au cours de la journée à Porquerolles, avec des valeurs allant de 0.12 à midi à 0.06 en fin d'après-midi. Ces AOD faibles sont caractéristiques des situations de mistral, qui nettoient l'atmosphère des polluants atmosphériques. Sur ces deux sites, les AOD MACC (due aux aérosols marins) et AERUS sont proches des observations AERONET avec des valeurs respectives de 0.05 et 0.08 à Frioul et de 0.06 et 0.08 à Porquerolles.

Comme remarqué précédemment, l'AOD simulée par MesoNH est très faible dans le golfe

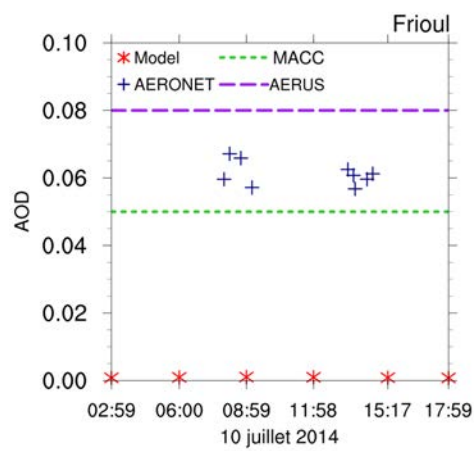
du Lion et donc également sur les sites de Frioul et Porquerolles. En effet, leur valeur est de  $9.0 \cdot 10^{-4} \pm 1.0 \cdot 10^{-4}$  et  $1.2 \cdot 10^{-3} \pm 1.3 \cdot 10^{-4}$  respectivement.

Afin d'expliquer la différence entre les AOD observées aux stations AERONET à Frioul et Porquerolles et les AOD simulées par MesoNH, la distribution de taille en volume, issue des inversions AERONET et représentée sur la figure 5.40 a été étudiée. Sur ces deux sites (Fig. 5.40 (a) et (b)) on identifie la contribution d'un mode fin et d'un mode grossier. Les aérosols marins étant principalement caractérisés par leur mode grossier dans les inversions AERONET, le mode fin correspondrait plutôt à la présence d'aérosols anthropiques. Ce raisonnement est conforté par le fait que ces deux sites soient situés en embouchure de la vallée du Rhône et proches de zones fortement urbanisées. La différence entre les observations AERONET et la simulation MesoNH peut donc en partie s'expliquer par la présence de particules fines d'origine anthropique, prises en compte dans l'AOD observée par les stations AERONET et les observations satellitaires et non modélisées par MesoNH.

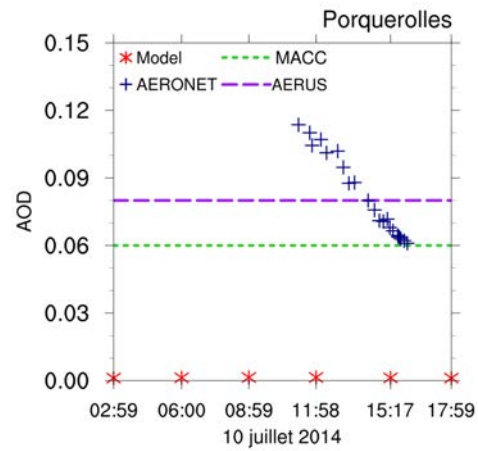
Cependant, la différence d'AOD entre MACC et MesoNH ne peut s'expliquer par la présence d'autres types de particules. Cette différence peut premièrement être due aux fonctions sources utilisées. En effet, le modèle du centre européen utilise le schéma d'émission d'aérosols marins de Schulz et al. (2004) qui ne prend en compte que la vitesse du vent. Pendant cet épisode de mistral, les stations de Frioul et Porquerolles sont soumises à un fetch très court (l'île de Porquerolles est éloignée du continent de 5 km). La paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014) qui prend en compte cette longueur de fetch via la hauteur significative des vagues émet moins d'aérosols marins dans cette zone. On a également constaté dans la section 4.3.3 que le schéma de Schulz et al. (2004) simulait des émissions plus fortes. De ce fait, l'AOD simulée par MesoNH est moindre sur cette zone. Cependant, l'utilisation de schémas d'émissions différents ne peut complètement expliquer ces différences au niveau optique, et comme évoqué précédemment pour l'extinction du rayonnement, il est probable qu'un biais dans le modèle soit responsable de ces faibles valeurs d'AOD.

Les deux autres stations, Carloforte et Tunis, situées au coeur et à la limite sud du panache d'aérosols sont impactées par des AOD plus importantes, par les observations AERONET et AERUS. En revanche, l'AOD MACC est globalement plus faible à Carloforte (0.06) et presque nulle à Tunis ( $5.1 \cdot 10^{-3}$ ). Les valeurs simulées par Meso-NH sont, pour ces deux sites, toujours très faibles ( $8.7 \cdot 10^{-3} \pm 1.6 \cdot 10^{-3}$  et  $2.9 \cdot 10^{-3} \pm 1.1 \cdot 10^{-3}$  respectivement). La moyenne des observations AERONET et AERUS, sur la journée du 10 juillet, est ainsi respectivement de  $0.13 \pm 0.03$  et 0.13 à Carloforte et de  $0.14 \pm 0.04$  et 0.19 à Tunis.

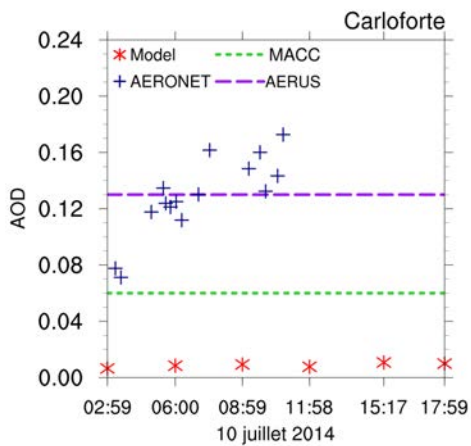
On s'attendrait à des valeurs d'AOD simulées par Meso-NH plus importantes à Carloforte, étant donné sa situation géographique, au coeur du panache d'aérosols, et l'influence de masses d'air maritimes.



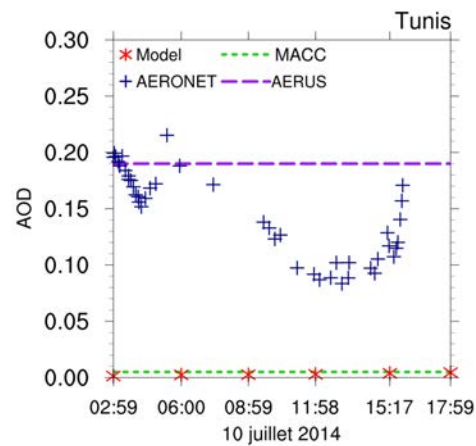
(a)



(b)



(c)



(d)

FIGURE 5.39 – Comparaison de l'AOD (comprenant tous les aérosols) mesurée par le réseau AERONET sur quatre sites (Frioul (a), Porquerolles (b), Carloforte (c) et Tunis (d)) (croix bleues marines) et observée par SEVIRI (AERUS en violet), l'AOD due aux aérosols marins issue des réanalyses MACC (ligne verte) et MesoNH (étoiles rouges) le 10 juillet 2014. L'échelle des valeurs d'AOD est différente sur les quatre figures.

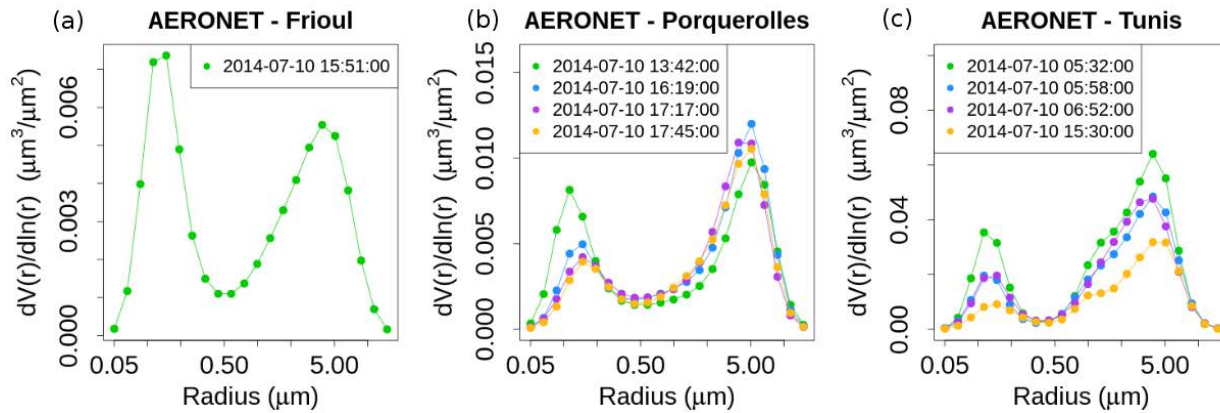


FIGURE 5.40 – Distributions de taille issues des inversions AERONET aux trois stations ; Frioul (level 1.5, (a)), Porquerolles (level 1.5, (b)) et Tunis (level 2, (c)).

	Frioul		Porquerolles		Carloforte		Tunis	
	Moyenne $\sigma$		Moyenne $\sigma$		Moyenne $\sigma$		Moyenne $\sigma$	
MNH	9.0	1.0	1.2	1.3	8.7	1.6	2.9	1.1
	$10^{-4}$	$10^{-4}$	$10^{-3}$	$10^{-4}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$	$10^{-3}$
AERONET	0.06	0.04	0.08	0.02	0.13	0.03	0.14	0.04
MACC	0.05		0.06		0.06		5.1	
							$10^{-3}$	
AERUS- GEO	0.08		0.08		0.13		0.19	

TABLE 5.12 – Moyenne et écart-type des AOD simulées par le modèle (due aux aérosols marins) et observées par les stations AERONET (tous les aérosols) à quatre stations ; Frioul, Porquerolles, Carloforte et Tunis, ainsi que les observations satellitaires SEVIRI.

Ainsi, la comparaison entre les AOD simulées par MesoNH, les réanalyses MACC et les observations AERONET et SEVIRI met en évidence la mauvaise représentation de cette variable par le modèle sur des sites particuliers, et plus spécifiquement à la station de Carloforte, située dans le coeur du panache d'aérosols marins pendant cet épisode de mistral.

Comparé à la littérature, la simulation de Lundgren et al. (2013) sur le bassin méditerranéen indique une AOD (à 550 nm et due aux aérosols marins) le 25 juillet 2007, dont la valeur maximale est de 0.35 (et le 99<sup>me</sup> percentile de 0.13). Ce cas d'étude est différent de la simulation SAFMED+ puisqu'il ne représente pas un cas extrême en Méditerranée et la vitesse de vent maximale rencontrée sur le bassin est d'environ 10 m s<sup>-1</sup>. Ainsi, la valeur moyenne (sur trois jours) d'AOD due aux aérosols marins dans cette même étude est comprise entre 0.01 et 0.04 dans la majorité du bassin méditerranéen, alors que la moyenne obtenue sur le domaine

de SAFMED+ (y compris les terres) par MesoNH est de  $0.002 \pm 0.003$ . La comparaison avec notre cas d'étude pour des vents forts, révèle des différences d'un ordre de grandeur qui, comme expliqué dans le paragraphe précédent, ne peut pas s'expliquer uniquement par le schéma d'émission choisi, mais également par un possible biais du modèle.

### 5.3.4 Effet radiatif direct

Afin d'étudier le forçage radiatif direct des aérosols marins pour la simulation SAFMED+, une deuxième simulation, appelée NOSLT, a été réalisée. Celle-ci est identique à la première, excepté qu'elle ne contient aucun aérosol. Le forçage des aérosols marins est estimé par la différence des flux net à la surface et au sommet de l'atmosphère pour ces deux simulations, dans les courtes (SW) et grandes (LW) longueurs d'ondes et en condition de ciel clair. De même que pour l'AOD, nous disposons pour évaluer nos résultats de l'effet radiatif direct (ERD) SW, à la surface et au sommet de l'atmosphère, des réanalyses MACC qui distinguent la contribution des aérosols marins, ainsi que des inversions AERONET sur des stations locales.

#### Courtes longueurs d'ondes

Pour pouvoir comparer nos résultats avec les réanalyses MACC, les forçages radiatifs directs dans les courtes longueurs d'onde modélisés par MesoNH, à la surface (BOA) et au sommet de l'atmosphère (TOA) ont été moyennés pour la journée du 10 juillet. Pour les simulations MesoNH, le sommet de l'atmosphère a été défini à 12000 m d'altitude.

Les forçages radiatifs SW BOA et TOA moyens modélisés par MesoNH sont présentés sur les figures 5.41 (a) et (d) et indiquent un forçage radiatif d'une amplitude faible à l'échelle du bassin méditerranéen.

On remarque premièrement que l'ERD SW modélisé par MesoNH est majoritairement négatif à la surface et au sommet de l'atmosphère. Bien que les valeurs les plus importantes concordent spatialement avec l'emplacement du panache d'aérosols marins, elles ne représentent pas un forçage significatif. On observe ainsi des valeurs maximales comprises entre  $-0.6$  et  $-1 \text{ W m}^{-2}$ , dans le panache à l'ouest de la Sardaigne, à la surface (BOA) et de  $-0.5$  à  $-0.8 \text{ W m}^{-2}$  au sommet de l'atmosphère (TOA).

Le bassin méditerranéen central, à l'ouest de l'Italie et au nord de la Tunisie ainsi que le golfe de Gascogne sont également caractérisés par un forçage radiatif négatif faible, de l'ordre de  $-0.4 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et au sommet de l'atmosphère.

Les forçages radiatifs les plus intenses sont situés sur l'axe du mistral. De même que pour l'AOD, le golfe du Lion n'est pas impacté pour cette simulation MesoNH.

On observe un forçage SW moyen (sur tout le domaine) de  $-0.06 \pm 0.36 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de  $-0.02 \pm 0.31 \text{ W m}^{-2}$  au sommet de l'atmosphère. Ces valeurs sont plus faibles

que les maxima observés dans le panache d'aérosols marins car on prend en compte des zones où leur concentration est négligeable. Ces valeurs d'ERD SW moyen sur le domaine sont inférieures à celles modélisées par Lundgren et al. (2013). En effet, cette étude indique un ERD SW BOA en ciel clair de  $-0.06 \pm 0.08 \text{ W m}^{-2}$  au dessus des terres et de  $-0.18 \pm 0.13 \text{ W m}^{-2}$  au dessus des surfaces marines.

Le cas d'étude modélisé par Lundgren et al. (2013) ne représente pas un évènement extrême comme le mistral (vitesses de vent comprises entre 5 et  $7.5 \text{ m s}^{-1}$ ), il est donc surprenant que les ERD SW soient plus élevées que lors de la simulation SAFMED+.

Le forçage SW BOA obtenu à partir des réanalyses MACC représenté sur la figure 5.41 (b) est également négatif et atteint des valeurs maximales de  $-12.4 \text{ W m}^{-2}$ . Ce maximum n'est pas localisé dans la même zone que pour MesoNH puisqu'il est, comme pour l'AOD, situé au niveau du golfe du Lion. Le reste du panache est caractérisé par une valeur constante, d'environ  $-6 \text{ W m}^{-2}$ . Au sommet de l'atmosphère (Fig. 5.41 (e)) on note que l'ERD est similaire à celui estimé à la surface.

Les différences entre l'ERD SW BOA et TOA issus des réanalyses MACC et de la simulation MesoNH sont représentées sur les figures 5.41 (c) et (f). Bien que la localisation globale de l'ERD et de ses maxima soit différente pour MACC et MesoNH, les valeurs bien supérieures de MACC les masquent, et on retrouve le même schéma spatial que pour les réanalyses MACC, avec des valeurs comprises entre 0 et  $-12 \text{ W m}^{-2}$ . On observe une large surestimation du forçage en surface dans les réanalyses MACC par rapport à MesoNH dans le golfe du Lion, la mer Tyrrhénienne et dans le bassin central. Les mêmes différences sont observées au TOA.

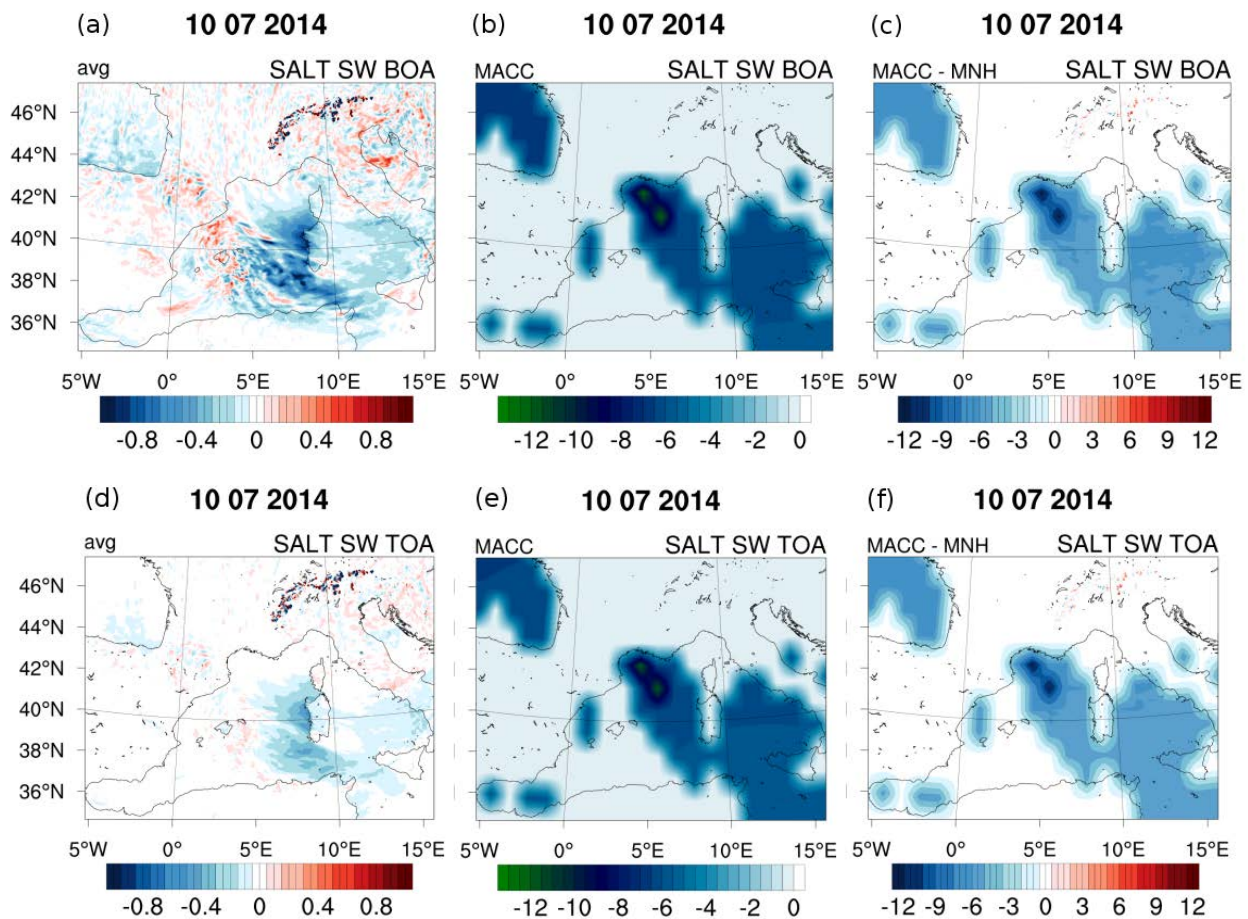


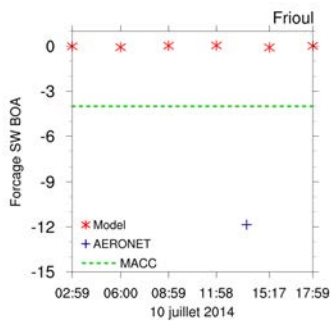
FIGURE 5.41 – Forçage radiatif direct dans les courtes longueurs d’onde dû aux aérosols marins le 10 juillet 2014 à la surface et au sommet de l’atmosphère : (a) et (d) Simulation Mésos-NH (TOA = 12000 m), (b) et (e) Simulation MACC, (c) et (f) Différence entre MACC et MesoNH

Enfin, en parallèle des réanalyses MACC, nous avons également utilisé les données AERONET à l’échelle locale. Les données AERONET de la station de Carloforte, en Sardaigne ne sont pas disponibles le 10 juillet. Nous n’avons donc pas d’information sur le forçage radiatif au cœur du panache et de ce fait, nous avons comparé le forçage SW BOA et TOA aux stations de Frioul, Porquerolles et Tunis situées aux extrémités du panache d’aérosols marins (Fig. 5.38). Il faut mentionner que l’utilisation des données AERONET est plus limitée que les réanalyses MACC car nous n’avons que quelques observations à un temps donné.

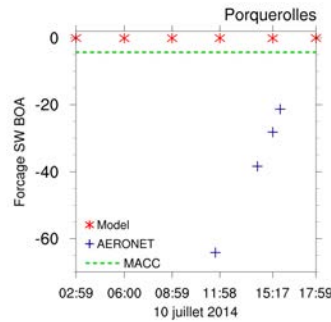
Les forçages radiatifs SW BOA (MesoNH, MACC et AERONET) aux trois stations sont représentés sur la figure 5.42. Comme on l’a vu précédemment lors de la comparaison avec les réanalyses MACC, le forçage radiatif direct SW BOA moyen simulé par MesoNH est négatif mais très faible, respectivement de  $-3.7 \cdot 10^4 \pm 0.05 \text{ W m}^{-2}$  et de  $-0.06 \pm 0.04 \text{ W m}^{-2}$  aux stations de Frioul et Porquerolles. A Tunis, il est plus élevé (moyenne de  $-0.11 \pm 0.43 \text{ W}$

$\text{m}^{-2}$ ). Les inversions AERONET sont également négatives aux différentes stations mais ont des valeurs beaucoup plus importantes. Ainsi le forçage radiatif moyen est de  $-11.9 \text{ W m}^{-2}$  à Frioul,  $-38.0 \pm 18.8 \text{ W m}^{-2}$  à Porquerolles et de  $-21.8 \pm 2.2 \text{ W m}^{-2}$  à Tunis. Ces résultats sont présentés dans le tableau 5.13. Le forçage radiatif dans les réanalyses MACC atteint des valeurs supérieures à celle d'AERONET, sauf pour le site de Porquerolles. Cependant, contrairement à MesoNH et AERONET, l'ERD SW indique des valeurs similaires sur les trois sites, de  $-4 \text{ W m}^{-2}$  et  $-4.3 \text{ W m}^{-2}$  respectivement à Frioul et Porquerolles et de  $-4.5 \text{ W m}^{-2}$  à Tunis.

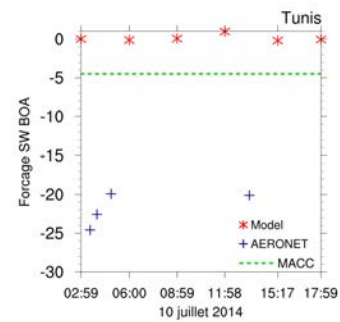
Au sommet de l'atmosphère, les valeurs moyennes simulées par MesoNH sont du même ordre de grandeur qu'à la surface, avec un effet plus important à Tunis. Elles atteignent ainsi  $-0.02 \pm 0.02 \text{ W m}^{-2}$  à Frioul,  $-0.01 \pm 0.04 \text{ W m}^{-2}$  à Porquerolles et  $-0.10 \pm 0.09 \text{ W m}^{-2}$  à Tunis. Pour les réanalyses MACC, les valeurs moyennes obtenues sont supérieures et de  $-3.9 \text{ W m}^{-2}$  à Frioul,  $-4.2 \text{ W m}^{-2}$  à Porquerolles et de  $-4.4 \text{ W m}^{-2}$  à Tunis. Les valeurs obtenues à partir de MesoNH et des réanalyses MACC sont évidemment inférieures à celles inversées par le réseau AERONET qui sont des valeurs instantannées (tableau 5.13).



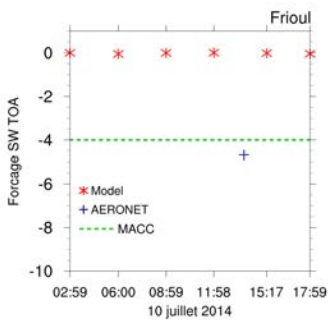
(a)



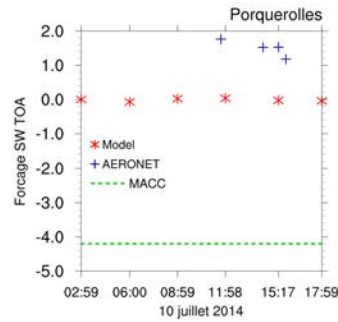
(b)



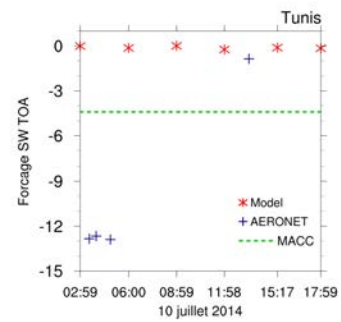
(c)



(d)



(e)



(f)

FIGURE 5.42 – Forçages radiatifs directs SW BOA et TOA observés par les stations AERONET (croix bleues) à Frioul (a) et (d), Porquerolles (b) et (e) et Tunis (c) et (f). Les sorties du modèles sont représentées en rouge et les réanalyses MACC en vert.

			Frioul		Porquerolles		Tunis	
			Moyenne	$\sigma$	Moyenne	$\sigma$	Moyenne	$\sigma$
BOA	MNH		-3.7	0.05	-0.06	0.04	0.11	0.43
			$10^{-3}$					
(W m <sup>-2</sup> )	AERONET	(instantané)	-11.85		-38.03	18.78	-21.80	2.22
	MACC		-4.0		-4.3		-4.5	
TOA	MNH		-0.02	0.02	-0.01	0.04	-0.10	0.09
(W m <sup>-2</sup> )	AERONET	(instantané)	-4.68		1.50	0.24	-9.81	5.97
	MACC		-3.9		-4.2		-4.4	

TABLE 5.13 – Moyenne et écart-type des forçages radiatifs directs à la surface et au sommet de l’atmosphère simulés par MesoNH et issus des réanalyses MACC (du aux aérosols marins) et observés par les stations AERONET (tout aérosols) à trois stations ; Frioul, Porquerolles et Tunis.

### Grandes longueurs d’ondes

Comme mentionné dans l’introduction, le spectre granulométrique des aérosols marins leur donne la capacité d’interagir, contrairement aux aérosols anthropiques ou de feux de biomasse (principalement localisés dans la fraction fine de la granulométrie), avec les ondes courtes et grandes. Nous présentons ici les résultats obtenus dans le LW. Le forçage radiatif direct à la surface et au sommet de l’atmosphère est présenté sur la figure 5.43 et résumé dans le tableau 5.14 pour la journée du 10 juillet. Les réanalyses MACC et les données AERONET ne disposent pas de ces paramètres dans ce domaine spectral.

Contrairement à l’ERD SW, celui exercé dans le spectre LW est positif à la surface, mais de très faible amplitude, et l’effet des aérosols marins n’est pas détecté. On retrouve le même résultat au sommet de l’atmosphère. La figure 5.43 (a) indique des zones où l’ERD peut atteindre des valeurs supérieures à  $+1.5 \text{ W m}^{-2}$ , comme dans le détroit de Gibraltar. Cependant, les valeurs maximales ne correspondent pas au maximum de concentration en aérosols marins sur la colonne atmosphérique ainsi qu’à la surface.

	MesoNH / jour		MACC	
	Moyenne	$\sigma$	Moyenne	$\sigma$
SW BOA (W m <sup>-2</sup> )	-0.06	0.36	-1.90	2.61
SW TOA (W m <sup>-2</sup> )	-0.02	0.31	-1.85	2.53
LW BOA (W m <sup>-2</sup> )	0.01	0.40		
LW TOA (W m <sup>-2</sup> )	-4.23 10 <sup>-5</sup>	0.14		

TABLE 5.14 – Moyenne et écart-type des forçages radiatifs directs à la surface et au sommet de l’atmosphère simulés par le modèle (SW (0090 UTC à 1800 UTC pour MesoNH) et LW) et pour les réanalyses MACC (SW).

Ainsi, la moyenne de l’ERD LW est de  $+0.01 \pm 0.40$  W m<sup>-2</sup> à la surface et de  $-4.23 \cdot 10^{-5} \pm 0.14$  W m<sup>-1</sup> au TOA. De façon similaire, Lundgren et al. (2013) simulent des valeurs d’ERD dans les grandes longueurs d’onde positives à la surface et au sommet de l’atmosphère. Cependant, les valeurs sont plus importantes que pour la simulation SAFMED+, avec, au-dessus des terres des valeurs de  $+0.06 \pm 0.18$  W m<sup>-2</sup> (BOA) et de  $+0.02 \pm 0.04$  W m<sup>-2</sup> (TOA). Au dessus des océans, les valeurs obtenues sont plus importantes et en moyenne de  $+0.16 \pm 0.23$  W m<sup>-2</sup> (BOA) et de  $0.03 \pm 0.04$  W m<sup>-2</sup> (TOA). Alors que Lundgren et al. (2013) rapportent des valeurs du même ordre de grandeur mais de signe opposé à la surface, en SW et LW, les valeurs obtenues pour la simulation SAFMED+ avec MesoNH sont plus importantes dans les SW qu’en LW. Ainsi si les deux effets se compensent dans la simulation de Lundgren et al. (2013), l’effet SW est dominant dans la simulation SAFMED+, bien que son amplitude soit très faible. Ainsi, le refroidissement simulé dans le SW à la surface et au sommet de l’atmosphère est compensé de manière négligeable par un réchauffement dans le LW.

Enfin, il faut noter que l’étude de la distribution en taille a mis en évidence une contribution plus importante du mode d’accumulation (diamètre modal de  $0.23 \mu\text{m}$ ) alors que le mode grossier est faiblement représenté en nombre dans cette simulation. Ceci peut expliquer en partie la différence d’amplitude observée entre les effets radiatifs dans le SW et LW.

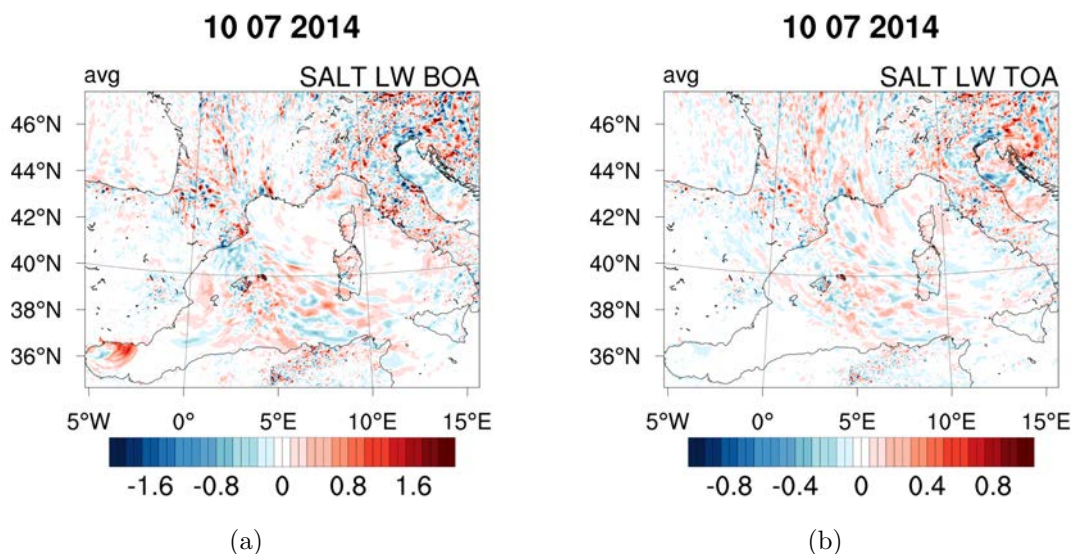


FIGURE 5.43 – ERD LW du aux aérosols marins pour le 10 juillet 2014 : (a) Simulation Méson-NH en BOA et (b) en TOA.

## 5.4 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, l'apport de la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014) pour la représentation des aérosols marins en termes de concentration en masse et en nombre, a tout d'abord été étudié pour le premier cas d'étude. Ce schéma d'émissions d'aérosols marins a été évalué avec les observations in-situ (en particulier à la station d'Ersa, au Cap Corse) obtenues lors de la campagne ChArMEx-ADRIED (Juin-Juillet 2013). En effet, deux périodes pendant lesquelles la station d'Ersa était impactée de manière significative par des aérosols marins primaires inorganiques (19-22 juin et 22-26 juin) ont été analysées avec le modèle. Ces deux périodes sont caractérisées par une dynamique régionale différente. Pendant le premier épisode, la station d'Ersa est impactée par des masses d'air provenant du sud-ouest alors que le deuxième épisode est impacté par des masses d'air provenant de l'ouest. L'analyse des flux d'émissions, des concentrations en masse ainsi que de la charge en aérosols marins a permis de repérer plusieurs origines de ces aérosols impactant Ersa. En ce qui concerne le premier épisode, les aérosols marins ont été émis au niveau régional, avec des influences de l'océan Atlantique (détroit de Gibraltar), de la mer d'Alboran ainsi que de la zone située entre les îles Baléares et la Corse. L'analyse de ces variables sur le plus petit domaine, centré sur le Cap Corse, n'a pas révélé d'influence d'émissions locales. En revanche, pendant le deuxième épisode, la station d'Ersa est impactée à la fois par des émissions régionales et locales. Les origines probables de ces aérosols marins sont le golfe de Gascogne, le golfe du Lion et les abords du Cap Corse.

Ce premier résultat vient soutenir les observations du vieillissement des aérosols marins réa-

lisées à Ersu (Claeys et al., 2016). En effet, l'analyse des données du PILS-IC conjointement à celles de l'ATOFMS a montré que les aérosols marins impactant Ersu était plus âgés du 19 au 22 juin que du 22 au 26 juin. La présence d'aérosols considérés comme « frais » a été détectée pour la deuxième période (22-26 juin), corroborant les flux d'émissions locales. Enfin, la distribution de taille en masse modélisée par le modèle montre une bonne concordance avec les observations. Ainsi si la granulométrie en nombre est dominée par le mode d'accumulation, celle en masse est dominée par le mode grossier.

Dans un second temps, une étude focalisée sur les propriétés optiques et l'ERD des aérosols marins a été réalisée dans le cadre de la campagne de mesure SAFMED+ pour un cas de mistral fort, en exploitant notamment les observations effectuées à bord de l'avion ATR-42. Le forçage radiatif direct dans les courtes et grandes longueurs d'ondes a ensuite été étudié pour ce cas d'étude. Cette simulation est caractérisée par des vents forts et des émissions d'aérosols marins importantes. La charge atmosphérique simulée au coeur du panache atteint des valeurs importantes mais n'est pas traduite par des effets optiques et radiatifs importants. Ainsi, L'AOD moyen sur le domaine méditerranéen est largement inférieure aux réanalyses MACC. En plus des valeurs différant d'un ordre de grandeur, une différence majeure entre l'AOD simulée par MesoNH et les réanalyses MACC se situe dans la représentation du panache. En effet, la résolution des réanalyses est moins fine que celle de MesoNH et cela se traduit par un lissage du panache, contrairement à la simulation MesoNH qui révèle des hétérogénéités spatiales importantes. En ce sens, les résultats de la simulation sont plus proches des observations satellitaires SEVIRI qui représentent également plus de variabilités spatiales. Les observations locales d'AOD (sans distinction des types d'aérosols) issues du réseau AERONET (Frioul, Porquerolles, Carloforte et Tunis) sont plus importantes que les AOD simulées par MesoNH. En effet la contribution des autres sources d'aérosols ne peut pas être négligée. Cependant, l'AOD à Carloforte, située au coeur du panache d'aérosols marins et certainement moins impactée par d'autres sources, n'atteint pas de valeurs significatives dans la simulation MesoNH.

Le forçage radiatif direct dans les courtes longueurs d'ondes (SW) à la surface (BOA) et au sommet de l'atmosphère (TOA) simulé par MesoNH est négatif sur tous le domaine et induit donc un refroidissement de la surface, conformément aux études globales et régionales précédemment menées. Cependant, les valeurs sont, comme vu pour l'AOD et l'extinction, très faible. Ainsi, l'ERD est en moyenne de  $-0.06 \pm 0.36 \text{ W m}^{-2}$  à la surface et de  $-0.02 \pm 0.31 \text{ W m}^{-2}$  au TOA. Le forçage radiatif direct des aérosols marins dépendant de leur charge atmosphérique, on retrouve donc les mêmes schémas de comparaison entre MACC et MesoNH que pour l'AOD. Dans les courtes longueurs d'ondes (SW), les simulations MesoNH représentent donc plus d'hétérogénéités spatiales dépendant de la distribution du panache d'aérosols marins. Cependant, les valeurs rencontrées sont inférieures d'un ordre de grandeur, avec un maximum de  $-1 \text{ W m}^{-2}$  pour la simulation MesoNH et de  $-12 \text{ W m}^{-2}$  les réanalyses

MACC. Ce maximum n'est cependant pas situé dans la même zone. On le retrouve à l'ouest de la Sardaigne dans le premier cas et au niveau du golfe du Lion dans le second cas. Cette différence est majoritairement liée à la représentation de l'émission des aérosols marins. MesoNH n'en émet que très peu dans le golfe du Lion, et la charge atmosphérique est plutôt située plus au sud, au niveau de l'ouest de la Sardaigne. Enfin, les aérosols marins ont également un forçage radiatif direct dans les grandes longueurs d'ondes. Celui-ci est positif et de plus faible amplitude à la surface (moyenne de  $0.01 \pm 0.40 \text{ W m}^{-2}$ ) que dans le SW. Au sommet de l'atmosphère, l'effet des aérosols marins n'est pas visible. A notre connaissance, il n'existe pas de produits permettant d'évaluer ici les simulations. Cependant, ce résultat est inférieur à ceux escomptés, et notamment à l'étude réalisée par Lundgren et al. (2013) sur un domaine similaire. Dans notre étude, l'effet radiatif dans les LW ne compense pas celui exercé dans le SW et l'impact radiatif direct net est négatif au BOA et TOA, ce qui conduit donc à un refroidissement. Ainsi, si les concentrations en nombre et en masse, ainsi que la granulométrie des aérosols marins transportés dans le modèle donnent des résultats satisfaisant, il n'en est pas de même pour les résultats optiques et radiatifs. Des tests supplémentaires concernant le schéma radiatif et son couplage avec les aérosols dans le modèle MesoNH sont donc nécessaires.

# Chapitre 6

## Conclusion et perspectives

### Sommaire

<b>6.1 Conclusion</b>	<b>189</b>
<b>6.2 Perspectives</b>	<b>192</b>

### 6.1 Conclusion

Pendant cette thèse, une utilisation complémentaire d'observations expérimentales et d'un modèle numérique pour l'étude des propriétés physiques, chimiques, optiques et des effets radiatifs directs des aérosols marins a été réalisée. Les simulations effectuées avec le modèle MesoNH, dont le schéma d'émission des aérosols marins a été modifié dans le cadre de ce travail afin de mieux les représenter, ont ainsi permis de compléter les informations issues des mesures in-situ réalisées pendant la campagne ChArMEx-ADRIMED. De manière complémentaire, les observations in-situ ont permis d'évaluer le schéma d'émission des aérosols marins implémenté dans le modèle.

Ce travail est inscrit dans le contexte du projet ChArMEx-ADRIMED et la plupart des observations utilisées ont été réalisées à la station de mesure d'Ersa (Cap Corse) mise en place dans le cadre de ce projet. Cette campagne de mesure qui s'est déroulée pendant l'été 2013 a été marquée par une période particulièrement intéressante, caractérisée par une influence importante des aérosols marins (19-26 juin), ce qui a permis d'étudier leurs principales propriétés. En effet, à l'aide des mesures in-situ, une analyse de la concentration en masse, en nombre, de la distribution de taille (en nombre et en masse), de la composition chimique et des propriétés optiques a été réalisée. En plus de cette période, deux autres influences majeures ont été caractérisées pendant cette campagne de mesure. La première dans le cas d'un évènement de poussières désertiques et la seconde correspondant à des aérosols d'origines anthropiques et issus de combustion de biomasse. En somme, les différentes propriétés

physiques et optiques ainsi que l'impact radiatif direct exercé par les aérosols marins ont pu être comparés à deux autres périodes influencées par d'autres types d'aérosols typiquement rencontrés dans le bassin méditerranéen. Ainsi, les distributions de taille des aérosols marins et des poussières désertiques ont été caractérisées par un mode grossier majeur alors que le mode d'accumulation dominait pour les aérosols anthropiques. Les aérosols marins se distinguaient des deux autres influences par des propriétés optiques presque purement diffusantes. Enfin, l'impact radiatif direct instantané était négatif mais d'amplitude différente selon les trois périodes. Les poussières désertiques et les aérosols anthropiques ayant un impact plus fort à la surface et au sommet de l'atmosphère que les aérosols marins.

L'analyse complémentaires des instruments PILS-IC et ATOFMS a ensuite permis de caractériser le vieillissement des aérosols marins selon trois catégories ; « majoritairement frais », « majoritairement âgés » et « âgés ». Globalement, pendant l'ensemble de la campagne ADRIMED, les aérosols marins observés sur le site d'Ersa ont été catégorisés comme âgés. Ce résultat signifie que le site de mesure, et par extrapolation le bassin ouest méditerranéen, est régulièrement impacté par une composante d'aérosols marins transportés sur de longues distances, indépendamment des conditions météorologiques locales. Plus particulièrement, pendant la période du 19 au 26 juin, on observe une variabilité du vieillissement des aérosols marins impactant le site de mesure. Ce résultat, associé à une étude sur l'origine de ces aérosols intégrant les rétrotrajectoires issues du modèle FLEXPART ainsi que les conditions météorologiques locales, a mis en évidence différentes zones d'émissions pour des conditions météorologiques régionales différentes. Le site d'Ersa est ainsi impacté par des aérosols émis localement par cas de vents forts au niveau du site, par des aérosols émis au niveau régional (golfe du Lion) et par des aérosols transportés sur de plus longues distances (golfe de Gascogne). Cependant, aucune différence significative au niveau de la distribution en taille en nombre des aérosols marins selon leur vieillissement n'a été observée.

L'étude de l'impact radiatif direct des aérosols marins dans le bassin méditerranéen a nécessité l'utilisation du modèle à échelle régionale MesoNH. Ce travail a été réalisé dans un premier temps via l'implémentation d'une nouvelle paramétrisation basée sur le travail d'Ovadnevaite et al. (2014). Cette paramétrisation calculant l'émissions des aérosols marins, en plus de la vitesse du vent (généralement prise en compte comme unique variable), en fonction de l'état de la mer (caractérisée par la hauteur significative des vagues, la température et la salinité de surface de l'eau). Dans un second temps, deux simulations spécifiques ont été réalisées. La première, correspondant à la période de la campagne ChArMEx-ADRIMED (du 12 au 27 juin 2013), a notamment permis d'étudier les émissions et le transport des aérosols marins sur tout le bassin méditerranéen. La comparaison de la simulation avec, d'une part les observations météorologiques des bouées situées dans les golfes de Gascogne et du Lion ainsi qu'au niveau de la côte d'Azur et d'autre part les observations météorologiques effectuées sur le site d'Ersa, a montré que le modèle représentait correctement ces variables.

Un biais a cependant été observé au niveau du site de mesure, la représentation d'un front localisé au nord de la Corse étant simulé trop au sud par le modèle. Ce biais a un impact par la suite sur la représentation des concentrations en masse simulées au niveau du site de mesure.

En parallèle, une analyse sur l'origine des aérosols observés à Ersa a permis de compléter les informations obtenues avec les mesures in-situ. Ainsi, les émissions locales, correspondant aux aérosols catégorisés comme « majoritairement frais » ont été clairement identifiées avec le modèle. De même l'origine régionale (golfe du Lion) d'une partie des aérosols impactant Ersa a été confirmée. Enfin, l'observation d'aérosols émis au niveau du golfe de Gascogne, dans l'océan Atlantique et correspondant à la catégorie « âgés » a été identifiée. Les propriétés physiques des aérosols marins ont également pu être comparées avec les observations, notamment en ce qui concerne la concentration en masse et la distribution en taille (nombre et masse). La concentration en masse totale simulée à la surface est bien représentée par le modèle. Plus spécifiquement, les résultats indiquent un bon accord entre la distribution de taille en masse simulée par le modèle et les mesures sur filtres moyennés sur une période de 3 jours. Ainsi, même si cette simulation n'a été réalisée en n'utilisant qu'un seul moment de la distribution en taille log-normale (rayons et écarts-types des modes lognormaux fixes), la distribution de taille est correctement représentée.

Enfin, les propriétés optiques et les effets radiatifs (SW et LW) des aérosols marins ont ensuite été étudiés avec ce schéma d'émission pour des conditions météorologiques caractéristiques d'un cas de mistral/tramontane. En effet, en juillet 2014, un cas de mistral fort, avec des vitesses de vent à la surface supérieures à  $20 \text{ m s}^{-1}$ , a été identifié et un vol instrumenté réalisé dans le cadre de la campagne SAFMED+ a documenté les propriétés optiques de ces aérosols.

La comparaison de l'extinction simulée (à 550 nm) avec les observations (à 530 nm) réalisées lors du vol instrumenté montre une bonne corrélation temporelle mais une amplitude beaucoup plus faible pour la simulation. Néanmoins, une sous-estimation pourrait provenir de différents facteurs liés à l'émission, au calcul des propriétés optiques et notamment à leur sensibilité à l'humidité relative. L'absence de mesures optiques directement liées aux aérosols marins (intégrant les différentes espèces particulières) peut également expliquer une partie du biais négatif observé, bien qu'un problème inhérent au modèle soit soupçonné. En terme d'épaisseur optique, les résultats sont similaires à ceux de l'extinction, avec des valeurs beaucoup plus faibles que celles couramment rencontrées dans la littérature. On remarque toutefois la bonne capacité de MesoNH à reproduire les structures de fines-échelles, absentes dans les réanalyses MACC. Cette remarque met en avant la valeur ajoutée de l'utilisation de la haute résolution. Un des résultats important également concerne les différences observées près des côtes entre les deux systèmes de modélisation dans le cas de flux off-shore, certainement due à la prise en compte de l'état de surface de la mer dans MesoNH.

Enfin, le forçage radiatif direct dû aux aérosols marins dans les courtes et grandes lon-

guez d'ondes, à la surface et au sommet de l'atmosphère a été étudié. L'ERD SW à la surface et au sommet de l'atmosphère est négatif sur tout le domaine, induisant un refroidissement à la surface. L'amplitude de l'ERD est cependant faible et inférieure d'un ordre de grandeur par rapport aux réanalyses MACC. La comparaison entre MACC et MesoNH révèle également des disparités spatiales, avec des hétérogénéités plus importantes simulées par MesoNH et probablement dues à sa résolution horizontale plus fine. Enfin, dans les grandes longueurs d'ondes, les aérosols marins ont un effet opposé et de moindre amplitude à la surface, alors que leur impact est négligeable au sommet de l'atmosphère. En effet, à la surface, l'effet radiatif direct moyen est positif. Cependant, il ne contre-balance pas leur effet dans les SW et l'impact radiatif net des aérosols marins est donc négatif.

## 6.2 Perspectives

Plusieurs perspectives découlent de ce travail, certaines directement liées à la poursuite des études en cours, d'autres plus prospectives, notamment sur les améliorations possibles à apporter à la modélisation des aérosols marins avec le modèle MesoNH.

Avant tout, on a remarqué lors de la simulation du cas d'étude ADRIMED qu'un biais sur la représentation dynamique au nord de la Corse par le modèle décalait le panache d'aérosols trop au sud par rapport aux observations. Relancer la simulation ADRIMED avec une meilleure résolution horizontale sur le Golfe du Lion et au nord de la Corse pourrait permettre au modèle de mieux reproduire la situation météorologique, et ainsi de ne pas rater en partie l'épisode d'aérosols marins observé à Ersu. Concernant ADRIMED, il convient également d'étendre les comparaisons entre observations et modélisations sur d'autres sites de mesures. Même si des comparaisons ont été effectuées sur les sites de Barcelone et Marseille, il faudrait maintenant utiliser les observations réalisées à la station de Lampedusa. Ce site a été instrumentée pendant la campagne ADRIMED, notamment pour mesurer la concentration et la granulométrie en masse par classe de taille des aérosols.

Ensuite, des données de surface ont essentiellement été utilisées lors de ce travail. Une étude importante reste à réaliser pour intégrer les observations aéroportées (distribution de taille, extinction et diffusion des aérosols, mesures sur filtres) et les observations lidars pour analyser plus en détail la capacité du modèle à reproduire la structure verticale des aérosols marins. Même si les systèmes lidars mis en place sur différentes stations pendant ADRIMED ne permettent pas de dissocier la contribution des sels marins, ils pourraient nous fournir des informations pertinentes sur la répartition verticale des aérosols. Toujours dans ce cadre, les données du lidar Caliop seraient également intéressantes à exploiter. Un travail d'utilisation des observations du F-20 et du lidar LNG embarqué pendant ADRIMED serait également à réaliser. Cette perspective de travail sur la structure verticale modélisée vaut également pour la simulation SAFMED+.

Concernant les sources et le transport des aérosols marins. Il serait également intéressant de relancer la simulation ADRIMED en annihilant les émissions d'aérosols marins sur la mer Méditerranée, afin de ne simuler que celles provenant de l'océan Atlantique. La différence entre les deux simulations nous permettrait de quantifier les aérosols marins transportés sur de longues distances dans le bassin méditerranéen. Pour ce cas d'étude, ce résultat pourra être mis en parallèle avec l'état de vieillissement défini dans l'analyse de Claeys et al. (2016). La simulation numérique permettra de renseigner le temps de transport de ces aérosols et de pouvoir mieux quantifier leur vieillissement. De plus, ce cas d'étude pourra être simulé à 2 ou 3 moments, i.e en laissant évoluer les paramètres  $R$  et  $\sigma$  de la distribution granulométrique des aérosols marins. Cela permettrait d'évaluer l'évolution de la distribution de taille en fonction du transport.

Toujours concernant la modélisation, l'implémentation de la nouvelle paramétrisation présentée dans le cadre de ce travail et permettant de prendre en compte l'état de surface de la mer notamment, ouvre des perspectives intéressantes. En effet, comme souligné dans les résultats, une étude plus approfondie des émissions d'aérosols marins sur les zones côtières en situation de mistral reste à réaliser pour la simulation SAFMED+. A moyen terme, l'impact de l'état de la mer pourrait également être étudié en réalisant une seconde simulation pour un cas de flux de Sud avec des mers plus développées. Des cas observés pendant les campagnes HyMEx pourraient correspondre à des situations intéressantes.

La prise en compte de la température de surface de la mer (SST) permettrait également de tester la sensibilité des émissions à cette variable de surface. Dans ce cadre, le cas de la campagne SAFMED+ est très intéressant, notamment pour tester l'impact de la diminution forte de la température de surface observé lors des cas de mistraux sur les émissions. Ce type d'étude pourrait être réalisée en effectuant des simulations en mode forcé (déjà réalisé dans le cadre de ce travail) puis en mode couplé. Un travail est en cours avec le laboratoire LaCY sur cette thématique.

En ce qui concerne les effets optiques et radiatifs des aérosols marins, une investigation du schéma radiatif ainsi que son couplage avec le modèle MesoNH et le schéma ORILAM est en cours, afin de déterminer s'il y a bien présence d'un biais lors de leur calcul. Afin de compléter cette étude focalisée sur l'étude de l'effet radiatif direct des aérosols marins, il faudrait quantifier également le forçage radiatif indirect. Pour cela, la concentration des aérosols marins estimée à partir de la nouvelle paramétrisation pourrait être prise en compte dans le schéma de microphysique nuageuse LIMA de MesoNH (travail en cours au LaCY). Les cas observés pendant ADRIMED et SAFMED+ n'étant certainement pas de bons candidats (ciels clairs principalement), il faudra identifier des situations ou zones pertinentes pour étudier les interactions entre aérosols marins et nuages. Le contexte de campagnes expérimentales possibles à l'Est du bassin Méditerranéen, focalisées sur les interactions « aérosols-nuages », constituera certainement un cadre propice.

Actuellement et comme présenté dans ce manuscrit, les aérosols marins pris en compte

dans MesoNH sont considérés comme étant uniquement composés de NaCl. Or, de nombreuses études ont montré que la fraction organique des aérosols marins n'était pas négligeable et pouvait même constituer la majeure partie de la masse des particules submicroniques (Blanchard, 1964; Hoffman et Duce, 1976; Sciare et al., 2009). Ce résultat étant particulièrement marqué dans le cas de masses d'air reliées à des zones de forte activité biologique (O'Dowd et al., 2004; Rinaldi et al., 2010; Ovadnevaite et al., 2011). Plusieurs études ont montré que la prise en compte des organiques pour l'étude de l'impact radiatif des aérosols marins modifiaient leur propriétés, notamment en ce qui concerne l'extinction du rayonnement et leur capacité à agir en tant que CCN (O'Dowd et al., 2004; Vaishya et al., 2013; Roelofs, 2008). Dans ce cadre, des paramétrisations ont été proposées, basées essentiellement sur la concentration en chlorophylle *a*, comme celle élaborée par Rinaldi et al. (2013). Celles-ci pourraient donc être implémentées et testées pour des cas d'études pertinents associées à des productions phytoplanctoniques fortes en Méditerranée ou sur d'autres régions (site de Mace Head par exemple).

Pendant cette thèse, le modèle a utilisé les réanalyses du centre européen pour représenter la hauteur significative des vagues. Le couplage du modèle MesoNH avec le modèle océanique NémO et le modèle de vague WW3 (WaveWatch III), en cours permettrait de modéliser de façon plus réaliste les émissions des aérosols marins. Cependant, même si les hauteurs de vagues ne sont pour l'instant pas pronostiquées, la comparaison avec les observations réalisées sur les bouées du réseau Météo-France pour ce travail montre une très bonne corrélation. Il serait intéressant de voir si les réanalyses ne proposent pas une solution déjà satisfaisante pour prendre en compte ces processus. Enfin, le schéma d'aérosols marins basé sur la paramétrisation d'Ovadnevaite et al. (2014) est utilisé également pour l'étude des cyclones. Ce sujet fait actuellement l'objet de recherche au LaCY.

# Acronymes

**ACP** : Atmospheric Chemistry and Physics

**ADRMED** : Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean region

**AERONET** : AErosol RObotic NETwork

**AERUS-GEO** : Aerosol and surface albedo Retrieval Using a directional Splitting method-application to GEOstationary data

**AOD** : Atmospheric Optical Depth

**AOS** : Aérosols organiques secondaires

**BOA** : Bottom of Atmosphere

**C-IFS** : Chemistry in the Integrated Forecasting System

**CALIOP** : Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization

**CAPITOUL** : Canopy and Aerosol Particle Interactions in the Toulouse Urban Layer

**CAPS** : Cavity Attenuated Phase Shift

**CEPMET** : Centre Européen de Prévision à Moyen Terme

**ChArMEx** : Chemistry-Aerosol Mediterranean eXperiment

**CLM** : Couche Limite Marine

**CNRM** : Centre National de Recherche Météorologique

**DRF** : Direct Radiatif Forcing

**ECMWF** : European Center for Medium-Range Weather Forecasts

**EMEP** : European Monitoring and Evaluation Programme

**ERD** : Effet Radiatif Direct

**ESCOMPTE** : Expérience sur Site pour COntreindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emission

**EUCAARI** : European Integrated Project on Aerosol-Cloud-Climate and Air Quality Interactions

**FETCH** : Flux, Etats de la mer, Télédétection en Conditions de fetch variable

**GAW** : Global Atmospheric Watch

**Hw** : Hauteur significative des vagues

**LaCy** : Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones

**LIDAR** : LIght Detection And Ranging

**LSCE** : Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement

**LW** : Long Wave

**MATCH** : Model for Atmospheric Transport and CHemistry

**Méso-NH** : Mesoscale Non-Hydrostatic atmospheric model

**MINOS** : Mediterranean Intensive Oxidant Study

**OPS** : Optical Particle Sizer

**ORILAM** : ORganic and Inorganic Log-normal Aerosols Model

**RRTM** : Rapid Radiation Transfer Model

**SAFIRE** : Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement

**SAFMED** : Secondary Aerosol Formation in the MEDiterranean

**SEVIRI** : Spinning Enhanced Visible and InfraRed Imager

**SMPS** : Scanning Mobility Particle Sizer

**SOP** : Special Observation Period

**SSA** : Single Scattering Albedo

**SURFEX** : SURface EXternalisée

**SW** : Short Wave

**TKE** : Turbulent Kinetic Energy

**TOA** : Top of Atmosphere

**TRAQA** : TRAnsport à longue distance et Qualité de l'Air dans le bassin méditerranée

**WW3** : Wave Watch III

# **Annexe A**

## **SAFMED**

SAFMED - Comparaison des variables météorologiques aux trois bouées

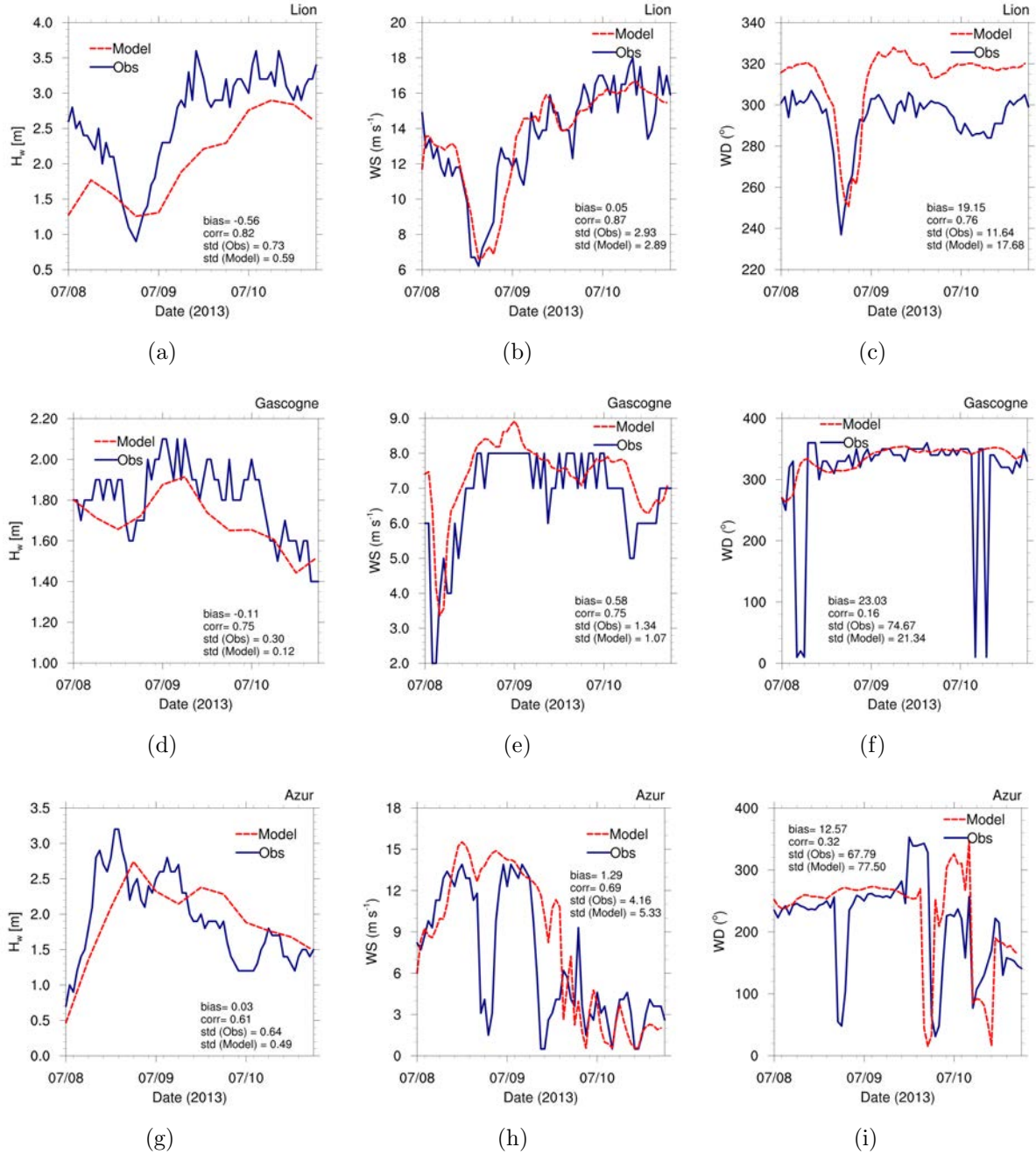


FIGURE A.1 – Comparaison des hauteurs significatives de vagues, de la vitesse et de la direction du vent aux bouées situées dans le golfe du Lion ((a), (b) et (c)), le golfe de Gascogne ((d), (e) et (f)) et au large de la Côte d’Azur ((g), (h) et (i)) entre le modèle et les observations.

# Annexe B

## Scores statistiques

$$R = \frac{\sum (x_{m,i} - \overline{x_m})(x_{o,i} - \overline{x_o})}{N \sum (x_{m,i} - \overline{x_m})^2 \sum (x_{o,i} - \overline{x_o})^2} \quad (\text{B.1})$$

$$\text{Biais} = \sum (x_{m,i} - x_{o,i}) \quad (\text{B.2})$$

Avec  $N$  le nombre de pas de temps,  $x_{m,i}$  la  $i$ ème valeur donnée par le modèle,  $x_{o,i}$ , le la  $i$ ème valeur observée,  $\overline{x_m}$ , la moyenne du modèle,  $\overline{x_o}$ , la moyenne des observations, 1 et 2 les noms de chacun des modèles comparés.



# Annexe C

## Overview de la campagne ADRIMED

Cette annexe présente l'article de Mallet et al. (2016) qui présente la campagne de mesure ChArMEx-ADRMED et résume ses principaux résultats.



# Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRMED) summer 2013 campaign

M. Mallet<sup>1</sup>, F. Dulac<sup>2</sup>, P. Formenti<sup>3</sup>, P. Nabat<sup>4</sup>, J. Sciare<sup>2,5</sup>, G. Roberts<sup>4</sup>, J. Pelon<sup>6</sup>, G. Ancellet<sup>6</sup>, D. Tanré<sup>7</sup>, F. Parol<sup>7</sup>, C. Denjean<sup>3,4</sup>, G. Brogniez<sup>7</sup>, A. di Sarra<sup>8</sup>, L. Alados-Arboledas<sup>9</sup>, J. Arndt<sup>10</sup>, F. Auriol<sup>7</sup>, L. Blarel<sup>7</sup>, T. Bourrienne<sup>4</sup>, P. Chazette<sup>2</sup>, S. Chevaillier<sup>3</sup>, M. Claeys<sup>4</sup>, B. D'Anna<sup>11</sup>, Y. Derimian<sup>7</sup>, K. Desboeufs<sup>3</sup>, T. Di Iorio<sup>8</sup>, J.-F. Doussin<sup>3</sup>, P. Durand<sup>1</sup>, A. Féron<sup>3</sup>, E. Freney<sup>12</sup>, C. Gaimoz<sup>3</sup>, P. Goloub<sup>7</sup>, J. L. Gómez-Amo<sup>8</sup>, M. J. Granados-Muñoz<sup>9</sup>, N. Grand<sup>3</sup>, E. Hamonou<sup>2</sup>, I. Jankowiak<sup>7</sup>, M. Jeannot<sup>13</sup>, J.-F. Léon<sup>1</sup>, M. Maillé<sup>3</sup>, S. Mailler<sup>14</sup>, D. Meloni<sup>8</sup>, L. Menut<sup>14</sup>, G. Momboisse<sup>4</sup>, J. Nicolas<sup>4,12</sup>, T. Podvin<sup>7</sup>, V. Pont<sup>1</sup>, G. Rea<sup>14</sup>, J.-B. Renard<sup>13</sup>, L. Roblou<sup>1</sup>, K. Schepanski<sup>15</sup>, A. Schwarzenboeck<sup>12</sup>, K. Sellegri<sup>12</sup>, M. Sicard<sup>16</sup>, F. Solmon<sup>17</sup>, S. Somot<sup>4</sup>, B. Torres<sup>7</sup>, J. Totems<sup>2</sup>, S. Triquet<sup>3</sup>, N. Verdier<sup>18</sup>, C. Verwaerde<sup>7</sup>, F. Waquet<sup>7</sup>, J. Wenger<sup>10</sup>, and P. Zapt<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Aérodologie, Observatoire Midi-Pyrénées, 14 Avenue Edouard Belin, Toulouse, France

<sup>2</sup>Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRSUVSQ, Université Paris-Saclay, Gif-sur-Yvette, France

<sup>3</sup>Laboratoire Inter-Universitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA), UMR CNRS 7583, Université Paris Est Créteil et Université Paris Diderot, Institut Pierre Simon Laplace, Créteil, France

<sup>4</sup>Météo-France, CNRM-GAME, Centre National de Recherches Météorologiques, UMR3589, Toulouse, France

<sup>5</sup>The Cyprus Institute, Energy, Environment and Water Research Center, Nicosia, Cyprus

<sup>6</sup>LATMOS-ISPL, UPMC Univ. Paris 06 et Université Versailles St-Quentin; CNRS/INSU, Paris, France

<sup>7</sup>LOA, Université Lille 1, Villeneuve d'Ascq, France

<sup>8</sup>ENEA, Laboratory for Earth Observations and Analyses, Via Anguillarese 301, Rome, Italy

<sup>9</sup>Department of Applied Physics, University of Granada, Granada, Spain

<sup>10</sup>Department of Chemistry and Environmental Research Institute, University College Cork, Cork, Ireland

<sup>11</sup>Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de Lyon (IRCELYON), University of Lyon, Villeurbanne, France

<sup>12</sup>Laboratoire de Météorologie Physique, CNRS UMR6016, Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand, Université Blaise Pascal, Aubière, France

<sup>13</sup>LPC2E-CNRS/Université d'Orléans, 3A Avenue de la recherche scientifique, Orléans, France

<sup>14</sup>LMD, IPSL, CNRS, Ecole Polytechnique, École Normale Supérieure, Université Paris 6, UMR8539, Palaiseau CEDEX, France

<sup>15</sup>Leibniz Institute for Tropospheric Research, Permoserstr. 15, 04318 Leipzig, Germany

<sup>16</sup>RSLab/CTE-CRAE-IEEC, Universitat Politècnica de Catalunya, Barcelona, Spain

<sup>17</sup>The Abdus Salam International Center for Theoretical Physics, Strada Costiera 11, Trieste, Italy

<sup>18</sup>Centre National d'Etudes Spatiales (CNES), DCT/BL/NB, 18 Avenue Edouard Belin, Toulouse, France

*Correspondence to:* M. Mallet (malm@aero.obs-mip.fr)

Received: 19 June 2015 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 17 July 2015

Revised: 11 December 2015 – Accepted: 14 December 2015 – Published: 19 January 2016

**Abstract.** The Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment (ChArMEx; <http://charmex.lsce.ipsl.fr>) is a collaborative research program federating international activities to investigate Mediterranean regional chemistry-climate interactions. A special observing period (SOP-1a) including intensive airborne measurements was performed in the framework of the Aerosol Direct Radiative Impact on the regional climate in the MEDiterranean region (ADRI-MED) project during the Mediterranean dry season over the western and central Mediterranean basins, with a focus on aerosol-radiation measurements and their modeling. The SOP-1a took place from 11 June to 5 July 2013. Airborne measurements were made by both the ATR-42 and F-20 French research aircraft operated from Sardinia (Italy) and instrumented for in situ and remote-sensing measurements, respectively, and by sounding and drifting balloons, launched in Minorca. The experimental setup also involved several ground-based measurement sites on islands including two ground-based reference stations in Corsica and Lampedusa and secondary monitoring sites in Minorca and Sicily. Additional measurements including lidar profiling were also performed on alert during aircraft operations at EARLINET/ACTRIS stations at Granada and Barcelona in Spain, and in southern Italy. Remote-sensing aerosol products from satellites (MSG/SEVIRI, MODIS) and from the AERONET/PHOTONS network were also used. Dedicated meso-scale and regional modeling experiments were performed in relation to this observational effort. We provide here an overview of the different surface and aircraft observations deployed during the ChArMEx/ADRI-MED period and of associated modeling studies together with an analysis of the synoptic conditions that determined the aerosol emission and transport. Meteorological conditions observed during this campaign (moderate temperatures and southern flows) were not favorable to producing high levels of atmospheric pollutants or intense biomass burning events in the region. However, numerous mineral dust plumes were observed during the campaign, with the main sources located in Morocco, Algeria and Tunisia, leading to aerosol optical depth (AOD) values ranging between 0.2 and 0.6 (at 440 nm) over the western and central Mediterranean basins. One important point of this experiment concerns the direct observations of aerosol extinction onboard the ATR-42, using the CAPS system, showing local maxima reaching up to  $150 \text{ Mm}^{-1}$  within the dust plume. Non-negligible aerosol extinction (about  $50 \text{ Mm}^{-1}$ ) has also been observed within the marine boundary layer (MBL). By combining the ATR-42 extinction coefficient observations with absorption and scattering measurements, we performed a complete optical closure revealing excellent agreement with estimated optical properties. This additional information on extinction properties has allowed calculation of the dust single scattering albedo (SSA) with a high level of confidence over the western Mediterranean. Our results show a moderate variability from 0.90 to 1.00 (at 530 nm) for all flights studied com-

pared to that reported in the literature on this optical parameter. Our results underline also a relatively low difference in SSA with values derived near dust sources. In parallel, active remote-sensing observations from the surface and onboard the F-20 aircraft suggest a complex vertical structure of particles and distinct aerosol layers with sea spray and pollution located within the MBL, and mineral dust and/or aged North American smoke particles located above (up to 6–7 km in altitude). Aircraft and balloon-borne observations allow one to investigate the vertical structure of the aerosol size distribution showing particles characterized by a large size ( $> 10 \mu\text{m}$  in diameter) within dust plumes. In most of cases, a coarse mode characterized by an effective diameter ranging between 5 and  $10 \mu\text{m}$ , has been detected above the MBL. In terms of shortwave (SW) direct forcing, in situ surface and aircraft observations have been merged and used as inputs in 1-D radiative transfer codes for calculating the aerosol direct radiative forcing (DRF). Results show significant surface SW instantaneous forcing (up to  $-90 \text{ W m}^{-2}$  at noon). Aircraft observations provide also original estimates of the vertical structure of SW and LW radiative heating revealing significant instantaneous values of about  $5^\circ \text{ K per day}$  in the solar spectrum (for a solar angle of  $30^\circ$ ) within the dust layer. Associated 3-D modeling studies from regional climate (RCM) and chemistry transport (CTM) models indicate a relatively good agreement for simulated AOD compared with observations from the AERONET/PHOTONS network and satellite data, especially for long-range dust transport. Calculations of the 3-D SW (clear-sky) surface DRF indicate an average of about  $-10$  to  $-20 \text{ W m}^{-2}$  (for the whole period) over the Mediterranean Sea together with maxima ( $-50 \text{ W m}^{-2}$ ) over northern Africa. The top of the atmosphere (TOA) DRF is shown to be highly variable within the domain, due to moderate absorbing properties of dust and changes in the surface albedo. Indeed, 3-D simulations indicate negative forcing over the Mediterranean Sea and Europe and positive forcing over northern Africa. Finally, a multi-year simulation, performed for the 2003 to 2009 period and including an ocean-atmosphere (O-A) coupling, underlines the impact of the aerosol direct radiative forcing on the sea surface temperature, O-A fluxes and the hydrological cycle over the Mediterranean.

## 1 Introduction

The Mediterranean region has been identified as one of the most prominent “Hot-Spots” in future climate change projections (Giorgi and Lionello, 2008). It is characterized by its vulnerability to changes in the water cycle (e.g., Chenoweth et al., 2011; García-Ruiz et al., 2011). General circulation model (GCM) and regional climate model (RCM) simulations show a substantial precipitation decrease and a warming of the region, especially in the long warm and dry

Mediterranean season. At the end of the 21st century, the average of the model outputs predicts a significant loss of freshwater (40 % for the period 2070–2090 compared to 1950–1999; Sanchez-Gomez et al., 2009) over the Mediterranean region. More recently, Mariotti et al. (2015) have used the newly available Coupled Model Intercomparison Project-Phase 5 (CMIP5) experiments and show a significant increase in the projected surface air temperature (by  $\sim +2$ – $3$  °C) for the 2071–2098 period compared to 1980–2005. These results need to be put in the context of an increasing anthropogenic pressure on the Mediterranean region, with an expected doubling of the population in countries around the Mediterranean basin in the next decades, with a contrast between a small decrease in European countries and a strong increase in African and Middle Eastern countries (Brauch, 2003). However, as highlighted by Mariotti et al. (2008), despite the high degree of model consistency, the results regarding the future climate projections for the Mediterranean Sea water budget from the global coupled models are still uncertain due to their horizontal spatial resolutions that are not capable of resolving the local to regional Mediterranean-specific processes (air–sea exchanges, coastline, topography, north–south gradient of surface albedo). Indeed, the Mediterranean climate is affected by local processes induced by the complex physiography of the region and the presence of a large body of water (the Mediterranean Sea). For example, the Alpine chain is a strong factor in modifying traveling synoptic and mesoscale systems and the Mediterranean Sea is an important source of moisture and precipitation in the region (Gimeno et al., 2010; Schicker et al., 2010) and of energy for storms (Lionello et al., 2006). The complex topography, coastline and vegetation cover of the region are well known to modulate the regional climate signal at small spatial scales (e.g., Millán et al., 1997; Gangoi et al., 2001; Lionello et al., 2006).

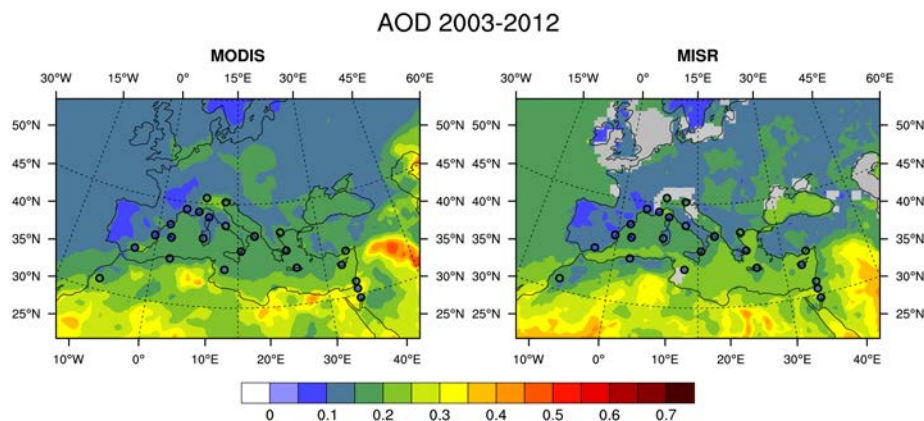
So far, most global and regional climate simulations have investigated the impact of global warming on the Mediterranean climate without detailed considerations of the possible radiative influence and climatic feedback from the different Mediterranean aerosols (anthropogenic, marine, biomass burning, secondary biogenic and mineral dust particles). The Mediterranean region is rich in a variety of particles (natural and anthropogenic) from both continental and marine sources (Lelieveld et al., 2002). In Fig. 1, we illustrate the significant differences in aerosol loading between the eastern, central, and western sub-basins and between the north and the south of the Mediterranean shown by long-term aerosol satellite products. The aerosol optical depth (AOD), which represents the integration of the extinction by particles along the whole atmospheric column, displays annual mean values (Fig. 1) from 0.2 to 0.5 (in the visible wavelengths), depending on the aerosol types observed over the Euro-Mediterranean region (Nabat et al., 2013).

Numerous studies have documented the AOD for polluted anthropogenic Mediterranean aerosols at a local scale over

southeastern France (Mallet et al., 2006; Roger et al., 2006), Spain (Horvath et al., 2002; Alados-Arboledas et al., 2003, 2008), the western Mediterranean (Lyamani et al., 2015), Greece (Chazette and Liousse, 2001; Gerasopoulos et al., 2003), the Greek island of Crete (Fotiadi et al., 2006), and Italy (Tafuro et al., 2007; Ciardini et al., 2012). Under polluted conditions, they report low to moderate AOD values ranging between 0.1 and 0.5 (at visible wavelengths). In parallel, multi-year TOMS and MODIS observations over the eastern Mediterranean (Hatzianastassiou et al., 2009) or the Po Valley (Royer et al., 2010) indicate the occurrence of high AOD values (up to more than 0.8 at 500 nm) over large urban areas surrounding megacities.

Numerous studies (Markowicz et al., 2002; Ravetta et al., 2007; Liu et al., 2009; Kaskaoutis et al., 2011; Barnaba et al., 2011; Amiridis et al., 2012; Baldassarre et al., 2015) have also been dedicated to biomass burning aerosols over the Mediterranean, which are mainly observed in July and August (driest months of the year), when the development of forest fires is favored (Pace et al., 2005). Long-term observations of absorbing aerosols have clearly shown the major role of long-range transport of biomass (agriculture waste) burning in the eastern Mediterranean (Sciare et al., 2008). AOD data available for smoke particles show “intermediate” values between those observed for dust and anthropogenic particles. For example, AOD values ranging between 0.3 and 0.8 (Pace et al., 2005) have been observed at Lampedusa from 5 to 22 August 2003, in relation to intense fires developed in southern Europe and transported over the Mediterranean basin during a regional heat wave. In addition, the STAAARTE-MED experiment (August 1998 in the eastern Mediterranean) has also documented a mean AOD of 0.39 (at 550 nm) for aged smoke plume from Canadian fires (Formenti et al., 2002). This kind of long-range transport has also been observed over the western Mediterranean (Ortiz-Amezcuca et al., 2014).

Concerning natural aerosols, different cases of Saharan mineral dust have been regularly documented with local optical measurements on the island of Lampedusa by Meloni et al. (2003, 2004), who indicate moderate AOD (at 415.6 nm) of about 0.23–0.26 and one significantly larger event with AOD values of 0.51. Meloni et al. (2008) also report AOD (at 500 nm) measurements ranging between 0.29 and 1.18 for the 1999 to 2006 period. For some extreme cases, dust AOD peaks may be even larger, reaching values up to 2 as observed by di Sarra et al. (2011). In parallel to Lampedusa observations, Kubilay et al. (2003) have also documented three dust intrusion events at Erdemli (Turkish coast), occurring in spring from the central Sahara, in summer from the eastern Sahara, and in the fall from the Middle East/Arabian Peninsula. In each case, the presence of dust particles significantly increased the AOD, up to 1.8. Over the western Mediterranean, different studies also reveal the impact of Saharan dust that occasionally can lead to extreme events with AOD (at 500 nm) above 1 (Guerrero-Rascado et al., 2009).



**Figure 1.** Aerosol optical depth (at 550 nm) derived from the MODIS and MISR satellites for the 2003 to 2012 period. The AERONET/PHOTONS AOD is also indicated (in small circles).

For sea-spray particles, which are the second main natural species observed over the Mediterranean, Nabat et al. (2013) report a relatively low monthly mean AOD derived from satellites and modeling data, with values lower than 0.05 (in the visible wavelengths). By using recent improvements in the sea-spray emission scheme, Spada et al. (2013) show an averaged sea-spray AOD of around 0.04 for the month of January (5-year period, 2002–2006), which is the favorable period for generating primary sea spray due to strong sea surface winds. Finally, and in the case of extreme wind episodes occurring over the western basin, Salameh et al. (2007) show that the amount of aerosol loading, solely due to the Mistral, Tramontane and Ligurian outflows, is as large as 3–4 times the background aerosol amount. They indicate that the contribution of sea-spray particles to the total aerosol loading and optical depth ranges from 1 to 10 %. Salameh et al. (2007) report AOD around 0.15–0.20 (at 865 nm) within the sea-spray aerosol plume during such strong wind events. In addition, Mulcahy et al. (2008) reported a high correlation between AOD and wind speed, with AOD values of 0.3–0.4 at moderately high wind speed.

In addition to AOD, the knowledge of SSA is essential for estimating the aerosol direct and semi-direct radiative forcing. Concerning mineral dust particles observed over the Mediterranean, it should be noted that significant variations in SSA are reported, with values near 1 for purely scattering aerosols, and quite remarkable low values (0.74, 0.77 or 0.81) at Lampedusa (Pace et al., 2006; Meloni et al., 2003). At the high-altitude Alpine Jungfraujoch station, SSA values are generally higher than 0.9 in the case of African dust, but occasional SSA as low as 0.75–0.80 is reported by Colaud Coen et al. (2004). Intermediate values (0.85–0.92) have also been reported over the Mediterranean basin (Kubilay et al., 2003; Meloni et al., 2004; Saha et al., 2008). These estimates clearly indicate that significantly different SSA values are obtained following the dust particle origins and/or possible mixing of mineral dust with other species. For example,

Kubilay et al. (2003) underlined the importance of mixing, showing SSA values clearly lower (0.85–0.90) in the case of mineral dust transport coincident with urban–industrial aerosols, as compared to pure dust (0.96–0.97).

In addition, SSA observed in the case of urban/industrial regimes has also been well documented over the Mediterranean Sea and coastal regions. In most cases, moderate or low SSA (0.78–0.94) is observed due to emissions containing absorbing black carbon aerosols. Over southeastern France, optical computations performed by Mallet et al. (2004) and Saha et al. (2008) indicate SSA values of 0.85 and 0.83 (at 550 nm) near the cities of Toulon and Marseilles, respectively. Aircraft observations performed over the Marseilles/Etang de Berre area during the ESCOMPTE campaign show values ranging between 0.88 and 0.93 (at 550 nm) in the planetary boundary layer (PBL) (Mallet et al., 2005). These SSA values are close to those observed in southern Spain (0.86–0.90) by Horvath et al. (2002). Over southeastern Italy, Tafuro et al. (2007) reported a value of 0.94 during summertime corresponding to anthropogenic particles. Finally, polluted particles transported over the Mediterranean basin also have relatively low values as reported by Markowicz et al. (2002) over Crete (0.87) and by Di Iorio et al. (2003) (0.79–0.83) over Lampedusa for two cases (25 and 27 May 1999) of “aged” anthropogenic aerosols originating from Europe.

As opposed to dust and polluted aerosols, few studies have derived the biomass burning SSA over the Mediterranean Sea. One estimate has been obtained during STAAARTE-MED by Formenti et al. (2002), who reported a mean dry SSA of 0.89 (at 500 nm) for aged smoke from North America. Meloni et al. (2006) report estimations at Lampedusa with values of  $0.82 \pm 0.04$  (at 415 nm) for smoke aerosols over the Mediterranean region. The observed differences between SSA values could be due to the fact that the smoke events described by Meloni et al. (2006) are more “local” and not (or somewhat less) mixed with other secondary

species, as compared to biomass burning particles documented by Formenti et al. (2002), which were issued from very distant Canadian fires. Finally, at Palencia (Spain), Cachorro et al. (2008) reported a column-integrated SSA of 0.88 (at 440 nm) for a biomass burning event occurring in 28 July 2004. One should remember that most estimations of SSA over the Mediterranean have been obtained from surface in situ or remote-sensing techniques. In that sense, the ChArMEx/ADRIMED project provides innovative observations of 3-D aerosol SSA, allowing investigating changes in its optical property during the transport of aerosols over the Mediterranean.

Concerning the aerosol vertical profiles and apart from a few airborne in situ measurements (Formenti et al., 2002), most of the available information in the Mediterranean region comes from lidar observations, which provide highly resolved vertical profiles of aerosol backscattering at one or more wavelengths and, depending on the complexity of the instrumental setup, particles depolarization and extinction. Several sites are equipped with aerosol lidar systems and carry out regular observations in a coordinated way within EARLINET (European Aerosol Research Lidar Network; Pappalardo et al., 2014; Wang et al., 2014). Numerous studies have been specifically dedicated to the vertical distribution of Saharan dust during extended time periods and/or selected events from various Mediterranean regions, mainly from ground-based systems: (i) the eastern basin in Thessaloniki (Hamonou et al., 1999; Balis et al., 2004), Crete (Balis et al., 2006), the Aegean Sea (Dulac and Chazette, 2003), and Athens plus Thessaloniki (Papayannis et al., 2005; Balis et al., 2006); (ii) the central basin in Lampedusa (Di Iorio et al., 2003; Meloni et al., 2004), Lecce (Tafuro et al., 2006), and at Etna (Tafuro et al., 2006); and (iii) across the western basin with the first spaceborne lidar (Berthier et al., 2006) and at Observatoire de Haute Provence (Hamonou et al., 1999), and Barcelona (Pérez et al., 2006; Sicard et al., 2011). Finally, using data from 20 EARLINET lidar stations, Papayannis et al. (2008) indicate that African dust transport over the Mediterranean basin is layered. Their analysis confirms early observations by Hamonou et al. (1999) that not only different dust layers are superimposed at different altitudes, but that these layers have different source regions. The dust layers were generally detected between 1.8 and 9 km altitude.

Not only desert dust, however, can be transported above the marine atmospheric boundary layer. Balis et al. (2004) report non-dust aerosols within elevated layers over Thessaloniki, and Formenti et al. (2002) report a forest fire haze layer from Canada observed from airborne measurements between approximately 1 and 3.5 km above the northeastern Mediterranean in August 1998. Pérez et al. (2004) describe the complex interaction among orography, sea breeze and pollution that causes the recirculation of pollutants and produces a strong layering with pollution aerosol layers above the boundary layer in the region of Barcelona. In addition,

aerosol plumes are emitted sporadically in the Mediterranean free troposphere by Etna volcano. Such plumes have been observed to travel at altitudes between 4 and 5 km (Pappalardo et al., 2004) or above (Sellitto et al., 2015) at a relatively short distance from Etna. To summarize, the lidar observations clearly show that only part of the aerosol transport occurs in the MBL demonstrating the need of using aircraft observations within the aerosol plume to determine the aerosol microphysical–chemical and optical properties of particles transported in altitude and so not detectable at the surface. Indeed, although lidar observations provide obviously crucial information on the aerosol vertical profiles, most of lidar systems cannot derive information on the aerosol size distribution, optical properties and chemical composition along the vertical. Such observations can only be obtained using in situ aircraft vertical profiles as proposed in this ChArMEx/ADRIMED experiment. As an example, this project provides interesting and unique observations of 3-D aerosol size distribution during the transport over the Mediterranean basin, allowing one to investigate changes in size distribution between mixed and pure mineral dust.

In terms of radiative effects, such atmospheric aerosol characteristics (loadings, absorbing properties, vertical layering) are known (Nabat et al., 2012; Papadimas et al., 2012; Zanis et al., 2012) to significantly change the radiative budget of the Mediterranean region by (1) decreasing the sea surface incoming shortwave radiations, (2) increasing/decreasing outgoing shortwave fluxes depending on the surface albedo and (3) possibly heating turbid atmospheric layers when particles absorb solar light. This is the so-called aerosol direct radiative forcing (DRF). As for the AOD, many aerosol DRF calculations are now referenced over the Mediterranean, clearly showing that the DRF is significantly larger at daily timescales than the one exerted by the additional anthropogenic greenhouse gases.

Concerning polluted aerosols, shortwave DRF has been estimated by many authors (Horvath et al., 2002; Markowicz et al., 2002; Meloni et al., 2003; Mallet et al., 2006; Roger et al., 2006; Saha et al., 2008; di Sarra et al., 2008; Di Biagio et al., 2009, 2010). Studies show significant decreases of surface solar fluxes of about 20–30 W m<sup>-2</sup> (daily mean) for different locations such as Almeria (southern Mediterranean coast of Spain), Finokalia (Crete), Lampedusa, Marseilles and Toulon (southeastern France). In parallel, the combination of surface and satellite remote-sensing observations performed at Lampedusa has been used to perform calculations of the DRF, both in the shortwave (SW; Di Biagio et al., 2010) and longwave (LW; di Sarra et al., 2011; Meloni et al., 2015) spectral regions for different cases of Saharan dust intrusions. These studies emphasize that the radiative effect of desert dust in the LW spectral range is significant, and offsets a large fraction of the SW forcing (di Sarra et al., 2011; Meloni et al., 2015). More recently, Sicard et al. (2014a, b) have also produced estimations of the dust LW radiative effect,

based on remote-sensing observations in Barcelona and 1-D radiative transfer calculations.

Concerning the smoke DRF, some calculations have been conducted over the Mediterranean region by Markowicz et al. (2002), di Sarra et al. (2008), Kaskaoutis et al. (2011) or Formenti et al. (2002). One estimate, proposed by Formenti et al. (2002) for an aged Canadian biomass-burning plume, reveals a significant SW surface dimming of about  $\sim 60 \text{ W m}^{-2}$ . In addition, the DRF induced by smoke aerosols at Lampedusa between 3 and 23 August 2003, during the exceptionally hot and dry season, was derived by Pace et al. (2005) for the 300–800 nm spectral range. The smoke atmospheric forcing was estimated to be between  $+22$  and  $+26 \text{ W m}^{-2}$ , with a corresponding SW heating rate possibly exceeding  $2 \text{ K d}^{-1}$  at the smoke plume altitude.

At the regional scale, Papadimas et al. (2012) have proposed a recent estimation of the aerosol DRF using MODIS data from 2000 to 2007 for both all-sky and clear-sky conditions. They derived a multi-year regional mean surface of  $-19 \text{ W m}^{-2}$ , associated with a TOA DRF of  $-4.5 \text{ W m}^{-2}$ . Regional modeling studies have also been recently proposed by Nabat et al. (2012, 2014, 2015a) using the coupled-chemistry RegCM and CNRM-Regional Climate System Model (RCSM) for multi-year simulations. These works reported a mean regional surface (TOA) forcing of about  $-12 \text{ W m}^{-2}$  ( $-2.4 \text{ W m}^{-2}$ ) and  $-16 \text{ W m}^{-2}$  ( $-5.7 \text{ W m}^{-2}$ ) for the RegCM and CNRM-RCSM models, respectively. RegCM has also been used to investigate direct and semi-direct radiative effects of mineral dust over the Sahara and Europe in a test case of July 2003 (Santese et al., 2010). In this work, Santese et al. (2010) computed a daily mean SW DRF of  $-24 \text{ W m}^{-2}$  ( $-3.4 \text{ W m}^{-2}$ ) on 17 July and  $-25 \text{ W m}^{-2}$  ( $-3.5 \text{ W m}^{-2}$ ) on 24 July at the surface (TOA) on average over the simulation domain. Zanis et al. (2012) also proposed a regional estimate of the DRF of anthropogenic particles over the 1996–2007 period using RegCM and showed a significant forcing of up to  $-23 \text{ W m}^{-2}$  at TOA over eastern Europe. In addition, Péré et al. (2011) have used the CTM-CHIMERE model coupled to the WRF model, for estimating the DRF of anthropogenic particles during the heat wave of summer 2003 and showed significant effects with implications on the planetary boundary layer height (decrease up to 30 % in the presence of anthropogenic aerosols) and local air quality. In addition to their important effects on the surface and TOA DRF, most of the Mediterranean aerosols are also able to absorb more or less effectively the solar radiations leading to a significant atmospheric forcing and associated SW heating rate. Local studies previously mentioned (Roger et al., 2006; Saha et al., 2008; Pace et al., 2005; Péré et al., 2011; Meloni et al., 2015) clearly report significant SW heating rate due to absorbing particles with values reaching up to 2–3 K per day, depending on the aerosol types. Finally, aerosols also have a significant effect on photolysis rates that may affect tropospheric chemistry

and ozone production over the basin (Casasanta et al., 2011; Mailler et al., 2015).

With regards to such surfaces, TOA and atmospheric forcings, there is a need to investigate how the change in the radiative budget due to natural/anthropogenic aerosols influences surface temperature (both over land and sea), relative humidity profiles, exchanges (latent heat fluxes) between ocean and atmosphere, cloud cover (semi-direct effect of absorbing particles), precipitation and finally the whole Mediterranean hydrological cycle. The induced perturbations in the sea surface–atmosphere fluxes is expected to be important despite the relatively small size of the Mediterranean Sea, since this basin plays an important role at much larger scale by providing moisture for precipitation to its surroundings land region extending to northern Europe and northern Africa (Gimeno et al., 2010; Schicker et al., 2010). Indeed, and as shown by Ramanathan et al. (2001) for the Indian region or Foltz and McPhaden (2008) and Yue et al. (2011) for the Atlantic Ocean, a modification of the sea surface evaporative fluxes, due to the dimming radiative effect of aerosols at the sea surface could significantly influence the lower troposphere moisture content and the associated precipitation distribution around the Mediterranean. In parallel, the absorbing particles over the Mediterranean (Mallet et al., 2013) could exert a semi-direct effect that could modify the vertical profiles of relative humidity and cloud cover, which has to be quantified. To our knowledge, there is no regional climate simulation over the Mediterranean basin at this time that includes an ocean–atmosphere (O–A) coupled system model for investigating this specific question.

In that context of the referenced modeling and observation research over the Mediterranean basin, the main objectives of the ChArME<sub>x</sub>/ADRI<sub>ME</sub>D project were the following:

- to conduct an experimental campaign, based on surface and aircraft observations, for creating a rich 3-D database of physical, chemical and optical properties of the main Mediterranean aerosols, including (i) original in situ aircraft observations of extinction coefficients, size distribution, black carbon concentrations as well as (SW and LW) radiative fluxes and associated heating rates, (ii) balloons observations of aerosol size distribution and (iii) surface measurements including original characterization of chemical properties
- to investigate how the aerosol size distribution and optical (especially SSA) properties evolve along the vertical, between the MBL and elevated layers, and during the transport over the Mediterranean
- to use experimental surface and aircraft observations to estimate the 1-D local DRF and forcing efficiency of different aerosols at the surface, TOA and within the atmospheric layer
- to investigate how the modifications of the radiative budget due to aerosols affect the sea surface evaporation

fluxes, relative humidity profiles, cloud cover, precipitation and more largely the Mediterranean hydrological cycle

The present article describes the experimental setup of the campaign and the meteorological context and illustrates important results detailed in a series of companion papers. The rest of this article is divided into six different parts. In the first and second parts (Sects. 2 and 3), we describe the in situ and remote-sensing instrumentation deployed at the two super-sites (Ersa and Lampedusa) and secondary sites (Minorca, Capo Granitola and the Barcelona and Granada EARLINET/ACTRIS stations), the additional AERONET/PHOTONS (Aerosol RObotic NETwork/PHOtométrie pour le Traitement Opérationnel de Normalisation Satellitaire, <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>; Holben et al., 1998) and EARLINET/ACTRIS (European Aerosol Research Lidar Network/Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure Network, <http://www.actris.net/>; Pappalardo et al., 2014) network stations that we used, and the airborne observations obtained onboard the two French research aircraft (ATR-42 and F-20) and with sounding and drifting balloons. Sect. 4 is dedicated to presenting the main meteorological conditions, cloud cover and precipitation, which controlled the aerosol emission and transport during the period of observations. Sect. 5 presents some examples of results concerning the in situ and remote-sensing observations, in terms of aerosol physical, chemical, optical properties, and vertical profiles, as well as 1-D DRF SW and LW calculations. In the last part (Sect. 6), the modeling effort is presented. Different models are involved in this project, from high-resolution meteorological and chemistry transport models to regional climate models. The modeling results are used to describe the anthropogenic (carbonaceous, secondary inorganic and organic species) and natural (dust and sea-spray) loading and the estimated DRF at the regional scale for the period of experiment. An example of results of longer (inter-seasonal and inter-annual) aerosol-climate simulations is presented in Sect. 6, based on the work of Nabat et al. (2015a).

## 2 Overview of the surface observation network

The regional experimental setup deployed in the western and central Mediterranean during the ChArMEx SOP-1a campaign is shown in Fig. 2. Two super-sites (Cape Corsica and Lampedusa) and 10 secondary sites (Fig. 2) have been used in this project.

### 2.1 The Cape Corsica and Lampedusa surface super-sites

Two super-sites were fully equipped for documenting the aerosol chemical, physical and optical properties as well as their possible mixing and their vertical structure at local scale



**Figure 2.** The regional experimental setup deployed in the western and central Mediterranean during the ChArMEx SOP-1a campaign. The two aircraft were based at Cagliari.

(Table 1). The main characteristics of these two surface stations are presented here. The first station was located in Ersa on Cape Corsica ( $42^{\circ}58'10''$  N,  $9^{\circ}22'49''$  E), near the northern tip of Corsica. This station was primarily instrumented for investigating polluted air masses transported over the Mediterranean basin from the highly industrialized regions of the Po Valley (Royer et al., 2010) and/or the Marseille–Fos–Berre (Cachier et al., 2005) zone and Rhone Valley. This ground-based remote station is located at an altitude of about 530 m above mean sea level (a.m.s.l.) on a ridge equipped with windmills and benefits from a direct view to the sea over a northern sector of  $\sim 270^{\circ}$  extending from the SW to the SE. The Cape Corsica peninsula is a remote site ensuring that the in situ measurements are not contaminated by local anthropogenic pollution.

The Lampedusa super-site ( $35^{\circ}31'5''$  N,  $12^{\circ}37'51''$  E) was established at the Roberto Sarao station permanently operated by ENEA on the small island of Lampedusa ( $\sim 20$  km<sup>2</sup>), and it was augmented during the field campaign by the observations of the Portable Gas and Aerosol Sampling UnitS (PEGASUS) mobile station operated by LISA. This surface station was mainly used for documenting very aged air masses in southwesterly flow from Europe, southern air masses from northern Africa (Tunisia, Algeria and Libya) possibly laden with mineral dust, as well as marine aerosols. It is situated on a cliff at about 45 m a.m.s.l. on the northeastern tip of the island.

The complete instrumentation deployed during the SOP-1a experiment for both super-sites is detailed in Table 1. Briefly, it served to determine the complete aerosol physical, chemical and optical properties as well as vertical profiles, and to measure radiative fluxes (broadband SW and LW, and spectral SW).

**Table 1.** List of the instrumentations deployed over the two super-sites (Ersa and Lampedusa) during the SOP-1a experiment for the characterization of physical, chemical and optical properties of aerosols, vertical profiles, columnar-averaged properties and radiation measurements. Meteorological parameters and gas concentrations are not included in this table.

	Ersa		Lampedusa	
	Instruments	Frequency	Instruments	Frequency
Number concentration	1 CPC (0.01–3 µm)	Continuous (1')	1 W-CPC (0.01–3 µm)	Continuous (2')
CCN concentration	1 CCN counter	Continuous	1 CCN counter	Continuous
Mass concentration	1 PM <sub>2.5</sub> 1 PM <sub>10</sub>	Continuous	1 PM <sub>40</sub> (TEOM)	Continuous
Number size distribution	1 OPC (0.3–5 µm) 1 APS (TSD) 1 SMPS (3–300 nm)	Continuous	2 GRIMM (0.25–32 µm) 1 APS (TSD) (0.5–20 µm) 2 (dry/ambient) SMPS	Continuous
Mass size distribution	2 Impactor DEKATI (13 stages)	Continuous	2 Impactor DEKATI (13 stages)	Continuous
PM <sub>1</sub> composition	1 PILS	48 h	1 Impactor Nano-MOUDI AMS (Aerodyne)	48 h
PM <sub>10</sub> composition	1 PILS	Continuous	1 PILS	24 h
Mass BC concentration	1 (7-λ) aethalometer	Continuous	1 FAI Hydra Sampler 1 PSAP	Continuous
Vertical profiles	1 (1-λ, 355 nm) Leosphere	Continuous	1 MAAP 1 (1-λ) Leosphere ALS 300 2 (3-L) ENEA/Univ. of Rome lidar microwave radiometer ( <i>p</i> , <i>T</i> , RH) radiosondes	Continuous (1 h) Continuous (20') Continuous (1') Continuous (15') on event
Scattering coefficient	1 (3-λ) TSI nephelometer (450–550–700 nm)	Continuous (1')	1 (3-λ) TSI nephelometer (450–550–700 nm)	Continuous (1')
Absorbing coefficient	1 (7-λ) aethalometer (370–420–490–520–660–880–950 nm)	Continuous	1 (7-λ) aethalometer (370–420–490–520–660–880–95 nm)	Continuous
Extinction coefficient	1 (1-λ) (860 nm) PAX	Continuous (1')		
Column optical properties	1 (9-λ) AERONET/PHOTONS	Continuous (15' for AOD)	1 (9-λ) AERONET/PHOTONS 2 (12-L) MFRSRs	Continuous (15' for AOD) Continuous (15 s)
Mineral aerosol deposition	1 CARAGA	Continuous (7-day)	1 CARAGA	Continuous (7-day)
Downward shortwave irradiance	1 pyranometer	Continuous (30 s)	1 (CMP 21) pyranometer	Continuous (30 s)
Downward longwave irradiance	1 pyrgeometer	Continuous (30 s)	1 (CGR4) pyrgeometer	Continuous (30 s)
Downward window (8–14 µm) irradiance			1 modified CG3 pyrgeometer	Continuous (60 s)
Direct solar radiance			1 CHP1 Pyrheliometer	Continuous (30 s)
Direct spectral solar radiation			1 PMOD Precision Spectrorad.	Continuous (30 s)
Spectral downward global solar irradiance			1 HyperOCR spectrometer	Continuous (30 s)
Spectral downward diffuse solar irradiance			1 HyperOCR spectrometer	Continuous (30 s)
Spectral direct solar irradiance			1 spectroradiometer	Continuous (60 s)
Downward spectral actinic flux			1 Diode array spectrometer	Continuous (60 s)

### 2.1.1 In situ measurements at super-sites

Both super-sites measured the mass concentration online using tapered element oscillating microbalance (TEOM) analyzers. The number size distribution of particles are also measured, including fine and coarse fractions (radius ranges and corresponding instruments are reported in Table 1). The aerosol composition was derived from chemical analyses of filters and cascade impactors (DEKATI and MOUDI) with time resolution varying from 12 to 48 h (depending on the aerosol load), but also from high time resolution online measurements by an ACSM (Aerosol Chemical Speciation Monitor) at Ersa, a C-TOF-AMS (Time of Flight Aerosol Mass Spectrometer) at Lampedusa, and two PILS (Particle Into Liquid Sampler) systems at both sites (Table 1). The original observations of aerosol chemical properties obtained from PM10-PILS instrument at Ersa are detailed in Claeys et al. (2016). Concerning aerosol optical properties, scattering and absorption coefficients (at wavelengths listed in Table 1) have been estimated for both super-sites using a 3- $\lambda$  nephelometer and a 7- $\lambda$  aethalometer, respectively. At Ersa station, the extinction coefficient (at 870 nm) was also estimated using a Photoacoustic Extinctionmeter (PAX) instrument, while it has been estimated at 2- $\lambda$  (450 and 630 nm) at Lampedusa using two Cavity Attenuated Phase Shift Spectroscopy (CAPS) systems.

Additional in situ measurements were performed at the Ersa station. The mixing state of fine particles (at the two selected diameters of 50 and 110 nm in dry conditions) has also been estimated from their hygroscopic behavior using a VHTDMA (volatilization and humidification tandem differential mobility analyzer) system (Johnson et al., 2004). In parallel, a TSI (model 3800) aerosol time of flight mass spectrometer (ATOFMS) (Gard et al., 1997) was used to measure the size-resolved chemical composition of single particles in the vacuum aerodynamic diameter ( $d_{va}$ ) size range 100–3000 nm.

### 2.1.2 Remote-sensing and radiation measurements at super-sites

A Leosphere Raman lidar model RMAN510 was setup at low altitude ( $\sim 11$  m above sea level) in the small village of Macinaggio ( $42^{\circ}57'44''$  N,  $9^{\circ}26'35''$  E) located on the eastern coast of Cape Corsica. The lidar was operated at about 6 km east of the Ersa station and less than 700 m from the shoreline. The RMAN510 uses a laser emitting at 355 nm. It measures the total and polarized backscatter at 355 nm and the Raman nitrogen signal at 387 nm at night-time. A second ALS300 510 lidar system has been deployed in Lampedusa (Formenti et al., 2016) as well as a more powerful University of Rome–ENEA homemade lidar measuring backscatter at 532 and 1064 nm (Di Iorio et al., 2016). The main characteristics of lidar systems are provided and detailed in Table 1.

At each station, a multi-wavelength sun-photometer from the AERONET/PHOTONS network was operated, allowing the operational retrieval of column-integrated AOD at 340, 380, 440, 500, 675, 870, and 1020 nm (and also at 1650 nm at Ersa) and aerosol optical and microphysical properties such as the single scattering albedo, refractive index and particle size volume distribution (Dubovik and King, 2000; Dubovik et al., 2000, 2002, 2006). The Ersa sun-photometer has been positioned since June 2008 near the navy semaphore on the northwestern tip of Cape Corsica ( $43^{\circ}00'13''$  N,  $9^{\circ}21'33''$  E, alt.  $\sim 75$  m a.m.s.l.) at about 4.2 km NNW of the Ersa surface station.

Both super-sites were complemented by a pyrgeometer and a pyranometer for monitoring longwave and shortwave downward fluxes measurements, respectively. Additional radiation measurements were performed at Lampedusa (Table 1). Spectral measurements of global, diffuse, and direct radiation were carried out with other instruments deployed by ENEA and the Physikalisch-Meteorologisches Observatorium Davos, World Radiation Center (PMOD/WRC, Switzerland). Multi-filter rotating shadowband radiometer observations were carried out jointly with AERONET sun-photometer (di Sarra et al., 2015) and allowed the derivation of the AOD at several wavelengths. By combining these two measurements, a long-term series of AOD, started in 2001, was obtained. Measurements of the spectral actinic flux, allowing the determination of the photolysis rates (Mailler et al., 2015), were carried out with a diode array spectrometer. Measurements of broadband irradiance included a CG3 pyrgeometer sensitive to radiation in the atmospheric infrared window. Finally, the total ozone and spectral UV irradiance were obtained with a Brewer spectrophotometer. Several radiosondes were also launched from Lampedusa during the SOP-1a, and vertical profiles of temperature and humidity were continuously measured by a microwave radiometer.

## 2.2 The secondary sites

### 2.2.1 Montesorio station

The Cape Corsica station was complemented by an additional remote-sensing setup at the peri-urban air quality station of Montesorio, southward of Bastia at about 45 m a.m.s.l. (Léon et al., 2015), including a Leosphere model EZ lidar operating at 355 nm ( $42^{\circ}40'17''$  N,  $9^{\circ}26'05''$  E) and a Cimel AERONET/PHOTONS sun-photometer ( $42^{\circ}40'19''$  N,  $9^{\circ}26'06''$  E). In addition, some air-quality parameters were monitored by Qualitair Corse, including PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub>. This station is less than 1 km from the shore on the northeastern coast of Corsica, about 32 km south of Macinaggio.

### 2.2.2 Barcelona station

The Barcelona station (41.39° N, 2.11° E, 115 m a.m.s.l.) was equipped with the following fixed instruments including an AERONET sun-photometer, an automated Sigma Space-NASA Micro Pulse Lidar (MPL) and a Universitat Politècnica de Catalunya (UPC) home-made multi-wavelength lidar (Kumar et al., 2011). The MPL lidar works at 532 nm and has a depolarization channel, while the UPC lidar works at 355, 532 and 1064 nm, and also includes two N<sub>2</sub>- (at 387 and 607 nm) and one H<sub>2</sub>O-Raman (at 407 nm) channels. The MPL system worked continuously. The UPC system was operated on alert in coordination with the two research aircraft plans involved in the SOP-1a campaign. The UPC system is part of the EARLINET network.

### 2.2.3 Minorca station

An additional station was set up during the campaign, located at Cap d'en Font, on the southeastern coast of the Balearic Island of Minorca (Spain, 39°53'12" N and 4°15'31" E, ~ 10 m a.m.s.l.), which is relatively central in the western Mediterranean basin. The Mobile Aerosol Station (MAS) of the LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement) laboratory was equipped with the new Raman lidar WALI (Chazette et al., 2014a, b), an AERONET/PHOTONS sun-photometer, and a set of in situ instruments. A five-wavelength Solar Light Microtops-II manual sun-photometer was also used. The WALI instrument, its calibration and the associated errors are documented in Chazette et al. (2014a). During all the experiment, the acquisition was performed continuously with a vertical resolution of 15 m. AOD at the lidar wavelength of 355 nm has been extrapolated from that measured by sun-photometer at 380 and 440 nm using the Angström exponent (Chazette et al., 2015).

The in situ instruments installed onboard the MAS included a three-wavelength TSI nephelometer, a Magee Scientific Model AE31 seven-wavelength aethalometer, a TEOM microbalance, and a Vaisala meteorological probe type PTU300. The nephelometer was sampling through a PM<sub>10</sub> inlet to measure the aerosol scattering coefficient at three wavelengths (450, 550 and 700 nm) with an integrating time step of 5 min. The aethalometer was sampling through a PM<sub>2.5</sub> inlet to measure aerosol absorption (at seven wavelengths) and derive a 5 min average black carbon concentration. The TEOM measured dry PM<sub>10</sub> concentration every 30 min. In addition two optical particle counters (OPCs) were installed outdoors next to the sun-photometer on a mobile platform. A MetOne HHPC-6 and a LOAC (Renard et al., 2015a, b), respectively, measured aerosol particle number concentration in 6 channels above 0.3 µm in diameter and in 19 channels above 0.2 µm. The LOAC instrument accuracy is discussed in detail by Renard et al. (2015a, b).

### 2.2.4 Granada station

The station of the Atmospheric Physics Group (GFAT) is located in the Andalusian Institute for Earth System Research (IISTA-CEAMA), in Granada, Spain (37.16° N, 3.61° W, 680 m a.m.s.l.). The station is at a relatively short distance, about 200 km away, from the African continent and approximately 50 km away from the western Mediterranean Sea. During the SOP-1a campaign, lidar measurements were performed simultaneously with a multiwavelength Raman lidar and a scanning Raman lidar both from Raymetrics S.A. The multi-wavelength Raman system is part of the EARLINET network. In addition, a ceilometer was operated. Column integrated characterization of the atmospheric aerosol was performed following AERONET protocols with two Cimel sun-photometers deployed at two different heights: Granada (680 m a.s.l.) and Cerro Poyos (37°6'32" N, 3°29'14" W, 1790 m a.s.l.) stations. In addition, in situ instrumentation was continuously operated providing measurements of aerosol light-absorption coefficient at multiple wavelengths (multi-angle absorption photometer (MAAP) from Thermo ESM Andersen Instruments and Aethalometer model AE31), size distribution and particle number concentration for diameters larger than 0.5 µm (TSI aerodynamic particle sizer APS model 3321) and light-scattering and backscattering coefficient at dry and at relative humidity of 85 % by means of a TSI tandem nephelometer humidograph system. Furthermore, the chemical composition in the PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub> size fractions was determined during 16 and 17 June by collecting aerosol samples using two high-volume samplers (Benavent-Oltra et al., 2016).

### 2.2.5 Capo Granitola station

Several instruments were also deployed at Capo Granitola (37°34' N, 12°40' E), a site along the southern coast of Sicily. The site, within a combined effort of ENEA, the University of Florence, and the University of Valencia, was equipped with a PM<sub>10</sub> sampler, a MultiFilter Rotating Shadowband Radiometer (MFRSR) to derive spectral AOD, and radiometers and spectrometers for the measurement of global, direct, and diffuse radiation throughout the SW and LW spectral ranges.

## 2.3 Surface remote-sensing network

Two surface remote-sensing networks were operated during the ChArMEx SOP-1a experiment, namely the AERONET/PHOTONS and EARLINET/ACTRIS (Pappalardo et al., 2014) networks. These networks were highly useful as they allow estimation of the column-integrated aerosol loading as well as the vertical structure of particles.

### 2.3.1 The AERONET/PHOTONS sun-photometer network

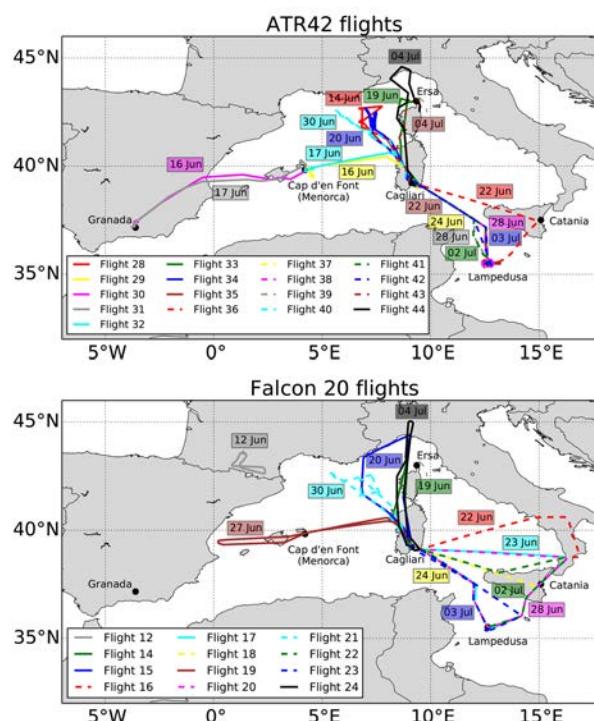
AERONET (Aerosol Robotic Network; <http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>) is a federated network of ground-based sun-photometers and the associated data inversion and archive system that routinely performs direct sun observations about every 15 min during daytime, and both almucantar and principal plane sky radiance measurements, at selected solar angles (Holben et al., 1998). Along with AOD observations, the AERONET aerosol retrieval algorithm (Dubovik and King, 2000) delivers the complete set of column-effective aerosol microphysical parameters, including volume size distribution, refractive index at several wavelengths and fraction of spherical particles (Dubovik et al., 2006). In addition, using these microphysical parameters, the algorithm provides other column-effective aerosol optical properties such as wavelength dependent SSA, phase function, and asymmetry parameter, as well as integral parameters of bi-modal particle size distributions (concentration, mode radii and variances) (Dubovik et al., 2002). The accuracy of AERONET retrievals is evaluated and discussed by Dubovik et al. (2000, 2002). In addition to microphysical and optical aerosol properties, we also have used direct radiative forcing calculations operationally provided at any AERONET location as an operational product of the network. The method of derivation is described in detail by García et al. (2012). Briefly, the broadband fluxes were calculated using the GAME (Dubuisson et al., 2004; Roger et al., 2006) radiative transfer model that has been integrated into the operational AERONET inversion code. Sun-photometer stations used during the SOP-1a campaign over the western basin are listed in Table 2. The new instruments deployed specifically during the ChArMEx/ADRIMED project are the Ersa, Cap d'En Font, Cagliari and Majorque stations.

### 2.3.2 The EARLINET/ACTRIS network

Between 22 and 24 June, four ACTRIS/EARLINET lidar stations (in addition to the EARLINET sites of Barcelona and Granada) were operated (Sicard et al., 2015a; Barragan et al., 2016):

- Naples: backscatter (355 and 532 nm) and depolarization ratio (532 nm) profiles (22 June);
- Serra La Nave (Sicily): backscatter (355 nm) and depolarization ratio (355 nm) profiles (22 June);
- Potenza: extinction profiles (355 and 532 nm), backscatter (1064 nm) and depolarization ratio (532 nm) profiles (22 and 23 June);
- Lecce: extinction (355 and 532 nm), backscatter (1064 nm), water vapor and depolarization ratio (355 nm) profiles (22 and 24 June).

### ADRIMED flights - ATR42 & Falcon20 - June & July 2013



**Figure 3.** Overview of the different ATR-42 and F-20 flight trajectories performed during the SOP-1a experiment.

## 3 Overview of the aircraft and balloon operations

### 3.1 Overview of the ATR-42 and F-20 flights

Figure 3 summarizes ATR-42 and F-20 flights trajectories performed during the experiment and their main characteristics. Most of the western Mediterranean basin has been investigated during the campaign by both aircrafts, excluding areas under the control of African aviation authorities where authorizations for scientific operations are very difficult to obtain. The first period of the campaign (16 to 20 June) was mainly dedicated to ATR-42 flights over Spain and Minorca (16–17 June, flights 29–32) and southern France–Corsica (19–20 June, flights 33–34). During the second period (21–28 June) of the SOP-1a, ATR-42 flights were mostly conducted over the Sardinia–Sicily–Lampedusa region in the central Mediterranean (flights 35–40). In July, two ATR-42 flights (41 and 42) were conducted over Lampedusa on 2–3 July and two others (43 and 44) on 4 July over the Gulf of Genoa. It should be noted that most ATR-42 flights included some transects at fixed altitudes (generally  $\sim 30$  min of duration) associated with vertical profiles over surface super-sites and secondary stations. Details about each flight track are available on the ChArMEx Operation Centre website (ChOC; <http://choc.sedoo.fr>). In Fig. 3, F-20 flights trajectories are also indicated with the day corresponding to each

**Table 2.** List of the long-term AERONET/PHOTONS sun-photometer stations operated in the western Mediterranean during the ChArMEx/ADRI-MED (SOP-1a) experiment.

AERONET/PHOTONS Site name	Latitude (° N)	Longitude (° E)	Altitude (m)	Nb. of wavelengths	Site characteristics
Modena	44.63	10.94	56	7	Urban
Avignon	43.93	4.87	32	4	Rural
Villefranche-sur-Mer	43.68	7.33	130	4	Peri-urban coastal
Frioul	43.26	5.29	40	8	Peri-urban coastal
Toulon	43.13	6.00	50	4	Urban coastal
Ersa	43.00	9.35	80	8	Remote island
Rome Tor Vergata	41.84	12.65	130	7	Peri-urban
Barcelone	41.38	2.17	125	4	Urban coastal
IMAA-Potenza	40.60	15.72	820	8	Urban
Lecce University	40.33	18.11	30	7	Peri-urban coastal
Cap d'en Font	39.82	4.21	10	7	Remote island
Oristano	39.91	8.5	10	4	Peri-urban coastal
Burjassot	39.50	−0.42	30	8	Urban coastal
Majorque	39.55	2.62	10	7	Peri-urban coastal
Cagliari	39.28	9.05	3	7	Urban coastal
Messina	38.20	15.57	15	4	Urban coastal
Granada	37.16	−3.6	680	7	Urban
Malaga	36.71	−4.47	40	7	Peri-urban
Blida	36.50	2.88	230	7	Rural coastal
Lampedusa	35.51	12.63	45	7	Remote island
Ouijda	34.65	1.90	620	8	Urban coastal
Ouarzazate	30.93	6.91	1136	8	Remote desert

flight. Except for 16 and 17 June, when F-20 is not flying, most of the flights have been made jointly between the two aircraft. The longer flight range of the F-20 allowed us to document the Tyrrhenian Sea (not covered by the ATR-42) and to perform vertical profiles of aerosols over southern Italy in association with EARLINET/ACTRIS lidar observations. It should be finally noted the additional F-20 flight between Sardinia and Spain on 27 June specifically dedicated to sample a forest fire plume transported long-range from North America.

### 3.2 In situ and remote-sensing observations onboard the ATR-42

The instrumentation deployed onboard the ATR-42, described in detail in Denjean et al. (2015) and Nicolas et al. (2016) is summarized in Table 3. It is analogous to the one used for the two super-sites and was devoted to the characterization of microphysical, chemical and optical properties of aerosols that have been advected above the MBL and so not detectable at the surface. As indicated in Table 3, the number size distribution of aerosols, including fine and coarse fractions, as well as the total concentration of particles have been evaluated using SMPS, GRIMM, FSSP and UHSAS systems. The corresponding size ranges for all instruments are indicated in Table 3. A 3- $\lambda$  nephelometer and 1- $\lambda$  Cavity Attenuated Phase Shift (CAPS PMex) particle light extinc-

tion monitor system (Petzold et al., 2013) have been used conjointly for estimating scattering and extinction properties of particles. The CAPS-PMex system, used for the first time onboard the ATR-42, provides an additional constrain on the aerosol optical properties, useful to determine the absorbing properties. Indeed, the aerosol absorbing characterization remains largely challenging using filter techniques (Moosmüller et al., 2009). These optical inter-comparisons have been performed for different aerosol plumes and are presented in Denjean et al. (2015).

In addition, passive remote-sensing observations have been conducted during the SOP-1a experiment using the PLASMA (Photomètre Léger Aéroporté pour la Surveillance des Masses d’Air) system, which is an airborne sun-tracking photometer with two main characteristics: lightness and a wide spectral coverage (15 channels between 0.34 and 2.25  $\mu\text{m}$ ; see Karol et al., 2013). The instrument also contains a microprocessor that derives the sun’s position depending on time, latitude, longitude (provided by a GPS system) and the rotation of the airborne (provided by a gyroscope). Spectral AOD is derived from these direct sun measurements and the calibration coefficients. During the campaign, several AOD comparisons were done between PLASMA and AERONET/PHOTONS sun-photometers (Cagliari, Lampedusa, Granada) showing differences within 0.01 at all wavelengths. Moreover, as a consequence of performing AOD measurements at different heights, the aerosol extinction

**Table 3.** In situ instrumentation deployed onboard the ATR-42 during the SOP-1a experiment.

Parameter measured	Instrument	Abbreviation	Location in the aircraft	Wavelength (nm)	Nominal size range ( $\mu\text{m}$ )
Size distribution	Forward Scattering Spectrometer Probe, Model 300, Particle Measuring Systems	FSSP-300	Wing-mounted	632.8	0.28–20
	Ultra High Sensitivity Aerosol Spectrometer, Droplet Measurement Technologies	UHSAS	Wing-mounted	1054	0.04–1
	Sky-Optical Particle Counter, Model 1.129, Grimm Technik	GRIMM1	AVIRAD inlet	655	0.25–32
	Optical Particle Counter, Model 1.109, Grimm Technik	GRIMM2	Communaury aerosol inlet	655	0.25–32
	Scanning mobility particle sizer, custom-built (Villani et al., 2007)	SMPS	Communaury aerosol inlet	n/a	0.03–0.4
Integrated number concentration	Condensation Particle Counters, Model 3075, TSI	CPC	AVIRAD inlet	n/a	> 0.005
Scattering coefficient	3 $\lambda$ Integrated Nephelometer, Model 3563, TSI	Nephelometer	AVIRAD inlet	450, 550, 700	n/a
Absorption coefficient	3 $\lambda$ Particle Soot Absorption Photometer, Radiance Research	PSAP	Communaury aerosol inlet	467, 530, 660	n/a
Extinction coefficient	Cavity Attenuated Phase Shift, Aerodyne Research Inc.	CAPS	Communaury Aerosol inlet	530	n/a
	Photomètre Léger Aéroporté pour la Surveillance des Masses d'Air	PLASMA	roof-mounted	340–2250	n/a
Chemical composition	Filter sampling	n/a	AVIRAD inlet	n/a	n/a
	Single particle soot photometer, Droplet Measurement Technologies	SP2	Communaury Aerosol inlet	1064	0.08–0.5

vertical profiles have also been obtained during every landing/taking off and during pre-scheduled vertical profiles (Torres et al., 2016). Finally, upward and downward radiative fluxes (SW and LW) have been measured onboard the ATR-42 by means of CMP22 and CGR4 radiometers calibrated before the campaign.

### 3.3 Remote-sensing observations onboard the F-20

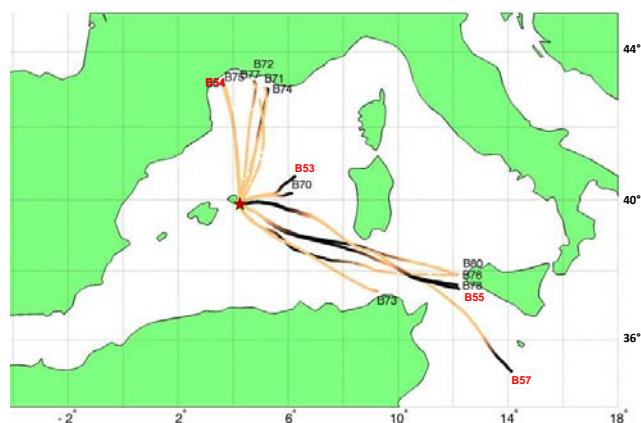
#### 3.3.1 LNG observations

The LEANDRE Nouvelle Generation (LNG) was used in its backscatter configuration during the ChArMEx-ADRIMED field operation onboard the SAFIRE F-20 aircraft. In the present campaign, the LNG system involved three elastic channels at 1064, 532 and 355 nm. Depolarization was also measured in a fourth channel operating at 355 nm. The profiles of atmospheric particulate extinction and backscatter coefficients are then retrieved. Zenith pointing lidar measurements were taken before most of the flights from the ground at the Cagliari airport (39.25° N, 9.06° E) in Italy.

Lidar observations allow the detection of biomass burning plumes (BBP) (see Sect. 4.3) arriving at the Cagliari airport on 28 June as described by Ancellet et al. (2015).

#### 3.3.2 OSIRIS observations

OSIRIS (Observing System Including Polarisation in the Solar Infrared Spectrum) is an instrument devoted to observation of the polarization and directionality of the solar radiation reflected by the surface–atmosphere system. OSIRIS is based on the same imaging radiometer concept as the POLDER instrument (Deschamps et al., 1994). It includes two optical systems: one for the visible and near infrared range (VIS-NIR, from 440 to 940 nm) and the other for the shortwave infrared (SWIR, from 940 to 2200 nm). OSIRIS has eight spectral bands in the VIS-NIR and six in the SWIR. During the SOP-1a campaign, OSIRIS was flown aboard the French F-20 aircraft and looked at nadir. The quantities used to derive the aerosol and cloud properties from OSIRIS are the normalized total and polarized (unitless) radiances. The aerosol algorithm used for OSIRIS over ocean is an optimal



**Figure 4.** Trajectories of the 14 BPCL drifting balloons launched from Minorca during the campaign. Dark portions along trajectories correspond to night-time conditions. The four red labels from B54 to B57 indicate balloons with an ozone sonde and the 10 others carried a LOAC instrument.

estimation method (OEM), similar to the one described in Waquet et al. (2013). For ocean targets, we use all the available angular and polarized information acquired in three spectral bands (490, 670 and 865 nm) to derive the aerosol parameters and some properties of the surface. A combination of two log-normal size distribution functions is assumed (i.e., a fine mode and a coarse mode) as well as a mixture of spherical and non-spherical particles (Dubovik et al., 2006). The main retrieved parameters are the aerosol AOD, SSA, the fraction of spherical particles within the coarse mode and the complex refractive index.

### 3.4 Balloon operations

Instrumented balloons were launched by the French Space Agency (CNES) from the airfield of Sant Lluís (39°51′55″ N, 4°15′15″, 55 m a.s.l.) on Minorca, less than 6 km NE of the Cap d'en Font station described above. Two types of balloons were launched to document dust transport events: (i) ascending dilatable rubber balloons, and (ii) quasi-Lagrangian spherical pressurized drifting balloons, called BPCL (Ballon Pressurisé de Couche Limite, or boundary-layer pressurized balloons).

A total of 15 sounding balloons were launched during the campaign between 12 June and 2 July (Table 4) and most balloons reached more than 30 km in altitude. Except for the first test balloon on 12 June, the payload of sounding balloons included a pair of meteorological sondes with temperature, humidity and GPS sensors allowing the retrieval of the position ( $\pm 10$  m), derived pressure ( $\pm 1$  hPa) and wind ( $\pm 0.15$  m s<sup>-1</sup>), respectively coupled, for certain flights (see Tables 4 and 5), to an ozone electrochemical sonde (Gheusi et al., 2015) and a LOAC OPC (Renard et al., 2015a, b). Balloon trajectories were confined within the area 39–41.2° N in latitude and 3–5° E in longitude.

BPCLs are designed to drift and make observations with a payload of a few kg in the lower troposphere for durations of up to several weeks (Vialard et al., 2009). Two versions were used, the standard one of 2.5 m in diameter, launched pressurized, which is limited to a maximum float altitude of about 2.5 km (Ducrocq et al., 2014), and one developed for ChArMEx of 2.6 m in diameter, launched unpressurized to reach a float altitude of more than 3 km in altitude. The payload was composed of a GPS system, PTU instruments on the upper pole of the balloon, a LOAC instrument on the lower pole of the balloon and two solar radiation sensors for upward and downward solar flux measurements. In addition a BPCL equipped with a modified ozone electrochemical sonde (Gheusi et al., 2015) instead of a LOAC was launched in parallel of a LOAC balloon on 4 occasions on 16 and 17 June (BPCL B53 and B54, respectively), and on 2 July (BPCL B55 and B57). 14 BPCL balloons were launched in total between 16 June and 2 July 2013 (Table 5). Trajectories are plotted in Fig. 4 with a visualization of daytime vs. night-time conditions. The longest flight in terms of distance (1053 km) and time duration (32.6 h) was the ozone BPCL B57, which passed the Sicily Strait and reached the southern limit of the authorized flight domain south-southwest of Malta. Communication failure occurred with the two balloons B53 and B70. Flights were automatically terminated by drilling the envelope at a distance of 30 km from the southeastern French coasts, the western Sicilian coast, or the northern Tunisian coast. BPCL float altitudes ranged between about 1850 and 3350 m a.m.s.l. (balloon B54 with an ozone sonde and B71 with a LOAC, respectively). Pairs of balloons with LOAC measurements were launched at different float altitudes to document Saharan dust transport on 16 June (2100 and  $\sim 3100$  m a.m.s.l.) and 19 June (2550 and  $\sim 3500$  m a.m.s.l.).

## 4 Overview of meteorological conditions

### 4.1 Synoptic situation

As mentioned below, the SOP-1a experiment was mostly characterized by moderate aerosol loading mainly controlled by the contribution of mineral dust particles. This situation is well observed through the AOD derived by MODIS (Tanré et al., 1997), MISR (Kahn et al., 2010), PARASOL (Tanré et al., 2011) or SEVERI (Thieuleux et al., 2005) sensors and averaged for the June–July 2013 period (Fig. 5), which show an average AOD ranging between 0.2 and 0.4 (at 550 nm) over the western and central Mediterranean basins. During the SOP-1a, distinct meteorological conditions have led to the transport of mineral dust over the basin as shown in Figs. 5 and 6. Figure 7 shows the dust mass concentration together with the geopotential and wind at 700 hPa for 16, 19, 22, 29 June and 2 July. In the following sections, we discuss the meteorological conditions (surface wind, sea level

**Table 4.** Characteristics of the 15 sounding balloon flights from Sant Lluís, Minorca, during the ChArMEx SOP1a/ADRI MED campaign.

No.	Date (2013)	Start time (UTC)	Ceiling altitude (m)	Latitude at ceiling	Longitude at ceiling	Sensors
BLD1	12 June	21:13	21 178	39.5156° N	04.3010° E	<i>T, U</i>
BLD2	15 June	21:40	32 119	39.9903° N	04.1801° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD3	16 June	10:29	31 880	40.0527° N	04.1524° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD4	16 June	21:13	33 390	40.0999° N	04.0118° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD5	17 June	10:01	32 744	40.2109° N	03.9672° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD6	17 June	18:25	33 411	40.2502° N	03.9402° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD7	18 June	16:34	35 635	40.5832° N	04.0515° E	<i>T, U, LOAC</i>
BLD8	18 June	21:17	21 507	40.6372° N	04.4889° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD9	19 June	10:12	30 902	40.6794° N	04.3691° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>
BLD10	19 June	13:48	36 129	40.6553° N	04.1970° E	<i>T, U, LOAC</i>
BLD11	27 June	09:43	35 832	39.7546° N	04.4746° E	<i>T, U, LOAC</i>
BLD12	28 June	05:36	36 293	39.4505° N	04.1709° E	<i>T, U, LOAC</i>
BLD13	29/30 June	23:31	36 310	39.6168° N	03.7383° E	<i>T, U, LOAC</i>
BLD14	30 June	14:03	36 319	39.8937° N	03.9568° E	<i>T, U, LOAC</i>
BLD15	2 July	10:27	32 833	39.9942° N	04.2996° E	<i>T, U, LOAC, O<sub>3</sub></i>

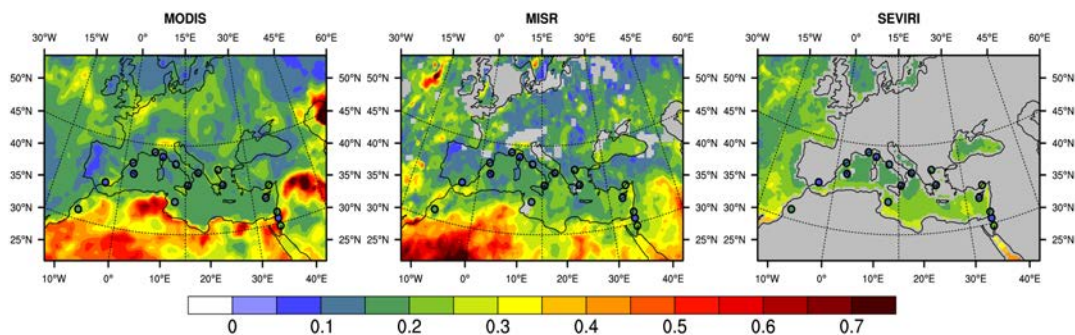
**Table 5.** Characteristics of the 14 BPCL drifting balloon flights.

Date and time of launch (UT)	Balloon Nbr and type of sensor	Last data time (UT)	Last data location	Trajectory length (km)	Flight duration (h)	Approximate float altitude (m)
16 June, 09:46	B74, LOAC	16 June, 21:51	43.0265° N, 05.2285° E	368	11:57	2100
16 June, 09:53	B53, O <sub>3</sub>	17 June, 00:26	40.6541° N, 06.2398° E	203	14:28	3000–3050
16 June, 09:58	B70, LOAC	16 June, 23:01	40.1825° N, 06.1293° E	174	13:17	3050–3150
17 June, 09:27	B54, O <sub>3</sub>	17 June, 16:49	43.1433° N, 03.5293° E	371	07:22	1850–2000
17 June, 09:29	B75, LOAC	17 June, 16:51	43.0868° N, 03.6866° E	365	07:23	1950–2050
17 June, 11:07	B72, LOAC	17 June, 19:07	43.2333° N, 04.7403° E	382	08:03	2750
19 June, 10:34	B77, LOAC	19 June, 17:59	43.1576° N, 04.7562° E	387	07:37	2550
19 June, 10:35	B71, LOAC	19 June, 15:03	43.0560° N, 05.1336° E	369	04:39	3250–3350
27 June, 10:00	B80, LOAC	28 June, 12:07	37.9165° N, 12.1605° E	759	26:19	2950–3050
28 June, 05:20	B73, LOAC	28 June, 17:24	37.4095° N, 09.2346° E	523	12:16	2650–2750
2 July, 13:03	B76, LOAC	03 July, 09:38	37.8897° N, 12.1312° E	731	20:39	3150–3250
2 July, 13:11	B57, O <sub>3</sub>	03 July, 22:43	35.0900° N, 14.1140° E	1053	33:44	3100–3200
2 July, 17:59	B55, O <sub>3</sub>	04 July, 02:20	37.3545° N, 12.21980° E	762	32:32	2400–2450
2 July, 17:50	B78, LOAC	04 July, 02:13	37.5639° N, 12.1507° E	755	32:25	2350–2450

pressure, 700 hPa geopotential and wind direction) for these different days in order to understand the transport of mineral dust aerosols over the Mediterranean.

Wind direction and intensity vertical profiles as simulated by the ALADIN-Dust (Mokhtari et al., 2012) model (outputs every 3 h) as a function of time, for the 11 June to 6 July period and for the whole SOP-1a period at three different sites, Ersa, Minorca and Lampedusa, are shown in Fig. 8. At the beginning of the SOP-1a, the northwestern Mediterranean area was under the influence of a large pressure ridge at 700 hPa, generating a westerly to southwesterly flow over Spain and southern France. Over Minorca, the near-surface (1000–850 hPa) winds were generally from the easterly to northeasterly directions (indicated by the blue color in Fig. 8), while the wind direction estimated between 700 and 500 hPa was clearly from the south-southwesterly direction (brown color), which is a favorable condition for

the transport of mineral dust above southern Spain and the Balearic Islands (Fig. 6). This point is well observed in Fig. 7, showing the geopotential at 700 hPa for 16 June. The general circulation at 700 hPa during this dust event indicates a reinforcement of the southwesterly winds in southern Spain advecting air masses with large concentrations of dust aerosols as shown by SEVIRI AOD (AOD of 0.4–0.5) for that day (Fig. 6). A low-pressure system moved from the British Isles towards the Gulf of Biscay and then the Iberian Peninsula between 17 and 20 June, leading to veering winds that became southerly over the northwestern Mediterranean. Thus, in Minorca, the direction of the wind changed from an easterly to a southerly direction between 1000 and 850 hPa. A more pronounced southerly–southwesterly flow was also observed at 700 hPa in Minorca (19–21 June) as shown by the geopotential at 700 hPa. This circulation characterized by the presence of the low geopotential over the Gulf of



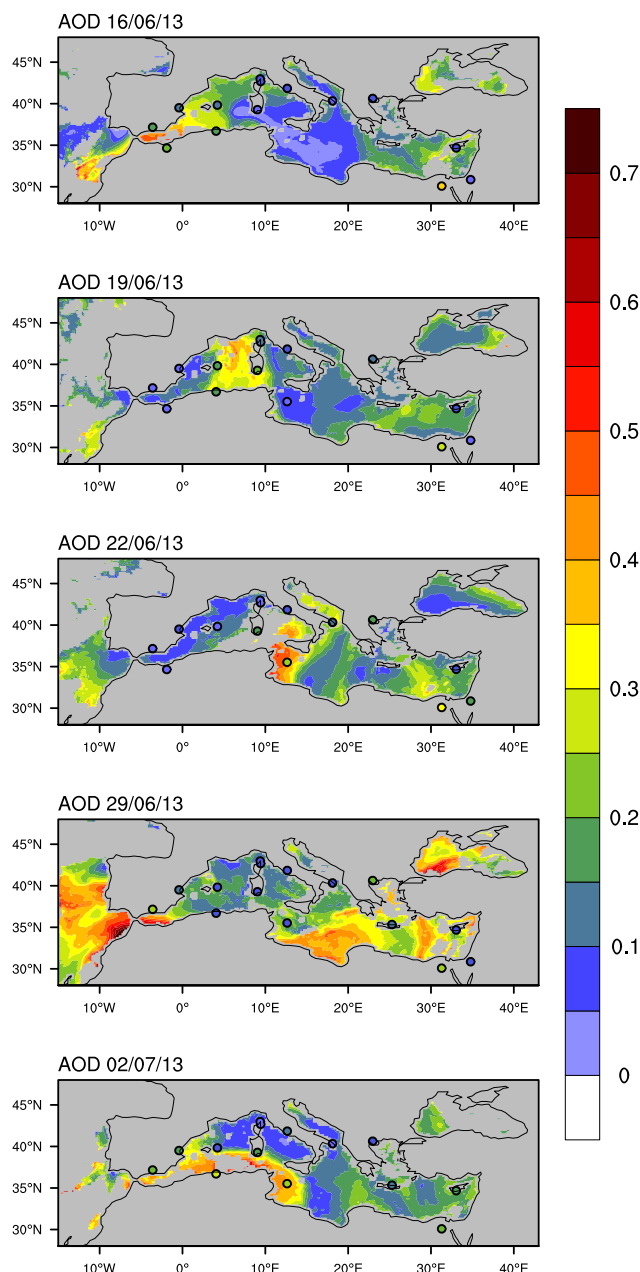
**Figure 5.** Total AOD (550 nm) obtained from the MODIS, MISR and SEVIRI (sea only) sensors for the June–July 2013 period. The AERONET/PHOTONS AOD is also indicated.

Biscay induced a strong southerly flow at 700 hPa between the Balearic Islands and Corsica associated with large dust optical depth concentrated in this zone as shown by SEVIRI AOD (AOD of 0.3–0.4) for 19 June (Fig. 6). This period of the SOP-1a corresponds to the two ATR-42 flights 33 and 34 (Fig. 3). After 20 June, this low-pressure system moved eastward, generating a trough located between France and Italy, and inducing a waving westerly flow over the northwestern Mediterranean. As a result, the aerosol loading over the western basin decreased between 21 and 24 June, but the westerly (northerly) winds observed at 700 hPa in Minorca (Ersa) (Fig. 8) reinforced the transport of dust aerosols over the central basin and the Lampedusa station (where winds were from the northwesterly direction at 3 km height). These meteorological conditions lead to an increase of the dust optical depth over the central Mediterranean as shown by the SEVIRI instrument and AERONET/PHOTONS data. Between 25 and 29 June, a northwesterly flow set up between the Gulf of Lion and Sicily. The vertical profiles of the wind direction reveal a remarkable transition on 29 June with significant changes in direction from westerlies to north-northwesterlies, notably over the Minorca and Ersa stations above 850 hPa. The 700 hPa geopotential field on 29 June at 12:00 UTC from the ERA-Interim reanalysis (Fig. 7) shows a maximum over the Atlantic Ocean, whereas a deep low-pressure system was located over southern Algeria. This strong geopotential gradient leads to intense northerly to northwesterly winds at 700 hPa over the western basin, leading to significant AOD over Libya (AOD of 0.4–0.5) and the Alboran Sea (AOD of 0.5–0.6) as shown in Fig. 6. These meteorological conditions lead to low dust optical thickness over the central Mediterranean as observed by AERONET/PHOTONS data. Finally, during the last period of the SOP-1a experiment (30 June–5 July), weather conditions became more anticyclonic over the region, while low systems were confined to northern Europe. Figure 8 shows northwesterly winds in the whole troposphere in Lampedusa and Minorca, limiting the presence of dust aerosols to the southern part of the northwestern Mediterranean.

## 4.2 Surface temperature, cloud cover and precipitation

In terms of surface temperature, which is one of the most important meteorological variables that control biogenic or biomass burning aerosol emissions over the Euro-Mediterranean region, the summer 2013 was mostly characterized by moderate values as shown in Fig. 9. Indeed, during the SOP-1a period, surface temperatures (in °C and at 12:00 UTC) derived from NCEP reanalysis (Kalnay et al., 1996) for different days reveal moderate values, especially over the western Mediterranean region (southwestern France and Spain). One can observe temperatures of about 15–20 °C (at 12:00 UTC) over Spain and Portugal, which are one of the main regions of the Mediterranean where large fire events occur. In addition, part of France was also characterized by moderate surface temperature but slightly higher than over Spain especially over northeastern regions. A strong west to east gradient is observed over Europe with strongest values over the eastern regions (around 30 °C over Greece and the Balkans) compared to the western basin. A similar conclusion is obtained over the Mediterranean Sea with differences of about 5 °C between the eastern (around 25 °C for the SOP-1a period) and the western (around 20 °C) basins. Among other factors (such as cloud fraction and shortwave radiations), such moderate surface temperatures do not create favorable meteorological conditions to produce intense Mediterranean biomass burning events and/or significant production of secondary organic and inorganic aerosols. Concerning smoke aerosols, GAFS-V1 emission data, analyzed for the SOP-1a period, do not reveal important primary BC and OC flux emissions (not shown). This is consistent with the APIFLAME biomass burning emission estimates (Turquety et al., 2014) data as reported by Menut et al. (2015).

During the SOP-1a, the cloud cover retrieved over the Euro-Mediterranean region (excluding the Mediterranean Sea) from CRU (Climate Research Unit) data (Harris et al., 2013) (Fig. 10) indicates the largest values (between 75 and 95 %) over the French, Benelux and eastern Europe regions. In parallel, southern France, as well as western Spain and the



**Figure 6.** AOD MSG/SEVIRI observations for 5 different days during the SOP-1a experiment (16, 19, 22, and 29 June and 3 July). The AERONET/PHOTONS AOD is also indicated.

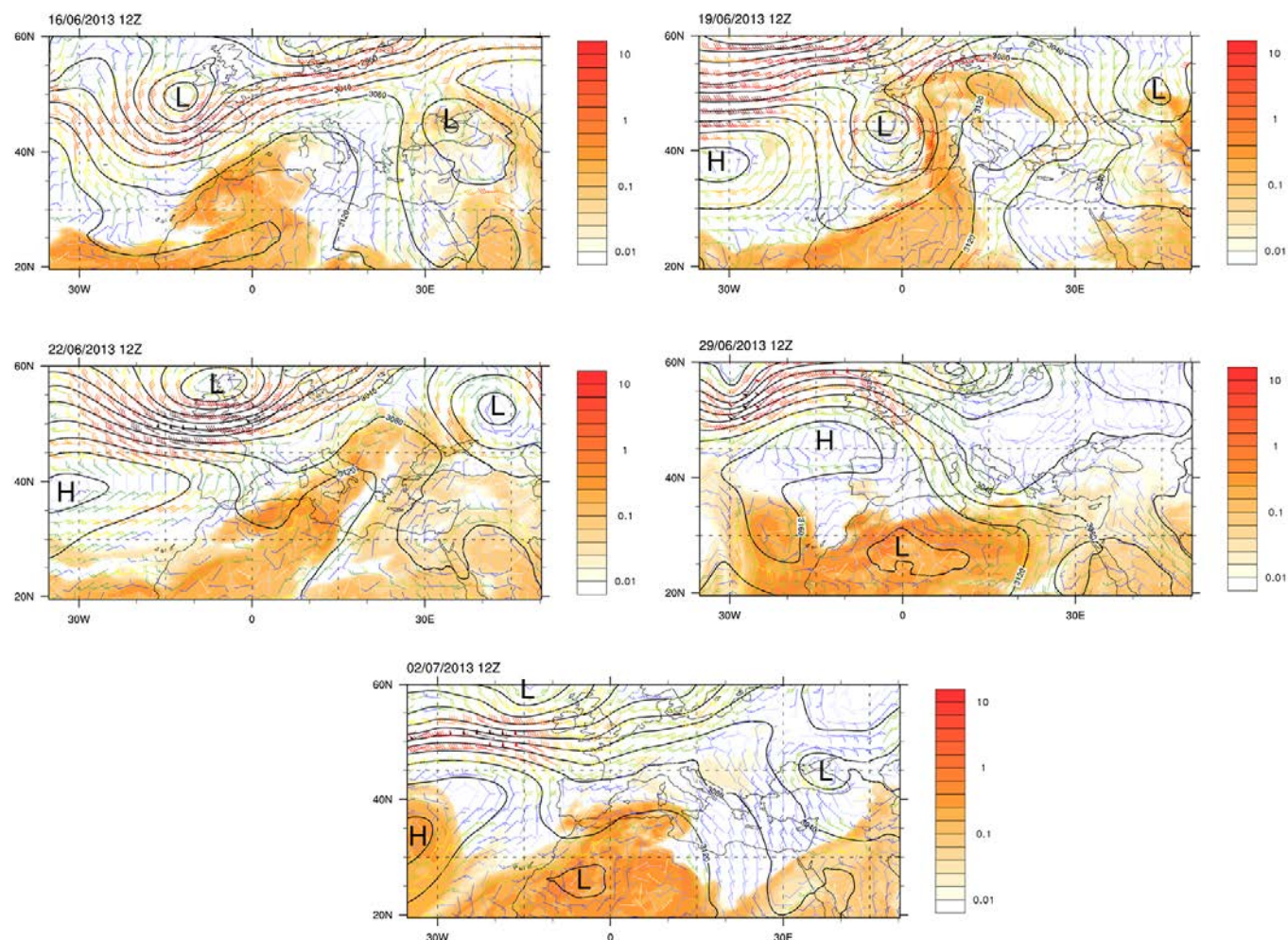
Balkans are characterized by moderate cloud cover with values around 50–60 % for June 2013. Over the Mediterranean coast, the cloud cover strongly decreases for most of countries, with values lower than 40 %. Such spatial cloud cover (observed during the SOP-1a) over the Euro-Mediterranean could limit the photochemical processes over the main anthropogenic sources (such as the Benelux and Po Valley) and the associated production of secondary aerosols. This could explain for a part the low to moderate contribution of fine anthropogenic particles to the total atmospheric load-

ing during the SOP-1a. In parallel, the mean precipitation (averaged for June 2013), obtained from the TRMM (Tropical Rainfall Measuring Mission) instrument over land and sea (CRU observations are only available over land; see Fig. 10), are found to be very heterogeneous over the Euro-Mediterranean continental region, with some important values over the Balkans, Alps and eastern Europe (from 100 to 250 mm for the month of June 2013) and moderate values over Italy, Croatia, western France and Benelux (80 to 100 mm, as shown in Fig. 11). Over the Mediterranean Sea, southern Spain and northern Africa, the precipitation was smaller, with most of the values lower than 20 mm during the SOP-1a.

To summarize, this global view of the synoptic situation, cloud cover and regional precipitation patterns indicates that the meteorological conditions during the experimental campaign were favorable to moderate mineral dust emissions, associated with a weak contribution of anthropogenic aerosols over the western basin. This important characteristic of the SOP-1a is well observed in Fig. 12, which indicates the AOD anomalies (calculated for the period 2000–2013) of summer 2013 compared to all AOD summer derived from MODIS and MISR data. Indeed, negative AOD anomalies of about  $-0.05$  are found over the western Mediterranean basin for the summer of 2013, both from MODIS and MISR observations. To conclude, it appears that the period of observations during the SOP-1a was characterized by aerosol concentration slightly lower but in the same range of magnitude that usually observed during summer over the western Mediterranean. The level of aerosol concentration was found to be moderate but allows investigating several dust and sea-spray events as well as an interesting intense biomass burning plume advected from North America.

### 4.3 An aged smoke plume advected over Europe

During the SOP-1a, several large forest fires occurred in North America (Colorado, Alaska, Canada) from 17 to 24 June 2013, as identified by the MODIS instrument. The absorbing aerosol index produced from GOME-2 by KNMI (<http://www.temis.nl/aviation/aai-pmd-gome2b.php?year=2013>) shows that a large smoke plume crossed the North Atlantic and reached western European coasts on 25 June. Main fire areas, with fire radiative power higher than 50 MW (Shroeder et al., 2010), have been detected over Canada (Ancellet et al., 2015). Average MODIS AOD during the same period (23 to 28 June 2013) indicate values as high as 1 over the Atlantic Ocean, suggesting that a significant fraction of the aerosol produced by the fires was transported to western Europe during the ChArMEx/ADRIMED field campaign. To investigate whether the western Mediterranean has been impacted by these fires, a forward simulation of the FLEXPART (Ancellet et al., 2015) Lagrangian plume dispersion model has been conducted to quantify the spatial extent of the fire plume transport for 11 days. Fire emissions



**Figure 7.** Geopotential and wind intensity at 700 hPa (ERA-Interim reanalysis), and mass dust concentration (in  $\text{mg m}^{-3}$ ) simulated from the ALADIN-Dust model for 6, 19, 22, 29 June and 2 July at 12:00 UTC.

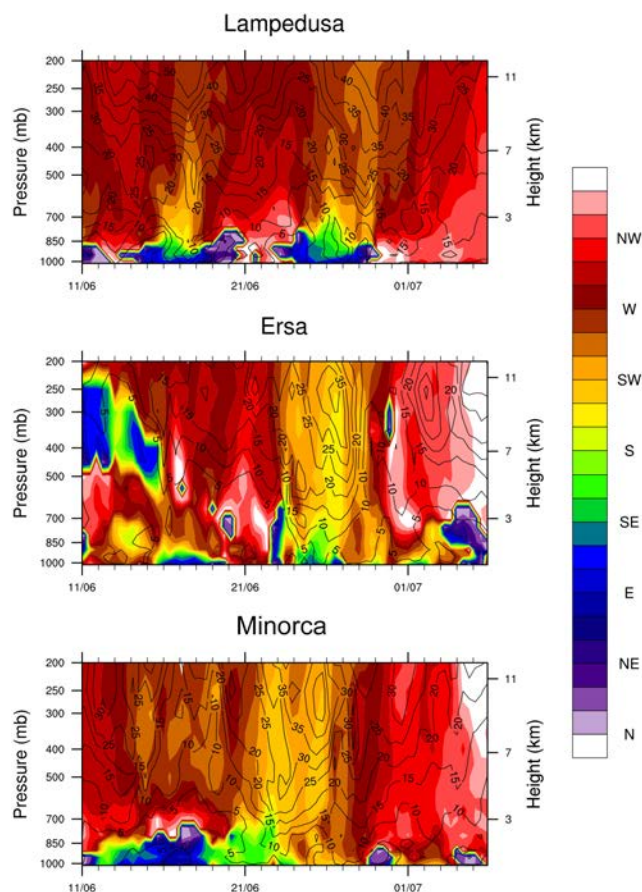
areas were identified by MODIS observations over several locations in Canada and Colorado. The aerosol mass is emitted in the transport model from 17 to 28 June in a 3 km layer as suggested by the CALIOP lidar observations over Canada. The biomass burning plume reaches much lower latitudes over Europe, down to the western Mediterranean 4–10 days after the emission in Canada. During the SOP-1a, the plume was mainly present in the altitude range of 2.5–4.5 km and has been sampled by many remote-sensing and in situ instruments on 27 and 28 June: at the Minorca and Cagliari surface stations, and between Sardinia and Lampedusa onboard the ATR-42 aircraft.

## 5 Overview of aerosol physical-chemical-optical properties, vertical profiles and local direct radiative forcing

### 5.1 Aerosol physical and chemical properties

#### 5.1.1 Aerosol mass and number concentration at the two super-sites

First, PM concentrations between the two different stations are reported in Fig. 13, which reports the daily time series of  $\text{PM}_{10}$  and  $\text{PM}_{10}$  at Ersar, as well as  $\text{PM}_{10}$  and  $\text{PM}_{40}$  at Lampedusa. The results indicate a significantly higher mass concentration at Lampedusa compared to Ersar. Indeed, the mass concentration observed at Lampedusa is comprised between 10 and  $30 \mu\text{g m}^{-3}$ , with a mean of  $21 \mu\text{g m}^{-3}$ , which is two times higher than the averaged  $\text{PM}_{10}$  ( $\sim 9 \mu\text{g m}^{-3}$ ) measured at Ersar. One can note the significant peak of  $\text{PM}_{40}$  (maxima of  $75 \mu\text{g m}^{-3}$ ) at Lampedusa during the 24 to 26 June period that corresponds to a significant production of primary



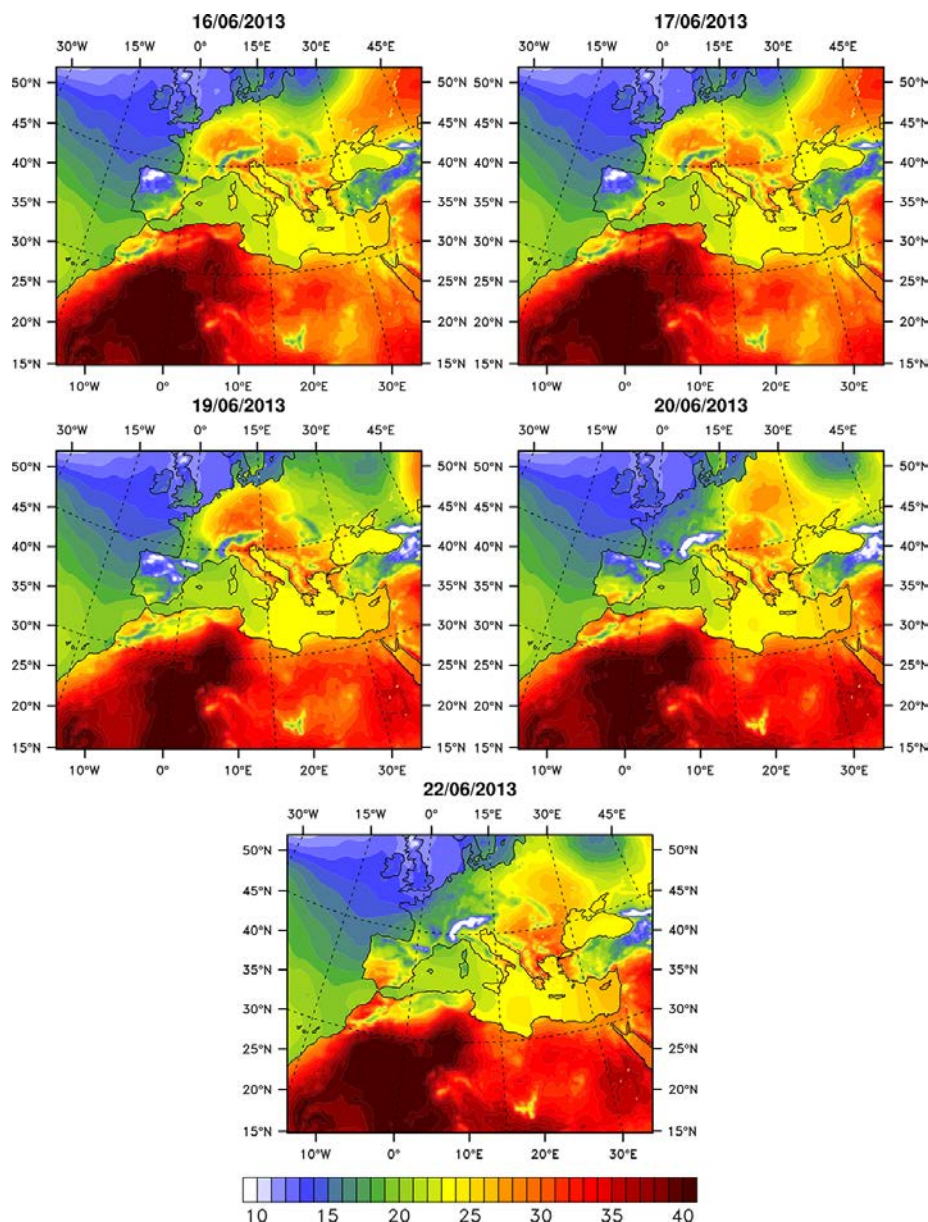
**Figure 8.** Wind profiles between 1000 and 200 hPa during the SOP-1a experiment for three different sites (Ersa, Lampedusa and Minorca) simulated from the ALADIN-Dust model. The wind intensity (in  $\text{m s}^{-1}$ ) is also reported at the different stations.

marine aerosols. Finally, the  $\text{PM}_{10}$  concentration at Ersa is found to be almost constant during the period of the campaign, with a mean value of  $6 \mu\text{g m}^{-3}$ . In order to take into account the difference of altitudes between the two sites of Lampedusa and Ersa, we have applied a correction factor to  $\text{PM}_{10}$  observed at Ersa (530 m) for estimating a new  $\text{PM}_{10}$  concentration corresponding to the altitude of Lampedusa. In that sense, we have applied the logarithmic law reported by Piazzola et al. (2015) using a value of 0.75 for the factor  $s$  to correct the mass concentration of sea-spray aerosols only. The calculated mean value of  $\text{PM}_{10}$  is about  $12 \mu\text{g m}^{-3}$  (Fig. 13), closer to the mean value observed at Lampedusa ( $21 \mu\text{g m}^{-3}$ ). In addition, the background aerosol number concentrations (for  $D_p > 0.01 \mu\text{m}$ ) observed within the boundary layer in Corsica averaged  $\sim 2000 \text{ cm}^{-3}$  (not shown). The lowest concentrations ( $\sim 200 \text{ cm}^{-3}$ ) resulted from aerosol activation to cloud droplets, and scavenging from cloud droplets and rain drops, while high concentrations as high as  $10\,000 \text{ cm}^{-3}$  were observed during pollution events from continental European air masses. The number concentrations showed a diurnal cycle suggesting that the

site was situated within the marine boundary layer during daytime and within the free troposphere during night-time. The analysis of the diurnal variation of the particle number size distribution further indicates that nucleation events also increased the particle number concentration during daytime, about one-third of the time (Sellegrì et al., 2016). The periods of high aerosol number concentrations detected between 12 and 25 June were also dominated by a single mode with diameters between 30 and 150 nm. The small Aitken mode ( $d_g < 50 \text{ nm}$ ) associated with pollution events suggests a relatively fresh aerosol that has been formed during transport from the European continent. The largest mode ( $d_g \sim 150 \text{ nm}$ ) occurred during the dust event on 18 June.

### 5.1.2 Columnar particle volume size distribution

We have used the column-integrated particle size volume distributions derived from AERONET/PHOTONS sky radiance measurements (Dubovik et al., 2000). These size distributions allow investigation of the changes in aerosol size distribution between different stations during the SOP-1a and over the western basin. Four different stations have been studied, which include the two super-sites of Lampedusa and Ersa, as well as the aircraft and balloon base stations, Cagliari and Cap d'En Font, respectively. Daily volume size distributions for both sites are represented in Fig. 14, as well as the averaged (red curve) size distribution for the whole period (1 June to 5 July) and the number of observations. In addition, the mean values of the volume radius, concentration of fine and coarse mode and the standard deviations of the volume size distribution are reported in Table 6. It should be noted that the scales of the y axis are different for each figure. One can note the bimodal size distribution for both stations with large spread of radius values, especially for the coarse mode. The most important concentrations are obviously observed in Lampedusa, near the mineral dust sources, with maxima of  $\sim 0.12 \mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$  for the coarse mode. In parallel, the lowest concentrations are observed at the Ersa station due to the absence of intense polluted photochemical or smoke aerosol events over southern France and Italy during the SOP-1a. In that sense, the mean contribution (red curve) of the coarse mode to the aerosol volume size distribution appears to be predominant at most sites, except at the Ersa station. However, the inclusion of the corrected factor (Piazzola et al., 2015) for taking into account the altitude of the Ersa site reduces slightly the differences in the concentration of the coarse mode with the Lampedusa station (see Table 6). This point is well noted for the Cap d'En Font station, where the concentration of each modes appear as equivalent, due to the absence of pollution from the Iberian Peninsula during the period of observations. For this site, it is interesting to note the intense peak of concentration ( $0.08 \mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$ ) for 27 June, which is due to the transport of an important smoke plume over the Mediterranean (see Ancellet et al., 2015; Chazette et al., 2015). Finally, the contribution of the coarse



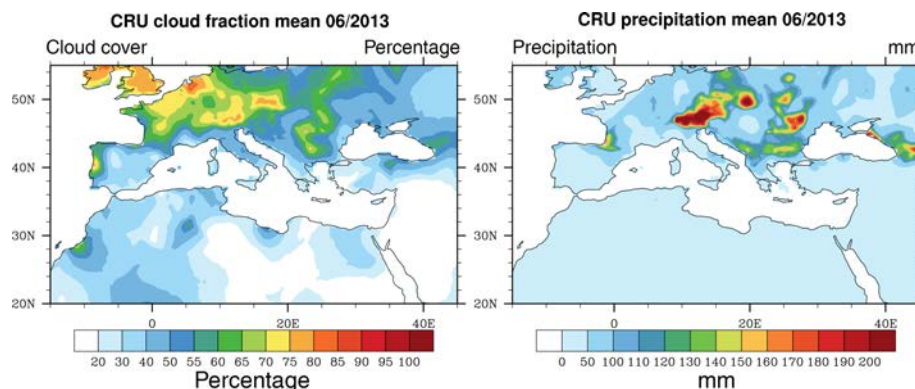
**Figure 9.** Surface temperature (at 12:00 UTC) obtained from NCEP re-analysis for 16, 17, 19, 20 and 22 June.

mode clearly increases for the two other, more southern Italian sites of Cagliari and Lampedusa, which are more affected by the mineral dust compared to Ersa and Cap d'En Font. The variability of AERONET products collected over a period of 4 years at Ersa and Palma de Mallorca, near Cap d'En Font, is reported in Sicard et al. (2015b). It is interesting to note the variability ( $\pm 0.05$ ) in the derived size of the coarse mode at Lampedusa (see Table 6), which will be analyzed with regards to dust sources in a future study. The derived volume concentrations over these two stations highlight the moderate dust activity occurring during the SOP-1a experiment, when compared to stations under high dust conditions. As an example of comparisons, Dubovik et al. (2002) reported

a large range of concentration for the coarse mode for dusty sites (such as Cape Verde or Solar Village), which are characterized by larger concentrations, close to  $0.30 \mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$ . In parallel, the Bahrain (Persian Gulf) AERONET station is characterized by a concentration of  $0.14\text{--}0.15 \mu\text{m}^3 \mu\text{m}^{-2}$ .

### 5.1.3 Particle size distribution during transport

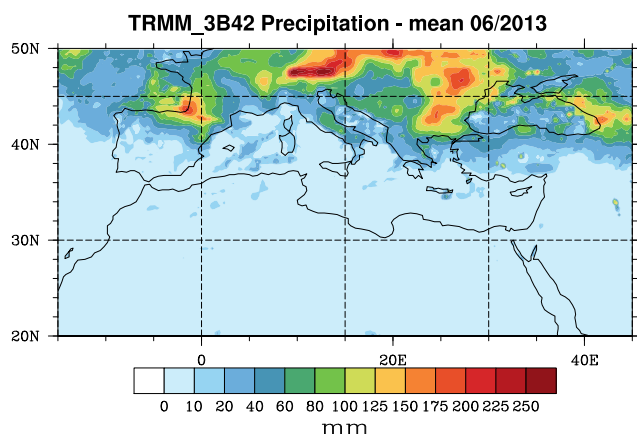
Figure 15 presents an example of the evolution of the aerosol particle number concentrations in the 19 particle size classes of the LOAC instrument as measured along the northward trajectory of BPCL balloon B74 from Minorca to the French coast (see Fig. 4). The balloon was launched at 09:46 UTC on 16 June 2013 during a moderate desert dust event shown



**Figure 10.** Monthly cloud cover and precipitation (over land only) derived from the Climate Research Unit (CRU) data for June 2013.

**Table 6.** Main aerosol volume size distribution characteristics:  $r_{vf}$  ( $\mu\text{m}$ ),  $\sigma_f$ ,  $r_{vc}$  ( $\mu\text{m}$ ),  $\sigma_c$ ,  $C_{vf}$ , and  $C_{vc}$ , for the four different AERONET/PHOTONS stations: Ersa, Lampedusa, Cagliari and Cap d'En Font.  $C_{vi}$  denotes the particle volume concentration,  $r_{vi}$  is the median radius, and  $\sigma_i$  is the standard deviation. Each average value in the table is accompanied by its standard deviation (this is not an accuracy of the retrieval). As mentioned in the text, the concentration of the coarse mode at Ersa has been corrected to be comparable to results at other stations closer to the sea surface, using the logarithmic law proposed by Piazzola et al. (2015).

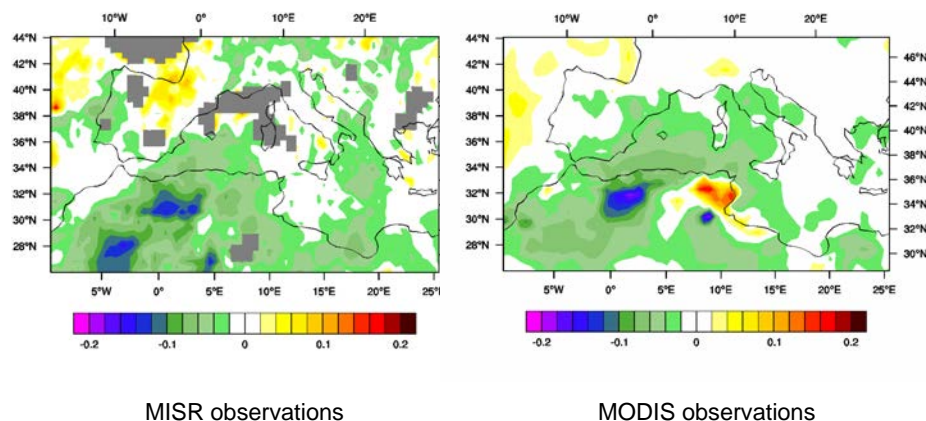
	Ersa	Ersa corrected	Lampedusa	Cagliari	Cap d'En Font
Number of observations	25		18	20	17
$r_{vf}$ ( $\mu\text{m}$ )	$0.16 \pm 0.02$	n/a	$0.14 \pm 0.01$	$0.15 \pm 0.03$	$0.17 \pm 0.03$
$\sigma_f$	$0.43 \pm 0.03$	n/a	$0.50 \pm 0.06$	$0.46 \pm 0.04$	$0.45 \pm 0.04$
$r_{vc}$ ( $\mu\text{m}$ )	$2.49 \pm 0.43$	n/a	$2.36 \pm 0.48$	$2.52 \pm 0.28$	$2.48 \pm 0.30$
$\sigma_c$	$0.69 \pm 0.03$	n/a	$0.68 \pm 0.05$	$0.71 \pm 0.04$	$0.71 \pm 0.04$
$C_{vf}$ ( $\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ )	$0.02 \pm 0.01$	n/a	$0.02 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$	$0.02 \pm 0.01$
$C_{vc}$ ( $\mu\text{m}^3/\mu\text{m}^2$ )	$0.03 \pm 0.01$	0.04	$0.08 \pm 0.05$	$0.05 \pm 0.03$	$0.04 \pm 0.03$



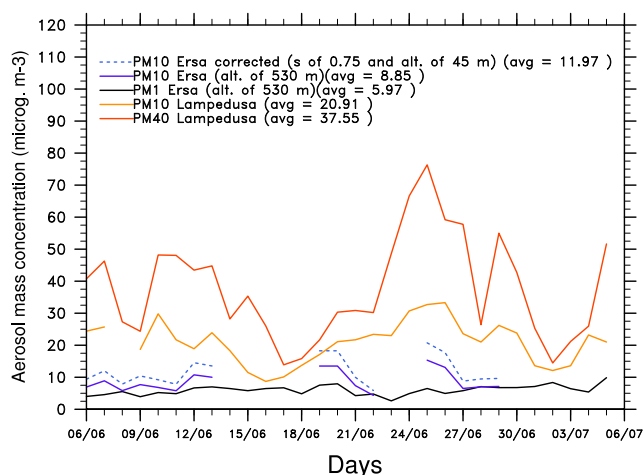
**Figure 11.** Same as Fig. 10 but for the Tropical Rainfall Measuring Mission (TRMM) precipitation observations.

at the top of Fig. 6 (AERONET-derived AOD at 550 nm of 0.15). It drifted at a constant altitude of  $\sim 2.1$  km at the bottom of the African dust layer observed with the WALI lidar at Minorca (not shown; see Chazette et al., 2015), and

was automatically forced to land on the sea before reaching the coast south of Marseilles, after a 12 h flight of 368 km. The dominant mineral dust nature of the particles was confirmed by the LOAC particle typology measurements (Renard et al., 2015b). The figure illustrates that LOAC has detected large particles of up to  $50 \mu\text{m}$  in diameter, although the plume originated from northern Africa a few days before (Renard et al., 2015b). The concentrations of particles remained relatively constant during the flight, suggesting either no significant sedimentation of the largest particles during the flight or compensation by particles coming from above. BPCL balloon B70 launched a few minutes later drifted at an upper altitude of  $\sim 3.1$  km and followed a different trajectory towards the east (Fig. 4), but showed a quite similar extended particle size range with larger concentrations in almost all channels except the extremes (not shown). The four other drifting balloons launched in the dust layer during this event on 17 and 19 June (Table 5) did confirm the presence of very large particles ( $> 20 \mu\text{m}$ ), which cannot be reported by the AERONET particle size distribution retrieval algorithm (Hashimoto et al., 2012). In addition, observations of large particles ( $> 15 \mu\text{m}$ ) were systematically found during



**Figure 12.** AOD (550 nm) anomaly for summer 2013 estimated from the MODIS and MISR sensor data.



**Figure 13.** Time series of daily PM mass concentrations estimated at the Lampedusa (PM<sub>40</sub> and PM<sub>10</sub>) and Ers (PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub>) super-stations. Problems in PM<sub>10</sub> data acquisition that occurred at Ers explain the gaps. PM<sub>10</sub> Ers corrected curves correspond to PM<sub>10</sub> estimated at an altitude of 45 m to be comparable with Lampedusa results, following the logarithmic law provided by Piazola et al. (2015) (see text in Sect. 5.1.1 for details).

all other LOAC balloon flights drifting in African dust layers, which will need further analysis to better understand the process that can maintain such large particles in suspension during several days.

Concerning the aerosol microphysical properties, aircraft observations have allowed us to investigate the vertical structure of aerosol size distribution showing particles characterized by large sizes ( $> 10 \mu\text{m}$  in diameter) within dust plumes. In addition, in most of the cases, a coarse mode of mineral dust particles, characterized by an effective diameter  $D_{\text{eff},c}$  ranging between 5 and  $10 \mu\text{m}$ , has been detected within the dust layer located above the MBL. Such values are found to be larger than those referenced in dust source regions during FENNEC, SAMUM1 and AMMA, as well as measure-

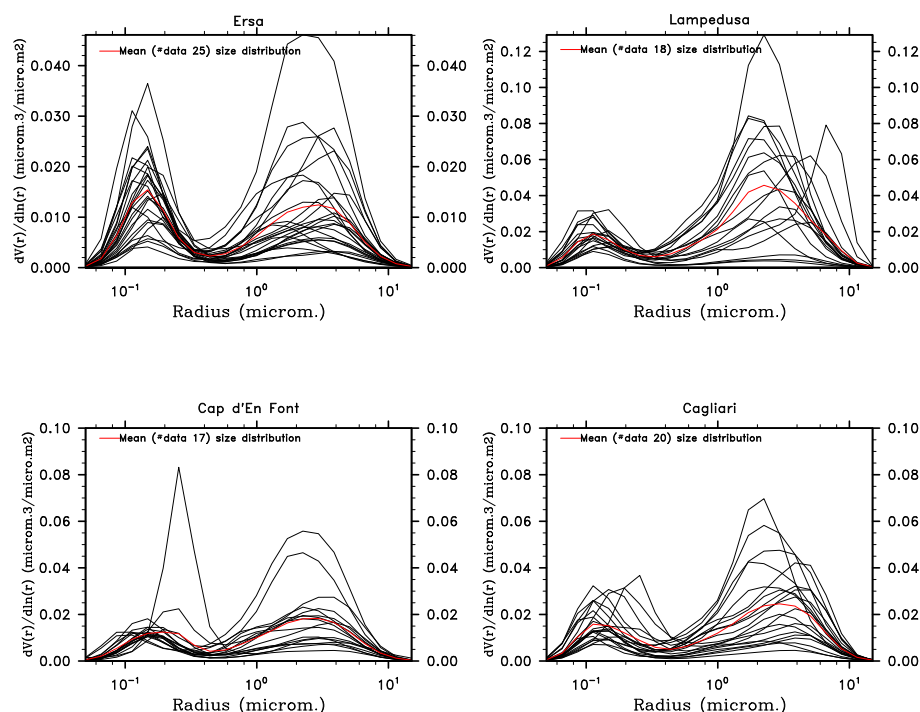
ments in the Atlantic Ocean in the Cape Verde region during SAMUM-2 and at Puerto Rico during PRIDE. The complete analysis of aerosol size distribution is detailed in Denjean et al. (2015).

#### 5.1.4 Aerosol chemical composition

In terms of aerosol chemical properties, an example of averaged mass size distributions for carbonaceous (elemental and organic carbon, EC and OC) species (mass size distributions of inorganic and mineral dust aerosols are not shown) obtained at Ers from a 12-stage cascade impactor (DEKATI system; see Table 1) is reported in Fig. 16. The aerosol chemical properties obtained from the PILS instrument at Ers are detailed in Claeys et al. (2016). As mentioned in Table 1, the measurements were obtained by using a 2-day collection period in order to obtain a sufficient aerosol mass on filters for chemical analyses. This system provides the speciation of the mass size distribution, including fine and coarse fractions. Such information is very useful for deriving optical properties using Mie calculations (Mallet et al., 2011) for the main particle types (sulfates, ammonium, nitrates, sea spray, dust, black and organic carbon). This provides crucial information on key radiative properties that are classically used in regional climate models (mass extinction efficiencies, SSA and asymmetry parameter). Furthermore, it allows one to assess the spectral dependence of radiative properties, which cannot always be estimated from in situ instrumentation.

Concerning OC (blue curves), observations clearly report a bi-modal mass size distribution with two different peaks for the majority of cases. The first (almost constant) peak is found in the  $0.4\text{--}0.5 \mu\text{m}$  size range in diameter and more occasionally a second one occurs in the coarse fraction around  $3 \mu\text{m}$ . Compared to the few available data over the western Mediterranean, these mass size distributions are found to be different from those obtained over southern France, especially for the accumulation mode. Indeed, during the ESCOMPTE experiment in southern France, Mallet

## SOP-1a AERONET/PHOTONS Volume size distribution

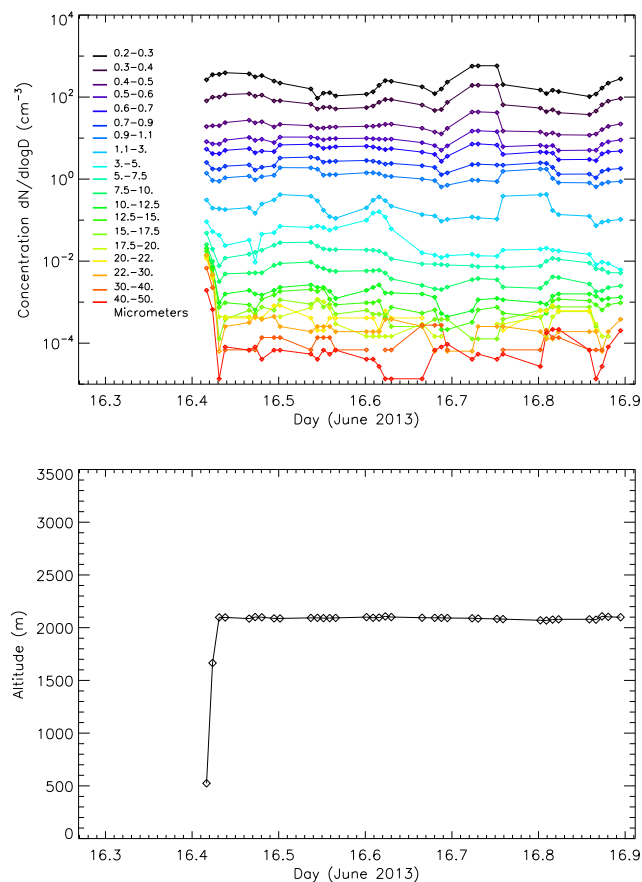


**Figure 14.** AERONET/PHOTONS volume size distribution derived at four different stations: Ersa, Lampedusa, Cagliari and Cap d'En Font (the red curve represents the mean of observations). The characteristics of the volume size distribution are provided in Table 6.

et al. (2003) also observed a bi-modal size distribution for OC aerosols but with a finer accumulation mode observed in the 0.1–0.2  $\mu\text{m}$  size range. Differences between the two observations is likely due to the proximity of anthropogenic sources during the ESCOMPTE experiment compared to the Ersa station, where the possible ageing of carbonaceous particles could affect the size of aerosols. On the contrary, the coarse mode of OC appears in the same range of size, around 3  $\mu\text{m}$ , for both experiments. Compared to data obtained in the eastern Mediterranean basin, the OC mass size distributions are in good agreement with those estimated by Sciare et al. (2003) in Crete during the MINOS campaign, with two modes around 0.4 and 3  $\mu\text{m}$ . The EC (green curves in Fig. 16) mass size distribution is also characterized by a bi-modal size distribution, with two modes well correlated with the mass size distribution of OC, except for the 16–19 June period (dust episode), where the size of EC fine mode is higher ( $\sim 0.5$ – $0.6 \mu\text{m}$ ) than OC aerosols, the EC coarse mode remaining similar at  $\sim 3 \mu\text{m}$ . This reveals a possible external mixing of carbonaceous aerosols for this event.

It should also be noted that the EC concentrations observed at the Ersa station are logically (due at least to the altitude of the station and the absence of intense pollution during the SOP-1a; see Sect. 4) lower ( $0.39 \mu\text{g m}^{-3}$ ) than EC concentrations ( $\text{PM}_{2.5}$ ) reported by Eleftheriadis et al. (2006) from the eastern Mediterranean during the summer season

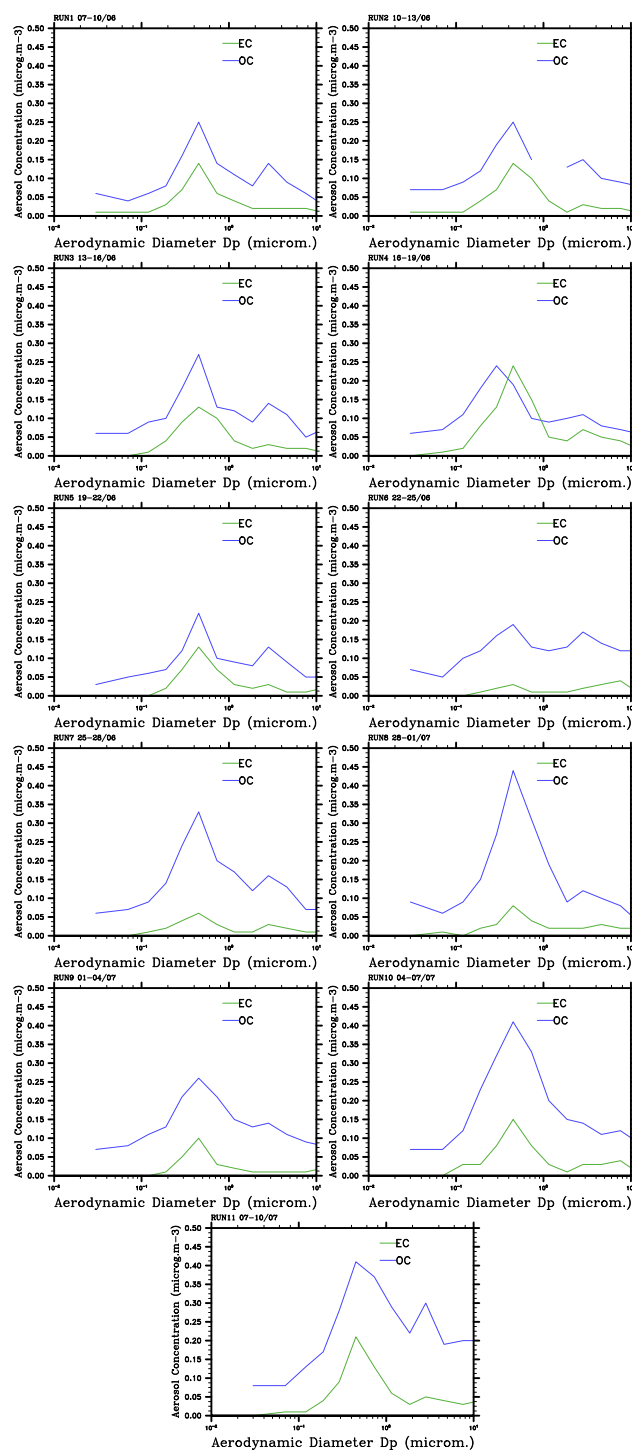
( $0.6 \mu\text{g m}^{-3}$ ) in July 2000. The same ascertainment is obtained on OC concentrations with higher values ( $4.2 \mu\text{g m}^{-3}$ ) reported by Eleftheriadis et al. (2006) compared to observations at Ersa ( $1.5 \mu\text{g m}^{-3}$ ). Concerning the modes of the OC and EC particle mass size distributions, the two identified modes detected in Ersa are consistent with those reported by Mallet et al. (2011) at the Porquerolles coastal island (southeastern France), who also detected two (fine and coarse) different modes of the mass size distributions for EC (0.3–0.4 and 4–6  $\mu\text{m}$ ) and OC (0.3 and 5–6  $\mu\text{m}$ ) aerosol particles. In most cases, we observed at Ersa lower concentrations of EC particles for both modes compared to OC aerosols. The mass of OC and BC observed during the SOP-1a, for both modes, are found to be equivalent with those observed by Sciare et al. (2003) in Crete in summer 2001. They report mean values of 0.30 and  $0.15 \mu\text{g m}^{-3}$  for fine OC and BC, respectively. During the MINOS experiment, the mean concentrations for OC and BC coarse modes were about 0.1 and  $0.02$ – $0.03 \mu\text{g m}^{-3}$ , what is also consistent with the observations at Ersa. Finally, the mass concentrations obtained for each mode at Ersa are logically lower than those obtained during the ESCOMPTE experiment, located much closer to pollution sources. For example, EC and OC fine-mode concentrations were, respectively, between 0.8 and  $2.8 \mu\text{g m}^{-3}$  and between 3.1 and  $6.9 \mu\text{g m}^{-3}$  during ESCOMPTE (Mallet et al., 2003). In addition, and as discussed in Sects. 4.1 and



**Figure 15.** Particle size distribution measured with a LOAC during the  $\sim 12$  h flight of BPCL balloon B74 drifting from Minorca towards Marseilles (see the trajectory in Fig. 4). The first and last 20 min correspond to the ascending and descending phases of the quasi-Lagrangian flight that occurred at a constant altitude of  $2091 \pm 10$  m.

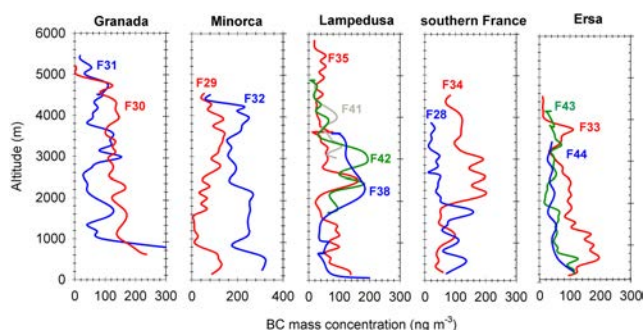
4.2, the meteorological conditions (surface temperature, meteorological synoptic situations) observed during the SOP-1a campaign were not favorable to producing large concentrations of polluted or smoke aerosols, compared to the ESCOMPTE campaign, where AOD as large as 0.3–0.5 (in the visible range) has been observed due to important concentrations of anthropogenic-polluted particles. It should be noted that, in parallel to filter analyses, higher time-resolved observations from the PILS systems have been deployed at the two stations of Lampedusa and Ersu (Claeys et al., 2016) during the SOP-1a.

In parallel to filter chemical analysis, over 700 000 single particle mass spectra were generated by the A-TOFMS instrument during the sampling period (not shown). A  $K$ -means algorithm ( $K = 80$ ), as described in detail by Healy et al. (2010) and Gross et al. (2010), was used to classify aerosol mass spectra into different particle classes. More than 40 distinct ATOFMS particle classes were identified and subsequently grouped into 8 general categories for clar-



**Figure 16.** EC and OC (48 h mean) aerosol mass size distributions obtained at Ersu from the DEKATI impactor instrument for the entire SOP-1a period.

ity. Elemental carbon-containing particles dominated the data set (55 % of total spectra), followed by  $K$ -rich particles (30 %) and sea spray (7 %). The remaining particle categories include organic carbon (OC)-containing (3 %),



**Figure 17.** Vertical profiles of rBC concentrations estimated from the SP2 instrument for five different zones (Granada, Minorca, Lampedusa, southern France and Ersa).

trimethylamine (TMA)-containing (3 %), shipping (2 %), Fe-containing (0.5 %) and Ca-containing (0.3 %). EC particles dominated the first third of the sampling period, decreased noticeably for approx. 6 days and then dominated the rest of the sampling period again. In contrast, *K*-rich particle (associated with biomass burning and dust) numbers were high only for the latter half of the campaign, with a peak on 27–28 June. The profiles of these two particle categories suggest transport from regional sources. Sea-spray particle numbers were at their highest during the period where EC particles were at their lowest, and were generally low when EC particle numbers were high. OC-containing particles were present during the same period *K*-rich numbers peaked, suggesting an association with the transport of biomass burning particles. TMA particles were present in low numbers throughout the sampling period, suggesting a less regional source, independent of the air masses influencing EC and sea-spray particle occurrence. The same can be said of Fe- and Ca-containing particles, likely to be local dust, while shipping particle numbers were slightly higher during the first half of the sampling period.

Finally and concerning the aerosol chemical properties, an interesting aspect of the observations deployed during the SOP-1a concerns the rBC concentrations obtained from the SP2 instrument onboard the ATR-42. Despite its importance, studies on rBC were until now limited to surface-based measurements in the Mediterranean region. Measurements of vertical distribution of rBC concentrations provide crucial information for assessing the rBC radiative effects in the region. Figure 17 shows the vertical distributions of rBC mass concentrations measured by the SP2 in the five areas (Granada, Minorca, Lampedusa, southern France and Ersa). For the different vertical soundings, rBC mass concentrations ranged between 20 and  $690 \text{ ng m}^{-3}$  close to the surface. The surface rBC concentrations were generally less than  $200 \text{ ng m}^{-3}$ , typical for continental and regional background sites in the western Mediterranean basin (Ripoll et al., 2015). The lowest surface concentrations of rBC ( $\sim 20 \text{ ng m}^{-3}$ ) were found in southern France over the open sea, with al-

most no local contribution of anthropogenic aerosols. Maxima surface concentrations ( $\sim 690 \text{ ng m}^{-3}$ ) were recorded over Granada where frequently heavy traffic emissions are occurring. These observations were obtained between 07:15 and 07:45 UTC, when the convection was not fully developed, which probably did not favor the vertical transport of local emissions over Granada. A prominent feature in vertical profiles is the presence of significant concentrations of rBC up to 5–6 km altitude. Therefore the regional transport of rBC particles was not only limited to the MBL but occurred also at higher altitude. In most of the observed cases, the rBC vertical distribution in the free troposphere reveals a strongly stratified structure characterized by either single isolated plumes or more uniform layers. It is worth noting the presence of rBC layers above the MBL in the open sea that could be attributed to convective transport from distant sources. Only in few observed cases, rBC mass concentration decreased monotonically with increasing altitude, most likely due to vertical transport of air masses from surface to higher heights.

## 5.2 Aerosol optical properties

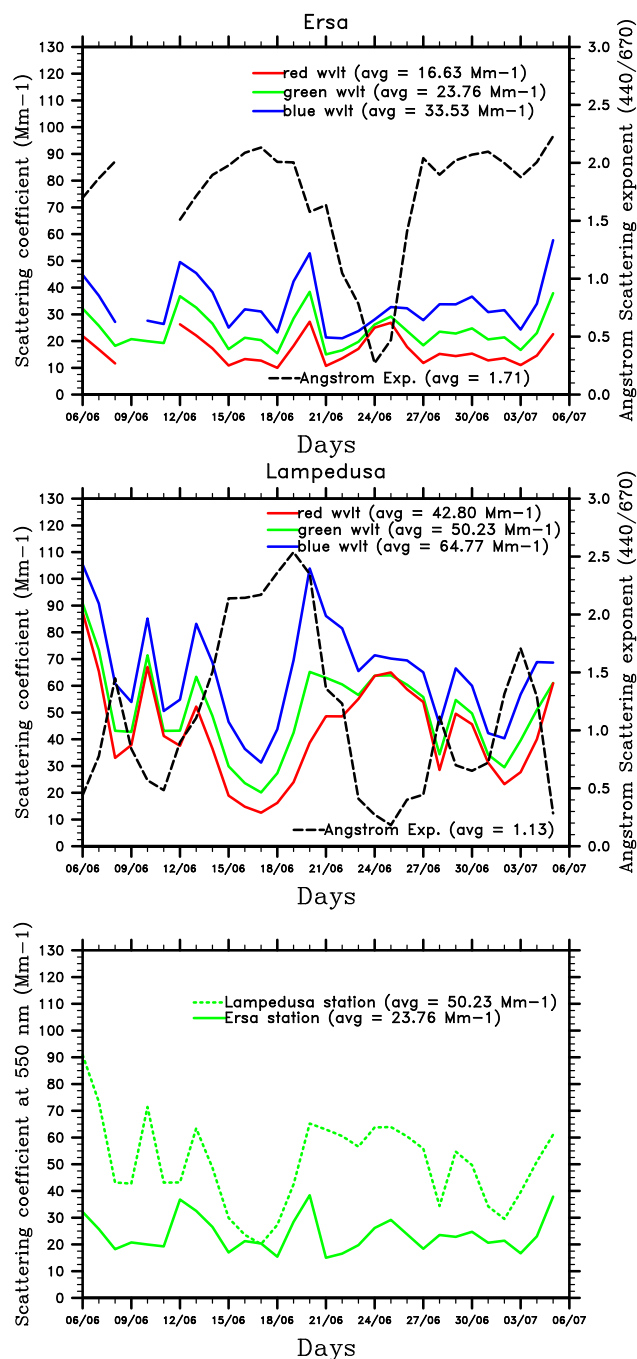
### 5.2.1 In situ optical properties at the surface

Figure 18 reports the (daily mean) time series of nephelometer observations obtained at the surface for the Ersa and Lampedusa stations. Daily scattering coefficients (at the three nephelometer wavelengths of 450, 550 and 700 nm) are reported, as well as the scattering Angström exponent (AE) calculated between 450 and 700 nm. At 550 nm and at Ersa, the scattering coefficient presents a significant variability during the SOP-1a, with peaks of about  $35\text{--}40 \text{ M m}^{-1}$  during the dust event (19–20 June) transported over Corsica, associated with low values ( $15 \text{ M m}^{-1}$ ) for certain periods of time, as for 21–22 June. The mean scattering coefficient (at 550 nm) is  $24 \text{ M m}^{-1}$ . Such scattering coefficient values are comparable to observations reported by Vaishya et al. (2012) at the Mace Head station for Atlantic marine air, with scattering coefficient (at 550 nm) ranged between 10 and  $25 \text{ M m}^{-1}$  during the summer period. In terms of scattering spectral dependence, the calculated scattering AE is found to be almost constant, with  $\text{AE} \sim 1.5\text{--}2$  and a mean value of 1.71 (indicating that scattering is mostly dominated by fine aerosols) during the SOP-1a, except for 23–24 June. The lowest values ( $\text{AE} \sim 0.3\text{--}0.5$ ) observed during this period are the result of a large contribution of coarse sea-spray aerosols (Claeys et al., 2016) due to moderate ( $5 \text{ m s}^{-1}$ ) westerly winds (see Fig. 8) at the Ersa station, which is also observed from the filter chemical size-resolved analyses and detected on the A-TOFMS and VHTDMA data. In parallel, we observe that the dust event occurring in Ersa on 18–20 June is not correlated with low scattering AE, revealing a possible contribution of fine dust particles only to scattering, the result of a possible deposition of the coarse dust fraction during transport. The

AERONET-derived AE between 440 and 870 nm shows values  $< 1$  in the afternoon of 19 June and early morning of 20 June suggesting that coarse dust is present in the column. At Lampedusa, the daily scattering coefficient (at 550 nm and from  $\text{PM}_{40}$  inlet) is between 20 and 90  $\text{Mm}^{-1}$  (mean value of 50  $\text{Mm}^{-1}$ ), which is twice higher than at Ersa (Fig. 18). The scattering AE was also highly variable, with values ranging between 0.5 and 2.5 (mean value of 1.1). The range of variability of these values is due to the observed switch from clean air masses strongly impacted by marine emissions to polluted air masses of various ages, including very aged/processed air masses from northern Europe. A single intrusion of mineral dust at the site was recorded on 9 June as a result of a cyclone-type of transport from Tunisia (Formenti et al., 2016).

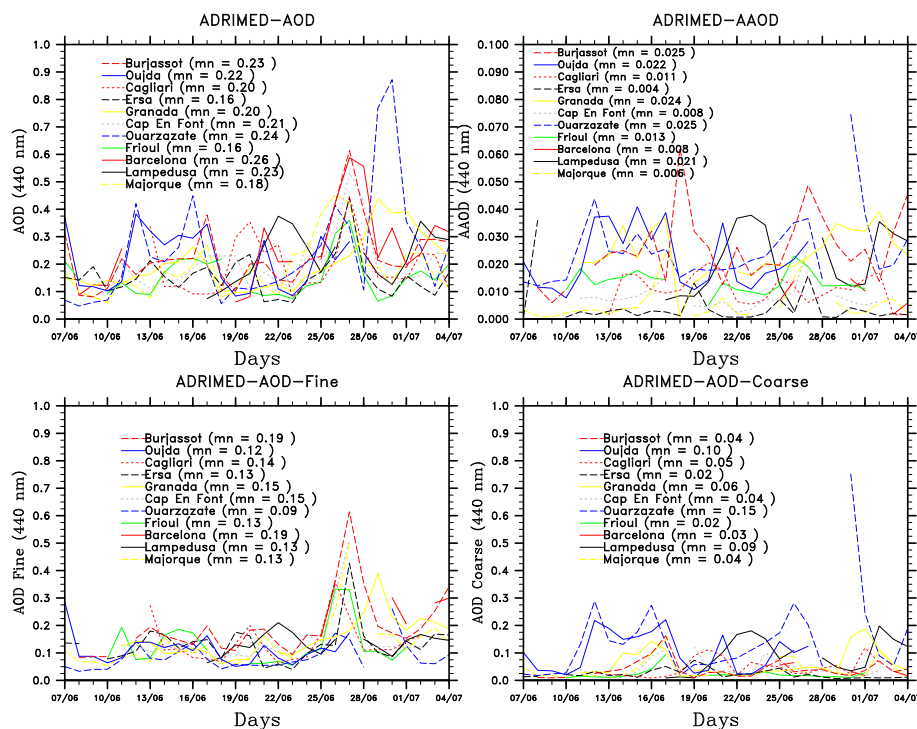
### 5.2.2 Remote-sensing observations from the surface

The optical properties obtained from sun-photometer observations for different AERONET/PHOTONS sites are shown in Fig. 19. The AERONET/PHOTONS stations have been chosen as located in a domain encompassing most of the SOP-1a in situ and remote-sensing observations (Fig. 3), and they are characterized by different aerosol regimes (see Table 2). The total AOD, Absorbing Aerosol Optical Depth (AAOD), AOD for the fine (AOD<sub>f</sub>) and coarse (AOD<sub>c</sub>) modes of the volume size distribution, are indicated (at 440 nm) for 11 AERONET/PHOTONS stations (Table 2). As mentioned previously, the AOD time series reveal moderate values, never reaching values as large as reported during the summer 2012 ChArMEx/TRAQA SOP-0 experiment (Rea et al., 2015). During summer 2013, the AOD was generally comprised between 0.1 and 0.7 (at 440 nm) for most of the AERONET/PHOTONS sites. Over the western basin, the Granada, Minorca and Barcelona sites display the largest values during the transport of dust aerosols as detected by satellite remote-sensing observations (Fig. 6) for 16 to 20 June. During this dust event, the contribution of fine and coarse modes to the total extinction AOD is equivalent. Over the central basin, Lampedusa data reveal various peaks. The largest AOD was measured on 6 June (about 0.84 at 440 nm) and 8 June (about 0.63 at 440 nm). Other peaks occurred around 22 June and 1–2 July, with corresponding AOD of about 0.30–0.40 (at 440 nm), with again an equivalent contribution of each mode of the volume size distribution to the AOD. On 27–28 June, an AOD peak was also observed over most of the sites and corresponded to the transport of an aged smoke plume from the Canadian continent. In this specific case, AOD was comprised between 0.25 and 0.50 (at 440 nm). Contrarily to the dust events, the contribution of the different modes to AOD was significantly different during this episode. Indeed, as shown in Fig. 18, AOD was mostly controlled by the fine mode of the volume size distribution. This specific biomass burning case is more deeply analyzed by Ancellet et al. (2015) and Chazette et al. (2015).



**Figure 18.** Time series of the daily scattering coefficient (in  $\text{Mm}^{-1}$ ) estimated at the Ersa and Lampedusa stations. The daily Angstrom exponent (AE), calculated between 440 and 670 nm, is also reported.

We have also used the SSA data set for making comparisons of its optical parameters between different stations. As for the size distributions, we have analyzed the data set in four stations, which are Ersa, Lampedusa, Cap d'En Font and Cagliari, which represent, respectively, three of the different surface stations affected by different aerosol regimes and the



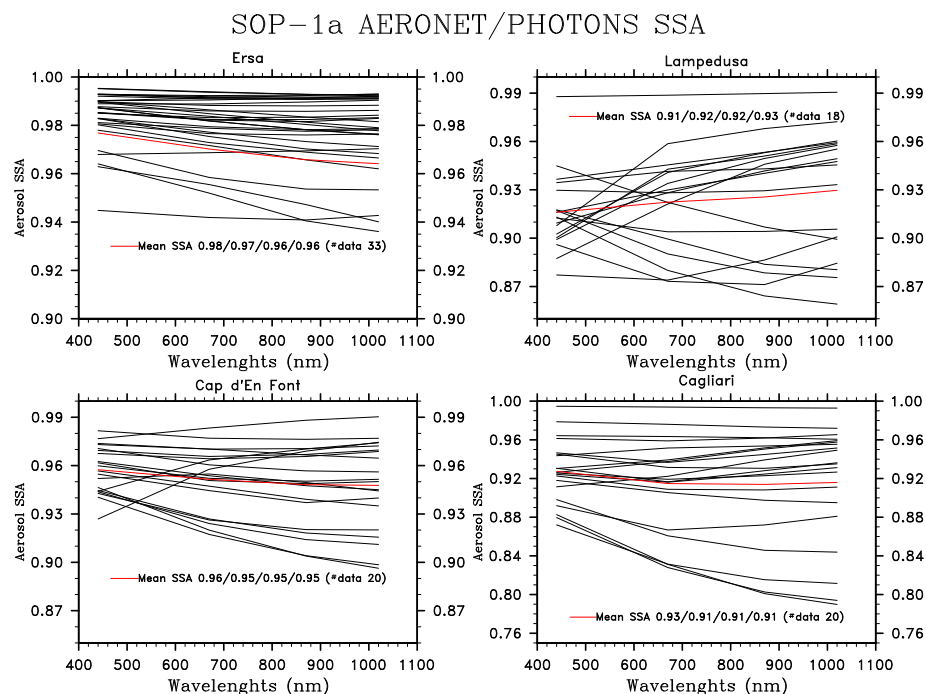
**Figure 19.** AERONET/PHOTONS observations of the total extinction AOD, AOD Fine (AODf), AOD Coarse (AODc) and Absorbing AOD (AAOD), at 440 nm obtained for the whole SOP-1a period.

aircraft locations (Cagliari). All (daily) SSA retrievals associated with the mean values (at the four wavelengths) are included in Fig. 20. Due to the moderate AOD over the period, we used Level 1.5 AERONET/PHOTONS products. In that sense, one should be reminded that uncertainties associated with SSA retrievals are important, about  $\pm 0.07$  as reported by Dubovik et al. (2000). The results indicate an important variability of SSA and its spectral dependence over the different stations. At 440 nm, the mean SSA is comprised between 0.91 and 0.98, with the lowest (highest) value observed in Lampedusa (Ersa). Hence, aerosols appear as mainly scattering at Erba and moderately absorbing at Lampedusa. The contribution of the coarse mode to the total size distribution could explain the lower values observed in Lampedusa at this wavelength. Indeed, the radiative effects and optical properties of dust are strongly dependent on the coarse mode size distribution as the larger particles appreciably decrease the SSA (McConnell et al., 2010; Otto et al., 2009). More recently and during the FENNEC experiment, Ryder et al. (2013) have calculated SSA (at 550 nm) for dust aerosols using the full range of sizes measured, indicating that dust SSA was highly sensitive to effective diameter: size distributions with the largest effective diameters produced the lowest SSA values. The presence of a coarse mode could also be due to the presence of marine aerosols within the MBL in Lampedusa. Observations for the Cap d'En Font and Cagliari stations reveal an intermediate value (0.93 at 440 nm) in

Cagliari, which is also more affected by mineral dust aerosols (Fig. 14). We can also observe very low values in Cagliari (for the period of 14 to 17 June) that could be due to local pollution. Anyway, one should be reminded that those retrievals have been performed under low AOD ( $\sim 0.10$  at 440 nm) conditions and are associated with large uncertainties. One important point concerns the changes in the SSA spectral signature between the Erba (negative tendency between 440 and 1020 nm) and Lampedusa (positive) stations. This observation is consistent with AERONET/PHOTONS data analyzed for a long-time period over the Mediterranean by Mallet et al. (2013), who report different spectral variations in SSA, following the aerosol regime (dusty and/or polluted particles). One of the main conclusions here is that aerosols are found to be moderately absorbing during the SOP-1a period, what is consistent with in situ observations performed onboard the ATR-42 aircraft and summarized by Denjean et al. (2015).

### 5.2.3 ATR-42 and F-20 aircraft observations

In parallel to surface observations, an example of the vertical profiles of aerosol optical properties obtained from ATR-42 measurements is shown in Fig. 20 that corresponds to flights 35–36 over the station of Lampedusa for 22 June (see also Denjean et al., 2015; Nicolas et al., 2016). Scattering coefficients (in  $\text{M m}^{-1}$ ) are plotted at 450, 550 and 700 nm (left) versus altitude (in meters). Completely different behaviors



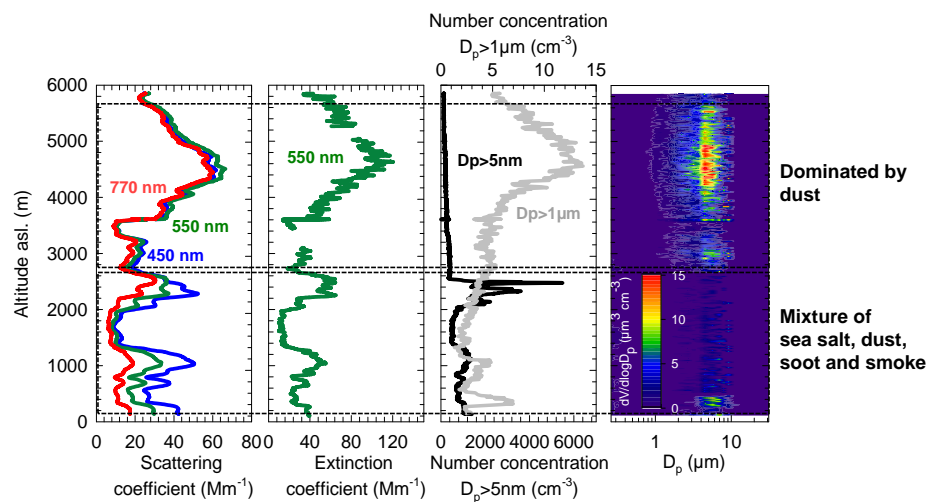
**Figure 20.** AERONET/PHOTONS observations (Ersa, Lampedusa, Cap d'En Font and Cagliari) of the total single scattering albedo (SSA) at 440, 670, 880 and 1020 nm obtained for the whole SOP-1a period (the red curve represents the mean of observations).

in the scattering spectral dependence as a function of altitude were observed. Two different aerosol plumes characterized by a significant spectral dependence (typically of sub-micronic polluted, smoke or fine marine aerosols) are observed around 1000 and 2000–2500 m. Above 3000 m, the spectral dependence is clearly reduced, corresponding to air masses with high mineral dust concentrations. For this upper aerosol layer, the scattering coefficient increases up to  $60 \text{ M m}^{-1}$ . The analysis of the extinction (at 530 nm) vertical profiles obtained from the CAPS system (Table 3) reveals an excellent agreement with nephelometer data showing the peaks of extinction at similar altitudes (see Denjean et al., 2015), with maxima ( $\sim 90 \text{ M m}^{-1}$ ) logically observed within the dust plumes (4000–5000 m). Number concentrations, as well as volume size distributions, highlight the significant atmospheric loading by particles with diameter higher than  $1 \mu\text{m}$  above 3000 m (maxima of  $5000 \text{ \# cm}^{-3}$ ). For this atmospheric layer, the volume size distribution is characterized by a coarse mode, around  $6\text{--}8 \mu\text{m}$ . As previously mentioned, vertical profiles of optical properties in terms of AE, SSA, asymmetry parameters as well as their spectral dependence are presented and discussed in details by Denjean et al. (2015) and Nicolas et al. (2016). The airborne SW and LW radiation measurements and the comparison with radiative transfer model simulations at Lampedusa are presented by Meloni et al. (2016).

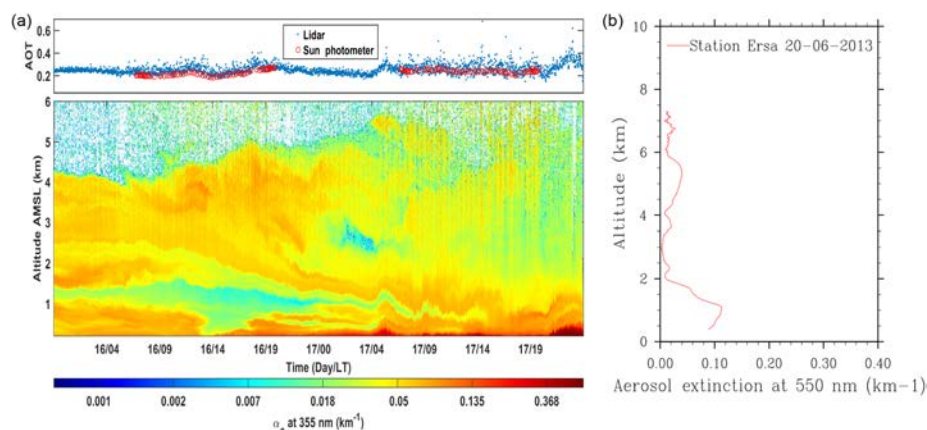
### 5.3 Aerosol vertical structure

#### 5.3.1 Lidar surface observations

Although deeply analyzed in other dedicated papers, some examples of the aerosol vertical profiles are presented here. First and over the Minorca station, surface lidar observations in Fig. 21a were obtained during 16 and 17 June, which corresponds to the first event of transported mineral dust over the western basin. They show a dust aerosol layer located between 1.5 and 5 km, with a maximum of aerosol extinction (at 355 nm) around  $0.10 \text{ km}^{-1}$  on 16 June between 12:00 and 14:00 local time (LT). Comparisons of retrieved AOD with the lidar system is shown to be very consistent with sun-photometer observations for these 2 days (Fig. 21a, top), with moderate AOD (at 355 nm) ranging between 0.2 and 0.4 at maximum. During 17 June, the dust layer is less intense and the aerosol extinction above 1.5 km decreases. After 14:00 LT, Fig. 21a clearly shows that most of the contribution to AOD is due to the MBL over the Minorca station. At Ersa (Fig. 21b), the dust event reached the northern tip of Corsica on 19 June. A deep depolarizing aerosol layer was observed at altitudes between 3 and 6 km. In the night of 20 June, the particulate depolarization ratio is close to 18 % and the lidar ratio within the dust layer was estimated at 46 sr. The extinction coefficient remains moderate within the dust layer  $\sim 0.05 \text{ km}^{-1}$  (Fig. 21b) between 4 and 6 km. It should be noted that a complete analysis of lidar observations series obtained over the cape Corsica site is reported in Léon et



**Figure 21.** Optical (scattering and extinction coefficients) and physical (number concentration and volume size distribution) aerosol properties estimated along the vertical onboard the ATR-42 aircraft for the flights 35–36 on 22 June over the Lampedusa station.

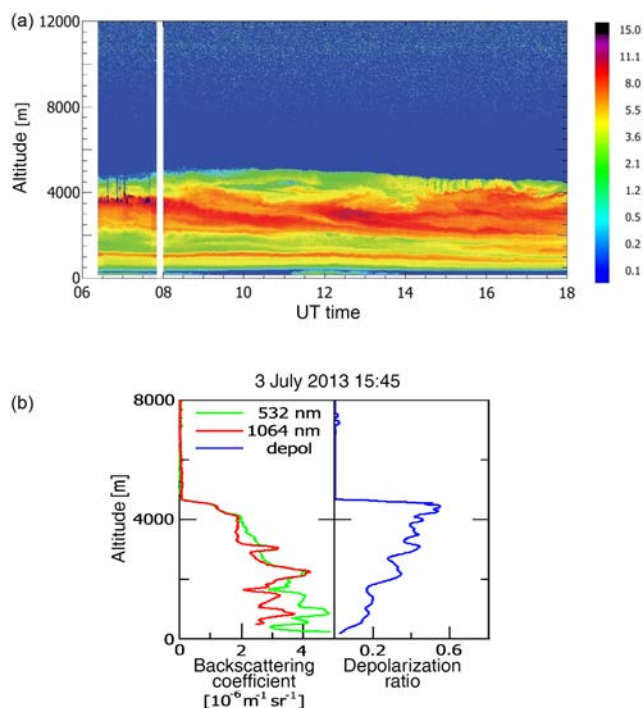


**Figure 22.** Minorca (a) and Ersa (b) lidar observations obtained during the dust plume of 16 to 17 June transported over the western Mediterranean basin.

al. (2015). The dust event vertical distribution is further analyzed by means of the EARLINET lidar stations in Sicard et al. (2015a) and by means of the EARLINET and ChArMEx lidar stations in Barragan et al. (2016).

In addition to Minorca and Ersa, two lidars were also operated at Lampedusa during the SOP-1a and provided vertical profiles of aerosol backscattering and depolarization. The ENEA/University of Rome lidar measures the aerosol backscattering at 532 and 1064 nm, plus the depolarization at 532 nm. This system was operated throughout the campaign, although not continuously. The lidar data retrieval is described by Di Iorio et al. (2009), and uses sun-photometer AOD observations to constrain the determination of the aerosol backscattering profile. Figure 23a shows the evolution of the vertical profile of the aerosol backscattering coefficient at 1064 nm on 3 July 2013 at Lampedusa. At low altitudes, the air masses reaching Lampedusa originated

from the north. Air masses above 2 km conversely came from a southwesterly direction crossing northern Algeria and Tunisia, and carried desert dust. Elevated backscattering attributed to dust was observed up to 5 km altitude, and a steep transition in the backscattering coefficient occurred at this altitude throughout the day. Figure 22b shows the backscattering coefficient profile at 532 and 1064 nm, and the depolarization ratio measured at 15:45 UT by the ENEA/University of Rome and the LISA lidars. Evidently, the backscattering coefficient above 2 km shows small wavelength dependence, and elevated values of the depolarization ratio, as expected from large irregular desert dust particles (Sassen, 1999). The influence of large particles is smaller below 2 km, where the backscattering coefficient shows some dependency on wavelength, and the depolarization ratio decreases. The significant role played by the large particles on 3 July is also confirmed by the aerosol size distribution and optical properties (i.e.,



**Figure 23.** (a) Time evolution of the vertical profile of the aerosol backscattering coefficient at 1064 nm at Lampedusa on 3 July 2013. The color scale is in units of  $10^{-7} \text{ m}^{-1} \text{ sr}^{-1}$ . (b) Vertical profile of aerosol backscattering coefficient at two wavelengths and of aerosol depolarization ratio at 355 nm measured at Lampedusa on 3 July 2013 at 15:45 UT.

values and spectral dependency of the refractive index and single scattering albedo) retrieved from the AERONET observations at Lampedusa. The average AOD (at 500 nm) was 0.28, and the AE (calculated between 440 and 870 nm) was 0.39, as expected for cases with a large contribution of desert dust. The retrieved columnar volume size distributions on the 2 days show that the mode with a median radius around  $2 \mu\text{m}$  is 2–3 times more intense on 3 July than on 17 June.

Finally, night-time measurements at Potenza (Italy) on 21 June starting at 23:40 UT, which coincides with the arrival of the Saharan dust event over southern Italy, indicate a clear signature of Saharan dust in the tropospheric layer between 1.8 and 3.9 km; an extinction-related AE value of approximately 0 is measured between roughly 2 and 3 km and a quite constant LR around 50 sr at both 355 and 532 nm (not shown; see Sicard et al., 2015a; Barragan et al., 2016).

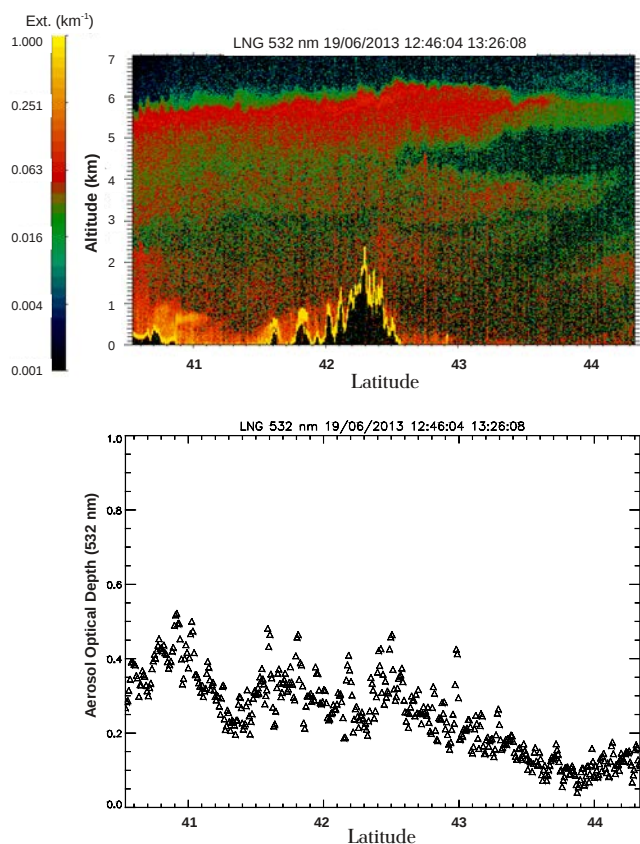
### 5.3.2 LNG observations

An example of LNG (Lidar Nouvelle Génération) observations onboard the F-20 aircraft is presented in Fig. 24 for 19 June that corresponds to a flight (12:46 to 13:26 UT) from Sardinia to the Gulf of Genoa. The aerosol extinction (in  $\text{km}^{-1}$  and at 532 nm) is represented in function of latitude during this flight as well as the associated AOD with a high

temporal and spatial frequency. One can observe the significant north–south gradient during this dust event with low values of AOD (around 0.1 at 532 nm) for the latitude of  $44^\circ \text{N}$  and moderate–high AOD (0.40 to 0.55) for latitudes lower than  $42\text{--}43^\circ \text{N}$ . In terms of vertical structure, this increase of AOD is due to an upper dust layer (around 5 to 6 km) characterized by an aerosol extinction of about  $0.1 \text{ km}^{-1}$ . This intense dust layer transported over most of the investigated region ( $40.5\text{--}43.5^\circ \text{N}$ ) is associated with a second more diluted aerosol layer observed between 3 and 4 km with LNG. Another interesting aspect is the variability of aerosol extinction detected in the marine boundary layer showing large differences throughout the F-20 transect. The aerosol extinction is found to be significant around  $41$  to  $41.5^\circ \text{N}$ , which could be due to sea-spray particles generated in southern Corsica due to the local acceleration of the wind occurring between Corsica and Sardinia (not shown). This increase of the aerosol loading in the MBL associated with dust aerosol transported to higher altitudes results in an increase of total AOD at these latitudes. Such aircraft lidar data will be useful for testing the different modeling systems used for the SOP-1a experiment and more specifically their ability to reproduce complex vertical aerosol structures over the western Mediterranean. Additional observations of the aerosol extinction vertical profile obtained over different surface-stations from the passive remote-sensing PLASMA instrument onboard the ATR-42 aircraft are presented in Torres et al. (2016).

### 5.3.3 Sounding balloon observations

Figure 25 shows an example of the vertical profile of the aerosol particle size distribution obtained on 19 June near the end of the dust episode that started on 16 June over Minorca. The daytime average AOD geographical distribution derived from MSG/SEVIRI is shown in Fig. 6. The vertical profile clearly shows the presence of the dust layer between about 2.5 and 4.5 km in altitude, in agreement with coincident lidar continuous observations at Minorca that show the more limited vertical extent of dust compared to previous days and the end of the episode on 19 June in this area (Chazette et al., 2015). It should be noted that sounding balloons appear to under-detect very large particles within dust layers compared to the drifting balloons. This can be due to isokinetic sampling differences between sounding systems that have a vertical velocity of several  $\text{m s}^{-1}$  and systems drifting at a constant air density that are quasi-Lagrangian. However coincident AERONET and LOAC vertically integrated particle size distribution in the range  $0.1\text{--}30 \mu\text{m}$  in diameter performed on 16 and 17 June were found quite comparable. In the marine atmospheric boundary layer, the LOAC speciation index (Renard et al., 2015a) indicates hydrated particles. In the free troposphere above dust, the concentration of particles rapidly decreased by 1 order of magnitude and particles were mainly of submicronic size with sometimes a significant number of particles in the  $1.1\text{--}3 \mu\text{m}$  channel.



**Figure 24.** Observations of aerosol extinction coefficient (top, in  $\text{km}^{-1}$  at 532 nm) and aerosol optical depth (bottom) obtained from the lidar LNG system onboard the F-20 aircraft during 19 June that corresponds to the flight (12:46 to 13:26) from Cagliari to the Gulf of Genoa.

## 5.4 Local direct radiative forcing

### 5.4.1 Estimates using in situ aircraft data and radiative transfer codes over the two super-sites

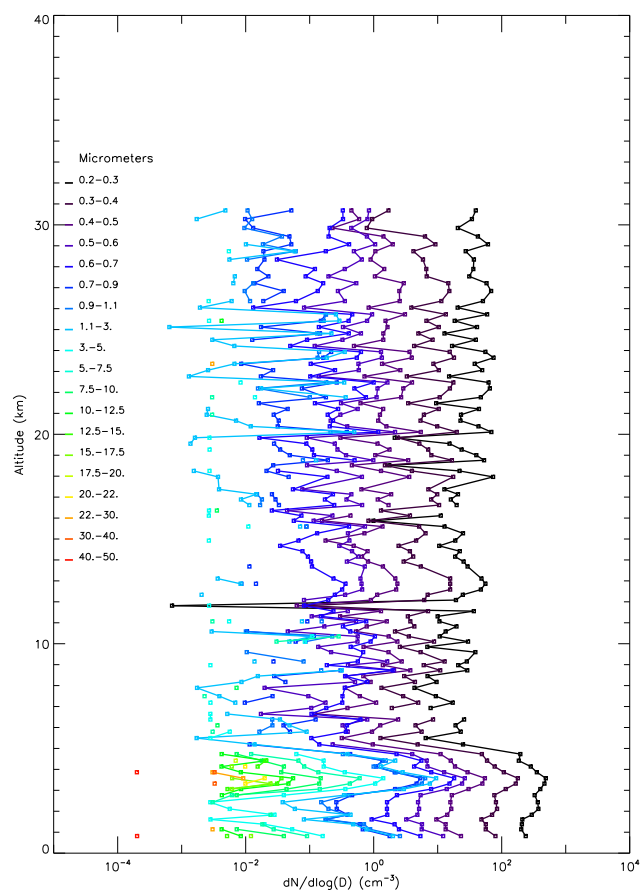
Before investigating the possible climatic effect of aerosols on the Mediterranean climate, an important preliminary step is the calculation of the direct radiative forcing (DRF) exerted by aerosols. This can be addressed by using in situ (physical–optical properties) and remote-sensing (vertical profiles) observations of aerosols as input to radiative transfer models. Simulated SW and LW radiative fluxes can be evaluated using observed radiative fluxes both at the surface and onboard the two aircraft. The combination of in situ and remote-sensing measurements provides a complete and unique data set for conducting such 1-D radiative transfer simulations. To this end, vertical profiles from the ATR-42 were combined with surface observations from the two (Ersa and Lampedusa) stations to calculate the SW DRF of different aerosol events (Nicolas et al., 2016; Meloni et al., 2016). Over the western basin and for the first period of the cam-

paign (16 to 20 June), different calculations, with the GAME radiative transfer model (Dubuisson et al., 2004), of the downward and upward SW cloud-free irradiances have been performed by Nicolas et al. (2016) for six vertical profiles over Granada, Minorca and Corsica. Briefly, the methodology is based on extinction, SSA and phase function vertical profiles (and their spectral dependence), obtained from observations and Mie calculations, and associated with atmospheric thermodynamic properties. They clearly show a significant change in surface radiative fluxes with a well-known decrease (dimming effect) of downward radiations due to scattering and absorption of solar radiation by dust aerosols. Inter-comparisons between observed/simulated downward and upward clear-sky SW fluxes show a good agreement during the ascent and descent profiles. At TOA, Nicolas et al. (2016) reported a direct (instantaneous at noon) SW DRF ranged between  $-4$  and  $-33 \text{ W m}^{-2}$ , revealing a cooling effect due to dust particles. These simulations also indicate that the decrease in surface radiation is not completely compensated by the TOA cooling, meaning that aerosols exerted a positive atmospheric forcing due to their ability to absorb solar radiations.

Similar calculations (not shown) have been done over the Lampedusa reference-site by Meloni et al. (2016) by using a similar method based on lidar, sun-photometer, in situ surface, ATR-42 and F-20 observations and the MODTRAN 5.3 radiative transfer code. Meloni et al. (2016) estimate both the SW and the LW aerosol radiative forcing profiles and the balance between the two spectral components (SW and LW). During the descent towards Lampedusa airport on 22 June, the instantaneous ( $12.5^\circ$  solar zenith angle and aerosol optical depth at 500 nm of 0.32) SW cooling at the surface ( $-44 \text{ W m}^{-2}$ ) is reduced by about 10 % due to infrared emission. The dust SW radiative forcing at TOA is  $-6 \text{ W m}^{-2}$ . These values are obtained using the AERONET aerosol size distribution and different aerosol refractive indices in the SW and in the LW spectral regions. The LW contribution at the surface is lower than the values reported in previous studies (di Sarra et al., 2011; Meloni et al., 2015), partially due to the different solar zenith angle and to the presence of mixed aerosol below the dust layer down to the surface.

### 5.4.2 Estimates of instantaneous clear-sky SW DRF using AERONET/PHOTONS observations

As reported previously, AERONET/PHOTONS network provides, in addition to microphysical and optical aerosol properties, an estimate of the local (instantaneous) clear-sky direct radiative forcing at any AERONET/PHOTONS location as an operational product of the network. The method of derivation is described in García et al. (2012). As mentioned above, the extremely good regional coverage of AERONET/PHOTONS sun-photometer instruments during the SOP-1a allow a complementary estimate of the local radiative (clear-sky) forcing to those derived by Meloni et



**Figure 25.** Particle concentrations as a function of size and altitude in the troposphere and lower stratosphere from the LOAC flight under meteorological balloon BLD9 launched from Minorca at the end of a dust event on 19 June 2013, 10:12 UT (Table 4; see the daytime-averaged aerosol optical depth over the sea in Fig. 6).

al. (2016) and Nicolas et al. (2016). Figure 26 indicated the average of all instantaneous (clear-sky) DRFs (in  $\text{W m}^{-2}$ ) estimated during a day for both AERONET/PHOTONS stations. Estimates are reported at the surface (bottom left), at TOA (bottom right) and within the total atmosphere (down). Averaged values of the DRF are also indicated in Fig. 26. As mentioned above, sun-photometer retrievals demonstrate a significant DRF during the SOP-1a experiment. As an example and at the surface, the mean forcing is comprised between  $-15 \text{ W m}^{-2}$  (Barcelona, not affected by dust transport) and  $-35 \text{ W m}^{-2}$  in Burjassot. Such values are consistent with independent 1-D estimates reported by Nicolas et al. (2016) and Meloni et al. (2016). AERONET/PHOTONS data also reveal a negative DRF at TOA over most of sites, meaning that aerosols exert in majority a cooling effect at TOA, with values around  $\sim -6$  to  $-12 \text{ W m}^{-2}$ . These negative values are also due to the fact that most of the AERONET/PHOTONS stations are located over islands, which are characterized by low surface albedo. Logically and due to the moderate values of aerosol absorption observed

during the SOP-1a (Denjean et al., 2015), a positive atmospheric forcing is observed with mean values from  $+7$  to  $+30 \text{ W m}^{-2}$  (with maxima in Burjassot), which could affect the vertical profiles of temperature and relative humidity as shown recently by Nabat et al. (2015a).

#### 5.4.3 Estimates using in situ radiative flux observations

As shown by di Sarra et al. (2011), an estimate of the aerosol radiative forcing can be obtained by comparing irradiance measurements made during days characterized by different aerosol loads. In particular, the identification of a cloud-free day with low aerosol amounts is important to provide a reference for pristine conditions. During the SOP-1a, 17 June at Lampedusa displayed a very low aerosol optical depth (daily average of 0.064 at 500 nm) and cloud-free conditions throughout the day, and was identified as the reference day for pristine conditions. 3 July, conversely, was one of the days characterized by the presence of desert dust, with moderate values of the AOD (0.28). As shown in Fig. 22a, dust was present above 2 km altitude and there were no major changes in the aerosol vertical distribution during the day, as it also appears from the limited daily variability of the AOD (daily standard deviation of the AOD at 500 nm of 0.015). Cloud-free conditions were present throughout the day.

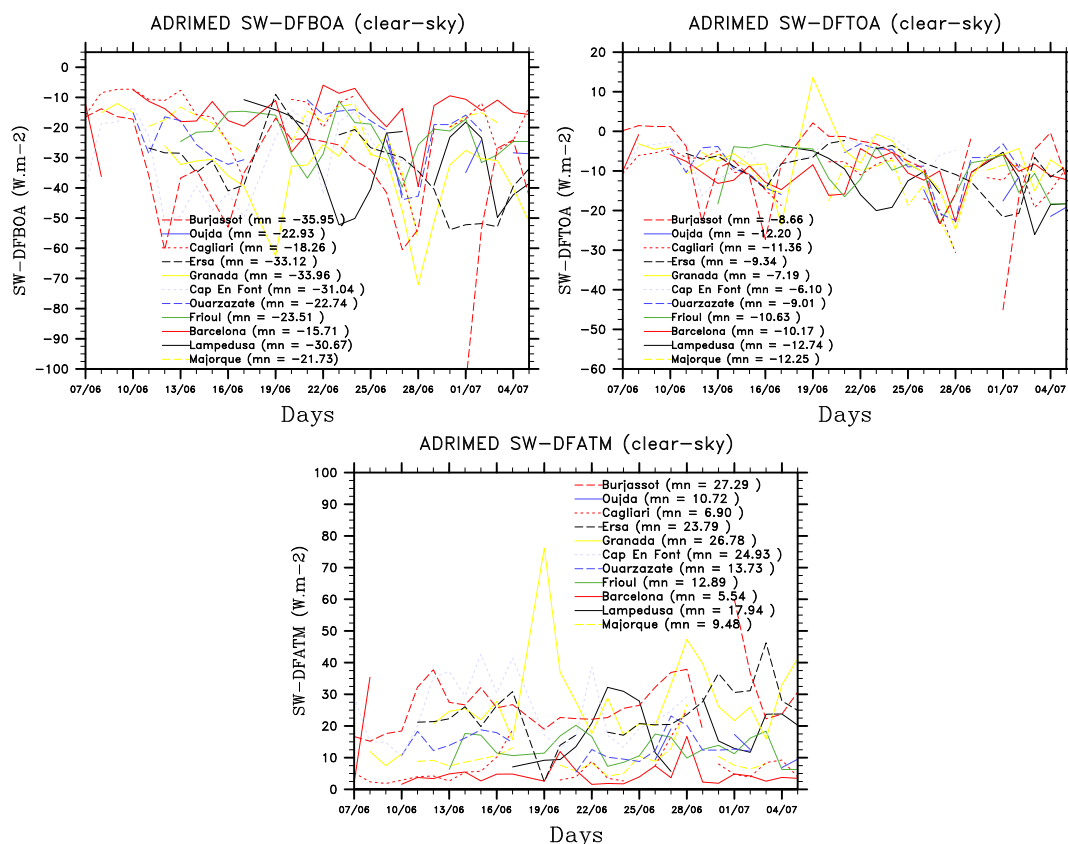
Figure 27 displays the downward solar irradiance measured on 3 July, compared with the one measured on the pristine reference day (17 June). The irradiance measurements were corrected for the radiometer thermal offset as discussed by Di Biagio et al. (2009). The sharp narrow peak occurring on 17 June around 06:30 was related to a small isolated cloud, and these data were discarded from the analysis. The differences between the downward irradiances measured on these 2 days were calculated as a function of the solar zenith angle; these differences are due to the effect of aerosol and, to a smaller extent, column water vapor. The effect of water vapor was estimated by means of a radiative transfer model (see, e.g., di Sarra et al., 2011), and the remaining difference was integrated over 24 h to obtain the daily average effect,  $\Delta I$ , on the downward solar irradiance. The daily aerosol radiative forcing RF can be derived as

$$\text{RF} = \Delta I (1 - A),$$

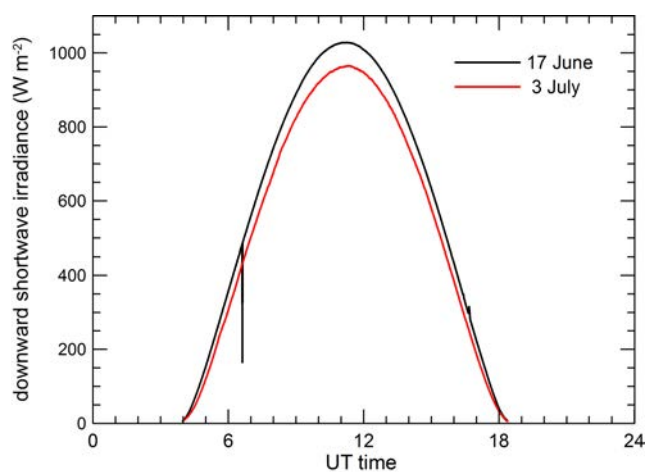
where  $\Delta I$  is the difference between the two curves of Fig. 27 integrated over 24 h, and  $A$  is the surface albedo. For a surface albedo of 0.07 (di Sarra et al., 2011), the estimated surface RF is  $-14.8 \text{ W m}^{-2}$ . The radiative forcing efficiency (RFE), which is the radiative forcing produced by a unit AOD, was calculated as

$$\text{RFE} = \text{RF} / (\text{AOD}_2 - \text{AOD}_1),$$

where  $\text{AOD}_1$  and  $\text{AOD}_2$  are the measured daily average aerosol optical depth on 17 June and 3 July, respectively. The estimated RFE is  $-67.4 \text{ W m}^{-2}$ . Di Biagio et al. (2010),



**Figure 26.** One-dimensional (clear-sky) instantaneous (shortwave only) DRF calculations (in  $\text{W m}^{-2}$ ) based on the AERONET/PHOTONS data set for the different stations listed in Table 2 (BOA, TOA and ATM refer to the bottom of the atmosphere, top of atmosphere and atmospheric forcings).

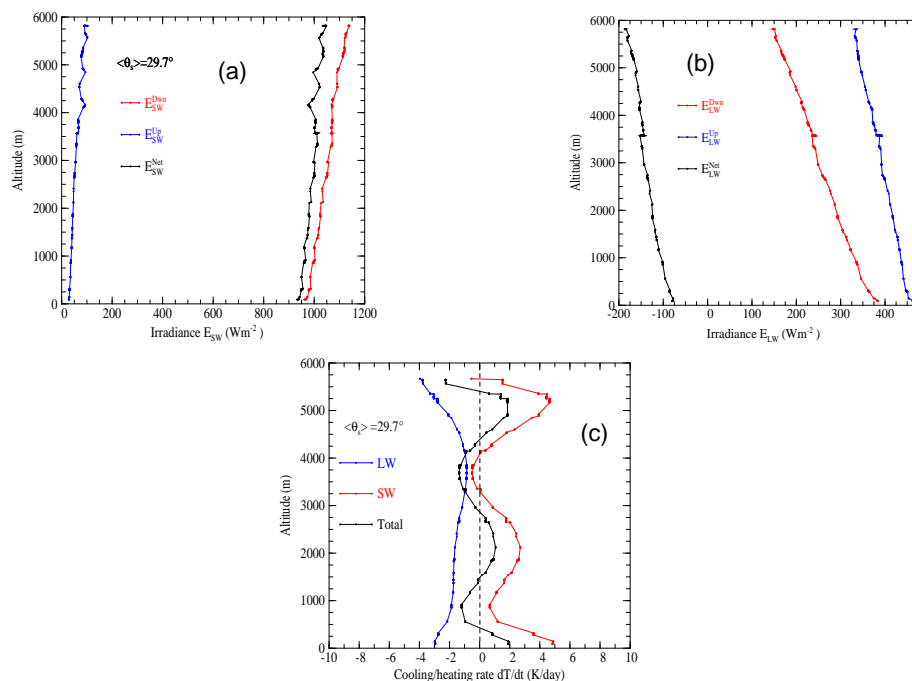


**Figure 27.** Time evolution of the downward solar irradiance observed at Lampedusa on 17 June and 3 July 2013.

based on a multi-year data set at Lampedusa, derived a similar value for desert dust ( $-68.9 \text{ W m}^{-2}$ ) at the equinox; di Sarra et al. (2011), for an intense desert dust event occurring in March 2010 found values between  $-70$  and  $-85 \text{ W m}^{-2}$ .

For a desert dust event associated with the propagation of a gravity wave, with values of AOD similar to those of 3 July, di Sarra et al. (2013) derived an RFE equal to  $-79 \text{ W m}^{-2}$ . Valenzuela et al. (2012) determined RFE for Saharan dust episodes over the western Mediterranean with different origins, showing values in the range from  $-74 \text{ W m}^{-2}$  (for air masses coming from northern Morocco) to  $-65 \text{ W m}^{-2}$  (for air masses coming from Algeria and Tunisia). Values of the dust RFE at the surface in the same range were obtained by Derimian et al. (2006), although they were derived in different conditions for which the influence of surface albedo should be taken into account.

The downward LW irradiance measured on 3 July was higher than on 17 June by  $23 \text{ W m}^{-2}$ . Most of this effect is due to differences in the water vapor column amount (about 1 cm difference between the 2 days, with larger values on 3 July). Once the water vapor contribution was subtracted by means of radiative transfer calculations, we found a net positive effect induced by the aerosol of about  $+5.5 \text{ W m}^{-2}$ . This is, on the daily timescale, about 35 % of the SW effect. The resulting aerosol RFE in the LW spectral range is  $+25.5 \text{ W m}^{-2}$ , in agreement with previous results by di Sarra et al. (2011), who found values between  $+25.9$  and



**Figure 28.** SW (a) and LW (b) upward and downward radiative fluxes observed over the Lampedusa station for 22 June and estimated SW and LW heating rate (c) in the two spectral regions (see Sect. 5.4.4 for details).

+27.9 W m<sup>-2</sup>, or Antón et al. (2014), who reported RFE values around +20 W m<sup>-2</sup> (in reference to AOD at 675 nm).

#### 5.4.4 Estimations of the SW and LW radiative heating rate along the vertical

One important original aspects of this study concerns the estimates of the vertical profiles of SW and LW radiative heating rate. To our knowledge, all the referenced estimates of this important parameter, which controls for a part the semi-direct radiative effect of aerosols, have been conducted using remote-sensing techniques or in situ observations of aerosol optical properties, coupled with radiative transfer modeling. Here, we propose a first estimate of the SW and LW heating rate derived directly from upward and downward (SW and LW) radiative fluxes obtained onboard the ATR-42 aircraft. Because of the nature mainly diffuse of longwave upward and downward irradiances (irradiances in thermal infrared), and of the upward shortwave irradiance (irradiance in solar domain), in first approximation, no correction due to the altitude of the aircraft will be applied to these measurements. Only shortwave downward irradiances will be corrected. Three kinds of corrections are applied:

- Correction of the aircraft attitude (unavoidable movements due to the aircraft pitch and roll)
- Correction of cosine response of the pyranometer

- Correction due to the non-horizontal position of the sensor when a leg stabilizes (i.e., determination of offsets on roll and pitch).

Let  $\theta_m$  the angle between the sun direction and the normal to the pyranometer sensor (depending on pitch, roll and aircraft heading given by the inertial navigation system), and  $\theta_s$  the solar zenith angle, the attitude correction coefficient is

$$X_d^n = \frac{\cos \theta_m}{\cos \theta_s}.$$

Finally, we obtain the global (direct plus diffuse) downward irradiance, for the solar zenith angle  $\theta_s$ :  $E_{SW}^\downarrow(\theta_s) = \frac{E_{SW}^{m\downarrow}(\theta_m)}{(X_d^n[1-c(\theta_s)]-D)f(\theta_s)+D}$ .

In this equation,  $E_{SW}^{m\downarrow}(\theta_m)$  is the measured global irradiance,  $c(\theta_s)$  is the cosine response of the pyranometer,  $D = 2 \int_0^1 [1 - C(\theta_m)] \mu d\mu$  and  $f(\theta_s)$  is the part of direct downward irradiance in the global (estimation obtained from radiative transfer code). Taking into account these corrections, Fig. 28a shows downward ( $E_{SW}^{Dn}$ ), upward ( $E_{SW}^{Up}$ ), and net ( $E_{SW}^{Net}$ ) shortwave irradiances obtained from measurements performed onboard ATR-42 aircraft on 22 June between 10.35 and 11.30 UT. Irradiances are reduced to the mean solar zenith angle  $\theta_s = 29.7^\circ$ . Similarly, Fig. 28b shows corresponding measurements of downward ( $E_{LW}^{Dn}$ ), upward ( $E_{LW}^{Up}$ ), and net ( $E_{LW}^{Net}$ ) longwave irradiances. Total

net irradiances are then determined versus the aircraft altitude for the mean air mass factor of the considered studied flight phase. The radiative cooling/heating rate is finally derived and shown in Fig. 28c, in which the longwave (LW) and shortwave (SW) parts are distinguished.

Concerning the SW heating rate vertical profiles (Fig. 28c), one can observe the significant increase of the calculated instantaneous SW heating rate in the two different aerosol layers detected for this case (Fig. 21), especially above 4 km, which corresponds to the maximum of extinction coefficient (up to  $100 \text{ Mm}^{-1}$ ) due to the presence of mineral dust. For this specific layer, the values of SW heating rate peak at  $4\text{--}5^\circ\text{K}$  per day for a solar angle of  $29.7^\circ$ . We can also observe a similar tendency in the second aerosol layer, located between 1.5 and 3 km (see Fig. 21). Concerning the LW heating rate, Fig. 28c indicates instantaneous values ranging between  $-2$  and  $-4^\circ\text{K}$  per day, which is also consistent with the well-known cooling effect of mineral dust in the longwave spectrum (Mallet et al., 2006; Zhu et al., 2007). As shown in Fig. 28c, the net heating rate is dominated by the SW heating (the maximum LW cooling is less than 60 % of the SW heating), which leads to net SW radiative heating ranging between  $+0.5$  and  $+2^\circ\text{K}$  per day inside the dust layer above the MBL. Such unique and original database of SW and LW radiative heating obtained over the western Mediterranean should be now used to evaluate the ability of the different models involved in the ChArMEx/ADRIMED project (see the following Sect. 6) to simulate this important radiative property for the different identified dust cases.

## 6 Overview of modeling activities

Several models are used to analyze the SOP-1a period: the meso-scale meteorological COSMO-MUSCAT model, the chemistry transport model (CTM) CHIMERE model, and two regional climate (RegCM and CNRM-RCSM) models. These models differ in terms of horizontal and vertical resolutions, physical parameterizations, aerosol-chemical schemes and are able to deliver complementary information to address key scientific questions of the ChArMEx/ADRIMED experiment. Their main characteristics are summarized in Table 7.

### 6.1 COSMO-MUSCAT model

The COSMO-MUSCAT (Wolke et al., 2012) parallelized multi-scale regional model system consists of the COSMO (Consortium for Small-scale Modelling) non-hydrostatic atmosphere model that is on-line coupled to the MUSCAT (MultiScale Chemistry Aerosol Transport Model) 3-D chemistry tracer transport model. The atmospheric dust cycle consisting of the emission, transport and deposition of dust particles is simulated within MUSCAT using meteorological and hydrological fields from COSMO. Dust emission is

calculated using the emission scheme by Tegen et al. (2002) and depends on local surface wind friction velocities, surface roughness length, soil texture and soil moisture. Calculated dust emission fluxes depend on particle diameter for individual size classes that are assumed to be log-normally distributed. Following Marticorena and Bergametti (1995), dust emission is considered as threshold function of local friction velocities and thus initial dust emission is computed as a function of soil particle size distribution. Dust emission is limited to regions where active dust sources have been identified during 2006–2009 from MSG SEVIRI observations (Schepanski et al., 2007). The advection of dust particles is described by a third-order upstream scheme; dust particles are transported as a passive tracer in five independent size classes with limiting radius at 0.1, 0.3, 0.9, 2.6, 8, and  $24 \mu\text{m}$ . The removal of dust particles from the atmosphere is described by dry and wet deposition taking particle size, particle density, and atmospheric conditions into account. Here, the simulations of the atmospheric dust cycle are performed at a 28 km horizontal grid and 40 vertical layers covering northern African dust sources, the eastern North Atlantic, the Mediterranean basin and Europe.

### 6.2 The CHIMERE chemistry transport model

CHIMERE is a chemistry transport model able to simulate concentrations fields of gaseous and aerosol species at a regional scale. The model is off-line and thus needs pre-calculated meteorological fields to run. In this study, we used the version fully described in Menut et al. (2013), forced by the WRF meso-scale model. The horizontal domain is the same as the one of WRF, and, for the vertical grid, the 28 vertical levels of WRF are projected on the 20 levels of the CHIMERE mesh. The gaseous species are calculated using the MELCHIOR 2 scheme and the aerosols using the scheme developed by Bessagnet et al. (2004). This module takes into account species such as sulfate, nitrate, ammonium, primary organic (OC) and black carbon (BC), secondary organic aerosols (SOA), sea spray, mineral dust, and water. These aerosols are represented using ten bins, from 40 nm to  $20 \mu\text{m}$ , in diameter. The life cycle of these aerosols is completely represented with nucleation of sulfuric acid, coagulation, adsorption/desorption, wet and dry deposition and scavenging. This scavenging is both represented by coagulation with cloud droplets and precipitation. The formation of SOA is also taken into account. The anthropogenic emissions are estimated using the same methodology as the one described in Menut et al. (2013) but with the HTAP masses as input data. These masses were prepared by the EDGAR Team, using inventories based on MICS-Asia, EPA-US/Canada and TNO databases ([http://edgar.jrc.ec.europa.eu/htap\\_v2](http://edgar.jrc.ec.europa.eu/htap_v2)). Biogenic emissions are calculated using the MEGAN emissions scheme (Guenther et al., 2006), which provides fluxes of isoprene, terpene and pinenes. In addition to this 2013 version, several processes were improved and added in the framework

of this study. First, mineral dust emissions are now calculated using new soil and surface databases, as described in Menut et al. (2013). Second, chemical species emissions fluxes produced by vegetation fires are estimated using the new high-resolution fire model presented in Turquety et al. (2014). Finally, the photolysis rates are explicitly calculated using the FastJ radiation module (Mailler et al., 2015).

### 6.3 The RegCM regional climate model

The RegCM system is a community model designed for use by a varied community composed of scientists in industrialized countries as well as developing nations. It is supported through the Regional Climate Network, or RegCM-NET, a widespread network of scientists coordinated by the Earth System Physics section of the Abdus Salam International Centre for the Theoretical Physics (ICTP, Giorgi et al., 2012). RegCM is a hydrostatic, compressible, sigma-p vertical coordinate model. As a limited area model, RegCM requires initial and boundary conditions that can be provided both by NCEP or ECMWF analyses. The horizontal resolution used need to be higher than 10 km, due to the hydrostatic dynamic core of the model, associated with 23 vertical levels. A simplified aerosol scheme specifically designed for application to long-term climate simulations has been incrementally developed within the RegCM system. Solomon et al. (2006, 2008) first implemented a first-generation aerosol model including sulfates, organic carbon, and black carbon. Zakey et al. (2006) then added a four-bin desert dust module, and Zakey et al. (2008) implemented a two-bin sea-spray scheme. In RegCM, the dust emission scheme accounts for sub-grid emissions by different types of soil. The dust emission size distribution can now also be treated according to Kok (2011). When all aerosols are simulated, 12 additional prognostic equations are solved in RegCM, including transport by resolvable scale winds, turbulence and deep convection, sources, and wet and dry removal processes. In RegCM, the natural/anthropogenic aerosols are radiatively interactive both in the solar and infrared regions and so are able to feed-back on the meteorological fields.

### 6.4 The CNRM-RCSM regional climate model

The fully coupled RCSM (Regional Climate System Model), which is developed at CNRM, has also been used within the ChArMEs/ADRIED project. This model includes the ALADIN-Climate (Déqué and Somot, 2008) regional climate atmospheric model, the NEMOMED8 (Beuvier et al., 2010) regional ocean model and the ISBA (Noilhan and Mahfouf, 1996) land-surface model. We used here the version described in Nabat et al. (2015b) with a 50 km horizontal resolution. ALADIN-Climate includes the Fouquart and Morcrette radiation scheme based on the ECMWF model incorporating effects of greenhouse gases as well as direct effects of aerosols. The NEMOMED8 ocean model is the

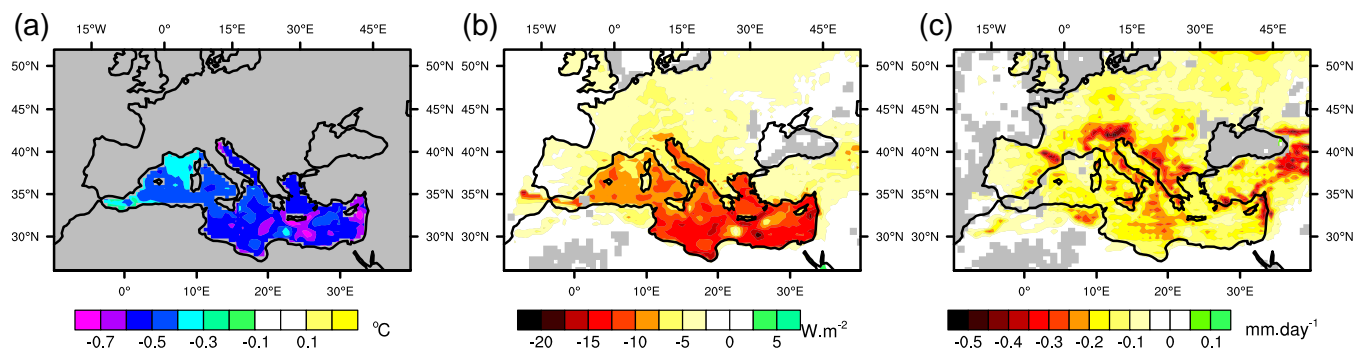
regional eddy-permitting version of the NEMOV2.3 ocean model that covers the Mediterranean Sea. Concerning the aerosol phase, the ALADIN-Climate model incorporates a radiative scheme to take into account the direct and semi-direct effects of five aerosol types (sea spray, desert dust, sulfates, black and organic carbon aerosols) through either AOD climatologies or a prognostic aerosol scheme (Nabat et al., 2013, 2015b). On the one hand, Nabat et al. (2013) have proposed a new AOD monthly climatology over the period 2003–2009, based on a combination of satellite-derived and model-simulated products. The objective is to have the best estimation of the atmospheric aerosol content for these five most relevant aerosol species. On the other hand, a prognostic aerosol scheme has been recently implemented in ALADIN-Climate, and has shown its ability to reproduce the main patterns of the aerosol variability over the Mediterranean (Nabat et al., 2015b).

Using CNRM-RCSM with the new AOD monthly climatology over the period 2003–2009 (Nabat et al., 2013), Nabat et al. (2015a) have notably highlighted the response of the Mediterranean sea surface temperature (SST) to the aerosol direct and semi-direct radiative forcing. Figure 29a presents the annual average difference in SST over the period 2003–2009 between a simulation ensemble including aerosols and a second one without any aerosol. Aerosols are found to induce an average decrease in SST by 0.5 °C, because of the scattering and absorption of incident radiation. As a consequence, the latent heat loss is also reduced by aerosols (Fig. 29b), as well as precipitation (Fig. 29c). This result also underlines the importance of taking into account the ocean–atmosphere coupling in regional aerosol–climate studies over the Mediterranean.

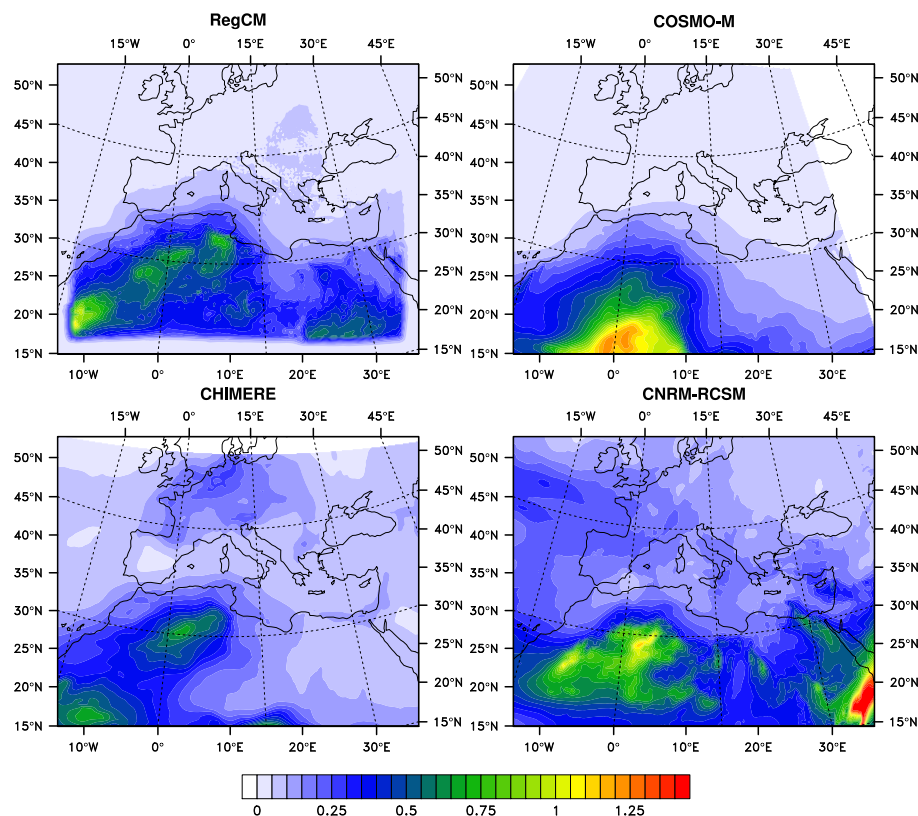
### 6.5 SOP-1a multi-model aerosol simulations

#### 6.5.1 Aerosol optical depth

Figure 30 reports the AOD (in the visible range) simulated for the SOP-1a period and for the COSMO-M (550 nm), RegCM (between 440 and 670 nm), CNRM-RCSM (550 nm) and CHIMERE (500 nm) models. Except for the CTM-CHIMERE model, which includes all the secondary species (SOA and inorganic), the others have different aerosol schemes and take into account both natural (COSMO-M) or natural plus a part of anthropogenic aerosols as described in Table 7. The configurations used for each models are listed in Table 7. One can observe the large variability of AOD simulated by models over the Mediterranean region, with highest values clearly simulated by the COSMO-M (AOD  $\sim$  1–1.5 in the visible wavelengths) over the northern African region. The CHIMERE model indicates two different regions where AOD peaks around 1, over Algeria–Tunisia and southern Morocco. For COSMO-M and CHIMERE, no intense dust AOD is simulated over northeastern Africa (Libya and Egypt), and values are below 0.25, contrary to RegCM and



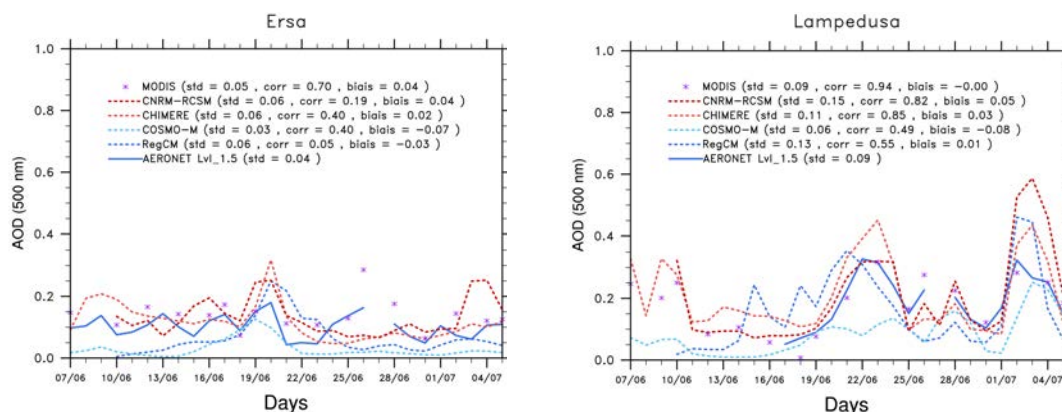
**Figure 29.** Annual average difference in (a) sea surface temperature (SST), latent heat loss (b) and precipitation (c) over the period 2003–2009 between a simulation ensemble including aerosols and a second one without any aerosol.



**Figure 30.** AOD averaged for the 15 to 25 June 2013 period from the models RegCM, COSMO-MUSCAT, CHIMERE and CNRM-RCSM. Details about the model configurations are provided in Table 7.

CNRM-RCSM that simulate moderate AOD over this region, with more intense peaks ( $\sim 0.7$  for CNRM-RCSM simulations). Some identified regions with important AOD over Tunisia, Algeria, and southern Morocco are well captured by all models, except COSMO-M, which shows more intense AOD south of Algeria. It should be noted that this regional pattern of AOD is found to be consistent with MODIS observations as shown by Menut et al. (2015) for the CHIMERE model. Averaged over the SOP-1a period, all models simulate low to moderate AOD over the EURO-Mediterranean

region, which is consistent with AERONET/PHOTONS observations (Fig. 14). Once again and as noted by Menut et al. (2015), this modeling exercise clearly shows that the summer of 2013 was not characterized by intense dust plumes or intense anthropogenic or forest fire emissions. However, modeling results indicate regular dust intrusions during the SOP-1a characterized by moderate atmospheric loads. Over Europe, the CHIMERE CTM obviously simulates anthropogenic aerosol AOD ( $\text{AOD} \sim 0.3$ ), especially over Benelux and the Po Valley that are not simulated by



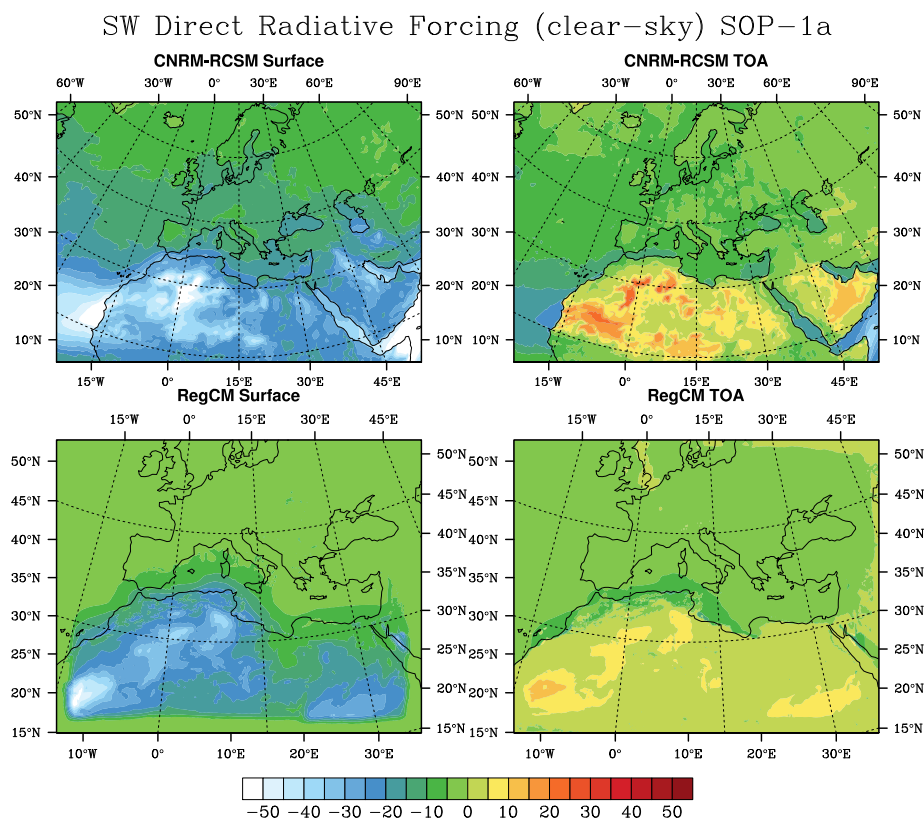
**Figure 31.** Time series of AOD comparisons between AERONET/PHOTONS observations and COSMO-MUSCAT, CHIMERE, CNRM-RCSM and RegCM model outputs over the two stations of Ersa and Lampedusa. The MODIS retrievals are also indicated.

the two other regional models. Indeed, CNRM-RCSM simulations reveal a more diffuse AOD about 0.2 over Europe with maximum over Western France certainly due to the advection of primary marine particles generated over the Atlantic Ocean. RegCM simulations indicate a plume of anthropogenic aerosols over the Balkan region mainly due to secondary inorganic species. As RegCM does not use the spectral nudging technique in this simulation and are only forced at the boundaries during the period of simulation, some biases in meteorological fields could appear (as for the precipitation location and intensity), which need to be evaluated. Finally and in addition to analysis of the AOD regional pattern, a specific comparison with in situ observations and remote-sensing (AERONET/PHOTONS and satellite) data has been made for the CTM-CHIMERE model (Menut et al., 2015) and is planned in accompanied studies for the COSMO-M, RegCM and CNRM-RCSM models, associated with an inter-comparison exercise for evaluating the dust emissions, vertical distribution, size distribution and dry/wet deposition using all data collected in the framework of the SOP-1a.

In parallel to time-averaged AOD simulated at the regional scale, we report comparisons of simulated AOD with AERONET/PHOTONS data for the two reference stations (Lampedusa and Ersa). As reported in Table 7, it should be reminded here that all models did not take into account aerosol species in a similar way. As an example, COSMO-MUSCAT includes mineral dust only in this simulation, while CNRM-RCSM and the RegCM model include natural (sea spray and dust) and sulfates as well as secondary ammonium and nitrate particles (treated as bulk aerosols), but for RegCM only. The most complete regional model is the CTM-CHIMERE, which takes into account natural and all anthropogenic particles (including secondary organics and inorganic) resolved in size by using a number of bins (Menut et al., 2013) higher than used in RegCM, CNRM-RCSM or COSMO-MUSCAT (number of dust bins between 3 and 4 bins) models. Figure 31 reports the time evolution of simu-

lated and observed AOD at 550 nm for the two sites (Ersa and Lampedusa) during the SOP-1a. Time correlation, as well as bias, is calculated after removing AERONET/PHOTONS data for 27 June, strongly affected by smoke aerosols transported from North America biomass burning sources that are not included in the different domains. Figure 31 indicates that all models are able to simulate AOD in the range of magnitude of observations. For the dusty Lampedusa site, CNRM-RCSM and CHIMERE reveal high temporal correlations (0.82 and 0.85, respectively), with standard deviations close to AERONET/PHOTONS data, especially for CHIMERE. For this station, COSMO-M and RegCM display moderate temporal correlation (0.55 and 0.49, respectively) compared to CNRM-RCSM and CHIMERE. As already mentioned, one reason for the lowest time correlation for these models is related to the fact that they are only forced at the boundaries, and the synoptic conditions inside the domain can be derived during the simulation. This effect is limited for CNRM-RCSM that used the spectral nudging technique and for CHIMERE forced by WRF meteorological field (Menut et al., 2015). For each models, biases are shown to be low, both positive (for CNRM-RCSM and CHIMERE) and negative (for COSMO-M and RegCM).

For the Ersa station, less influenced by long-range transport of mineral dust during this period, temporal correlations are lowest and found to be moderate (0.40) for CHIMERE and COSMO-M and low for RegCM and CNRM-RCSM. In terms of bias, values are positive and low (0.02 to 0.04) for all models, except for COSMO-M (−0.07), which does not include anthropogenic aerosols or sea spray in the present simulation (Table 7). For each model, calculated standard deviations are in the same range of magnitude but slightly higher than observations, especially for RegCM (bias of 0.08) that simulated a large AOD for the 19–20 June period. By comparison with the values obtained in Lampedusa, these low correlations at Ersa reveal the limitations of these models in terms of horizontal resolution with respect to the



**Figure 32.** Averaged surface and TOA SW DRF simulated in clear-sky conditions and over the SOP-1a period by the CNRM-RCSM and RegCM models.

representativeness of the site. Lampedusa being isolated in the middle of the Mediterranean and under the main pathways of African mineral dust, AOD is mostly related to long-range transport. On the other hand, the site of Erba in Corsica may under several types of aerosol contributions (anthropogenic, biogenic) be more intense and more spatially variable than in Lampedusa. Erba being closer to large industrial areas, the models with a horizontal resolution of tens of kilometers are probably not highly enough resolved to catch small-scale aerosol plumes from the continent.

### 6.5.2 Regional SW 3-D direct radiative forcing

The SW (clear-sky) DRF, averaged for the SOP-1a period, has been estimated from the RegCM and CNRM-RCSM models, both at the surface and TOA, as shown in Fig. 32. For this discussion, we only consider these two models as they estimate the clear-sky SW DRF by taking into account natural and anthropogenic aerosols, contrary to the COSMO-MUSCAT model in this study. At the surface first, one can observe the large regional dimming due to anthropogenic (especially over Europe) and natural (northern Africa and Mediterranean) particles over the Euro-Mediterranean. Concerning the northern African region, both models simulate large surface forcing  $\sim -20 \text{ W m}^{-2}$  (with local maxima of

$-50 \text{ W m}^{-2}$  associated with higher AOD). CNRM-RCSM is shown to simulate higher surface radiative forcing for the whole domain, especially over Algeria. Although such RCM climate models are not designed to simulate finely the size distribution and the chemical composition of aerosols as an A-Q (Air-Quality) system (Menut et al., 2013), a first estimate of the radiative effect of polluted particles over Europe is provided. Figure 32 displays a negative forcing, obviously lower than for mineral dust, of about  $-10$  to  $-15 \text{ W m}^{-2}$  for RegCM, especially over the Balkans, and no significant radiative effect over the Benelux region for this period. Over the continental region, CNRM-RCSM simulated a more diffuse surface forcing with values around  $-10 \text{ W m}^{-2}$ , including a large part of Europe (France, Benelux and eastern Europe). As shown recently by Nabat et al. (2015a), this decrease in SW radiations due to aerosols could perturb the surface continental temperature, SST and latent heat fluxes over the Mediterranean Sea and more largely on meteorological fields.

At TOA, the dipole of the direct forcing between the north and the south of the domain is well reproduced by the two RCM systems, with more intense values for CNRM-RCSM. One can clearly observe positive forcing at TOA (heating) over northern Africa and negative forcing (cooling) over the Mediterranean and Europe. This represents one of

**Table 7.** Main characteristics (period of simulations, horizontal resolution, number of vertical layers, main aerosol (primary and/or secondary) species, radiative transfer codes) of the four different 3-D models used during the SOP-1a experiment (see Sect. 6) (GME is for the global model of the German Weather Service).

Models	Time of simulation	Horizontal resolution	Number of vertical layers	Aerosol species	Boundary layer forcing	Radiative transfer code
CHIMERE	1 Jun–31 Jul	50 km	20	Dust, sea salt, secondary organic and inorganic, primary OC–BC	WRF	FastUX
CNRM-RCSM	1 Jun–31 Jul	50 km	31	Dust, sea salt, sulfates, primary OC–BC	ERA-Interim	SW: FMR (six bands, Morcrette et al., 1989) LW: RRTM (Mlawer et al., 1997)
RegCM	13 Jun–5 Jul	25 km	23	Dust, sea salt, secondary inorganic, primary OC–BC	NCEP reanalysis	CCM3 or RRTM
COSMO-MUSCAT	15 May–31 Jul	28 km	40	Dust	GME	Ritter and Geleyn (1992)

the characteristics of the Euro-Mediterranean region, with a large variability of surface albedo from the south (with higher values) to the north (low to moderate albedo). Due to this gradient in the surface albedo, moderate absorbing dust aerosols emitted over northern Africa (characterized by high surface albedo) decrease the shortwave radiations reflected at TOA, compared to a non-turbid atmosphere. When advected above low surface reflectance as marine or dense forest over Europe, dust aerosols increase the upward SW radiations at TOA, leading to a cooling effect. One can see the transition from positive to negative TOA forcing that occurs over northern Algeria and Morocco as soon as dust particles are transported over darker surfaces. This TOA radiative forcing gradient is well captured by such RCM models that use a finer resolution than GCM. Over Europe and Mediterranean, the TOA forcing is simulated to be negative for both RCM with lower values around  $-5$  to  $-10 \text{ W m}^{-2}$ . Such results are consistent with the study of Nicolas et al. (2016), who performed two different simulations using different surface albedo (from marine to continental), based on the ATR-42 observations above the Balearic Islands and the Granada station. The inclusion of high surface albedo (0.27 at 870 nm) in the 1-D radiative transfer model compared to low sea surface albedo (0.02 at 870 nm) contributes to decrease the TOA radiative effect at Granada.

The last important point to mention here concerns the fact that most SW radiation losses at the surface are not completely compensated for by fluxes reflected back to space. Hence, this gain in solar energy within dusty layers (due to moderate dust SW absorption; see Denjean et al., 2015) has been shown to result in significant feedbacks on the temperature and relative humidity profiles over the Mediterranean region, with some important implications for its climate (Nabat et al., 2015a).

## 7 Conclusions

The special observing period (SOP-1a) performed during the Mediterranean dry season (11 June to 5 July 2013) over the western and central Mediterranean basins has been described in detail, as well as the 1-D to 3-D modeling effort, involved in the ChArMEx/ADRIED project focused on aerosol-radiation-climate interactions. Details of the in situ and remote-sensing instrumentation deployed at the different sites and the main meteorological conditions that occurred during the campaign have been provided. Some results from the in situ and remote-sensing observations, vertical profiles, 1-D and 3-D aerosol direct radiative forcing (DRF) computations have also been presented. Concerning the aerosol loading during the SOP-1a, our results indicate that numerous but moderate mineral dust plumes were observed during the campaign with main sources located in Morocco, Algeria and Tunisia, leading to AOD between 0.1 and 0.6 (at 440 nm) over the western and central

Mediterranean. Analysis of synoptic situations demonstrates unfavorable conditions to produce large concentrations of polluted smoke particles during the SOP-1a, but interesting sea-spray events have been observed.

Aerosol extinctions measured onboard the ATR-42 show local maxima reaching up to  $150 \text{ Mm}^{-1}$  within the dust plume, associated with extinctions of about  $50 \text{ Mm}^{-1}$  within the marine boundary layer (MBL), possibly due to the presence of sea-spray aerosols. By combining ATR-42 extinction, absorption and scattering measurements, complete optical closures have been made, revealing an excellent agreement in estimated optical properties. This additional information on extinction properties has allowed calculation of the dust single scattering albedo (SSA) with a high level of confidence over the western Mediterranean. Our results show a surprising moderate variability from 0.90 to 1.00 (at 530 nm) for all flights studied, corroborated by AERONET/PHOTONS SSA retrievals. The SSA derived during the ChArMEx/ADRIED project has also been compared with referenced values obtained near dust sources, showing a relatively low difference in this optical parameter at 530 nm.

Concerning the aerosol vertical structure, active remote-sensing observations, at the surface and onboard the F-20, indicate complex vertical profiles of particles with sea spray and pollution located in the MBL, and mineral dust and/or even aged North American smoke particles located above (up to 6–7 km in altitude). Microphysical properties of aerosols measured onboard the ATR-42 and balloon-borne observations for transported/aged mineral dust reveal particle volume size distributions with diameters greater than  $10 \mu\text{m}$ . In most cases, a coarse mode of mineral dust particles, characterized by an effective diameter  $D_{\text{eff,c}}$  ranging between 5 and  $10 \mu\text{m}$ , has been detected within the dust layer located above the MBL. Such values are found to be larger than those referenced in dust source regions during FENNEC, SAMUM1 and AMMA, as well as measurements in the Atlantic Ocean in the Cape Verde region during SAMUM-2 and at Puerto Rico during PRIDE.

In terms of shortwave (SW) and longwave (LW) DRF, in situ surface and aircraft observations have been merged and used as inputs in different radiative transfer codes for calculating the 1-D DRF. Modeling results show significant surface (instantaneous) SW radiative forcing down to as much as  $-90 \text{ W m}^{-2}$  over super-sites. In parallel, AOD together with surface radiative flux observations have also been used to directly estimate the local daily surface forcing in SW (and LW) spectral regions, showing a significant effect with values of  $-15 \text{ W m}^{-2}$  ( $+5.5 \text{ W m}^{-2}$ ) over Lampedusa. Such DRFs are consistent with those previously referenced over the Mediterranean basin. In parallel, aircraft observations also provide original and new estimates of SW and LW radiative heating vertical profiles with significant values of SW heating of about  $5^\circ\text{K}$  per day within the dust layer (for a solar angle of  $30^\circ$ ).

Associated 3-D modeling studies, using regional climate (RCM) and chemistry transport (CTM) models, indicate a relatively good agreement between simulated AOD and that determined from AERONET/PHOTONS data. Such models allow 3-D calculations of the daily SW DRF revealing a regional DRF of  $-10$  to  $-20 \text{ W m}^{-2}$  (at the surface and in clear-sky conditions), when averaged over the SOP-1a period. At TOA, a significant dipole in the DRF is estimated between the north and the south of the domain, with positive (heating) over northern Africa and negative (cooling) DRF over the Mediterranean basin and Europe, reflecting changes in surface albedo associated with moderately absorbing aerosols. A first multi-year simulation (conducted for the 2003 to 2009 period) that takes into account the ocean–atmosphere coupling has demonstrated that the significant aerosol radiative forcing is responsible for a decrease in sea surface temperature (on average  $-0.5^\circ\text{C}$  for the Mediterranean). In addition, the latent heat loss is shown to be weaker in the presence of aerosols, resulting in a decrease in specific humidity in the lower troposphere, and a reduction in cloud cover and precipitation.

This unprecedented data set of aerosol microphysical, chemical, optical properties and vertical profiles obtained over the western Mediterranean will now be used for evaluating regional models to reproduce such properties. In addition to classical model evaluations based generally on the AOD, new comparisons between models and in situ observations on aerosol absorbing (SSA and AAOD) properties and SW and LW heating rates, which control the semi-direct effect of aerosols, should be conducted. Comparisons will also be performed on the aerosol size distribution for investigating the ability of regional models to simulate the observed large dust particle size during the transport over the Mediterranean, which could be helpful for improving the representation of deposition in such models. In parallel, in situ observations of sea-spray particles obtained at the surface and from ATR-42 measurements will also be used to evaluate the different primary sea-spray generation schemes, in terms of concentration and size distribution. The objective is to improve the representation of microphysical and optical properties of aerosols in regional climate models that will be used in multi-year simulations to assess the impact of natural and anthropogenic aerosols on the climate in this region.

*Acknowledgements.* This research has received funding from the French National Research Agency (ANR) project ADRIED (contract ANR-11-BS56-0006). This work is part of the ChArMEx project supported by ADEME, CEA, CNRS-INSU and Météo-France through the multidisciplinary programme MISTRALS (Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales). The station at Erba was partly supported by the CORSiCA project funded by the Collectivité Territoriale de Corse through the Fonds Européen de Développement Régional of the European Operational Program 2007–2013 and the Contrat de Plan Etat-Région. We acknowledge the AERONET/PHOTONS sun-photometer networks

and the PIs of the selected stations and their staff for their work to produce the data set used in this study. The financial support for EARLINET in the ACTRIS Research Infrastructure Project by the European Union's Horizon 2020 research and innovation program under grant agreement no. 654169 and previously under grant agreement no. 262254 in the 7th Framework Programme (FP7/2007–2013) is gratefully acknowledged. In particular, the authors are thankful to the Italian EARLINET PIs (Maria Rita Perrone, Lecce; Nicola Spinelli, Naples; Gelsomina Pappalardo, Potenza; Simona Scollo, Serra La Nave) and their staff. Measurements at Lampedusa by ENEA were partly supported by the Italian Ministry for University and Research through the NextData and Ritmare projects. This study, especially the balloon campaign and part of the aircraft operations, has also been supported by the French space agency (CNES). The technical staff of SAFIRE, INSU Technical Division and the CNES Balloon sub-directorate (with special mention to Aurélien Bourdon and Gilles Dupouy) are warmly acknowledged for their contribution to the success of the experimental work. Contributions by Didier Bruneau (Latmos), Silvia Becagli (Univ. of Florence, Italy), Marco Cacciani (Univ. of Rome, Italy), Julian Groebner and Natalia Kouremeti (Physikalisch-Meteorologisches Observatorium Davos, World Radiation Center, Switzerland), and José Antonio Martínez Lozano (University of Valencia, Spain) are gratefully acknowledged. Barcelona station was partially supported by the Spanish Ministry of Economy and Competitiveness (project TEC2012-34575) and of Science and Innovation (project UNPC10-4E-442) and FEDER funds, and by the Department of Economy and Knowledge of the Catalan Autonomous Government (grant 2014 SGR 583). Granada station was partially supported by the Andalusian Regional Government through project P12-RNM-2409 and by the Spanish Ministry of Science and Technology through project CGL2013-45410-R. Sahar Hassanzadeh, Constantino Muñoz-Porcar, Santi Bertolín and Diego Lange are also acknowledged for their kind assistance in operating the Menorca surface station, as well as François Gheusi, Brice Barret, Flore Tocquer, and Yves Meyerfeld for their contribution to the balloon campaign preparation and/or deployment. Claude Basdevant, Alexis Doerenbecher, and Fabien Bernard are acknowledged for their help and very useful tools in support of our drifting balloon experiment.

Edited by: O. Dubovik

## References

- Alados-Arboledas, L., Lyamani, H., and Olmo, F. J.: Aerosol size properties at Armilla, Granada (Spain), *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 129, 1395–1413, 2003.
- Alados-Arboledas, L., Alcántara, A., Olmo, F. J., Martínez-Lozano, J. A., Estellés, V., Cachorro, V., Silva, A. M., Horvath, H., Gangl, M., Díaz, A., Pujadas, M., Lorente, J., Labajo, A., Sorribas, M., and Pavese, G.: Aerosol columnar properties retrieved from CIMEL radiometers during VELETA 2002, *Atmos. Environ.*, 42, 2654–2667, 2008.
- Amiridis, V., Zerefos, C., Kazadzis, S., Gerasopoulos, E., Eleftheratos, K., Vrekoussis, M., Stohl, A., Mamouri, R. E., Kokkalis, P., Papayannis, A., Eleftheriadis, K., Diapouli, E., Keramitsoglou, I., Kontoes, C., Kotroni, V., Lagouvardos, K., Marinou, E., Giannakaki, E., Kostopoulou, E., Giannakopoulos, C., Richter, A., Burrows, J. P., and Mihalopoulos, N.: Impact of the 2009 Attica wild fires on the air quality in urban Athens, *Atmos. Environ.*, 46, 536–544, 2012.
- Ancellet, G., Pelon, J., Totems, J., Chazette, P., Bazureau, A., Sicard, M., Di Iorio, T., Dulac, F., and Mallet, M.: Long range transport and mixing of aerosol sources during the 2013 North American biomass burning episode: analysis of multiple lidar observations in the Western Mediterranean basin, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 32323–32365, doi:10.5194/acpd-15-32323-2015, 2015.
- Antón, M., Valenzuela, A., Mateos, D., Alados, I., Foyo-Moreno, I., Olmo, F. J., and Alados-Arboledas, L.: Longwave aerosol radiative effects during an extreme desert dust event in southeastern Spain, *Atmos. Res.*, 148, 18–23, 2014.
- Baldassarre, G., Pozzoli, L., Schmidt, C. C., Unal, A., Kindap, T., Menzel, W. P., Whitburn, S., Coheur, P.-F., Kavcaci, A., and Kaiser, J. W.: Using SEVIRI fire observations to drive smoke plumes in the CMAQ air quality model: a case study over Antalya in 2008, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8539–8558, doi:10.5194/acp-15-8539-2015, 2015.
- Balis, D. S., Amiridis, V., Nickovic, S., Papayannis, A., and Zerefos, C.: Optical properties of Saharan dust layers as detected by a Raman lidar at Thessaloniki, Greece, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L13104, doi:10.1029/2004GL019881, 2004.
- Balis, D., Amiridis, V., Kazadzis, S., Papayannis, A., Tsaknakis, G., Tzortzakis, S., Kalivitis, N., Vrekoussis, M., Kanakidou, M., Mihalopoulos, N., Chourdakis, G., Nickovic, S., Pérez, C., Baldasano, J., and Drakakis, M.: Optical characteristics of desert dust over the East Mediterranean during summer: a case study, *Ann. Geophys.*, 24, 807–821, doi:10.5194/angeo-24-807-2006, 2006.
- Barnaba, F., Angelini, F., Curci, G., and Gobbi, G. P.: An important fingerprint of wildfires on the European aerosol load, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10487–10501, doi:10.5194/acp-11-10487-2011, 2011.
- Barragan, R., Sicard, M., Totems, J., Léon, J.-F., Renard, J.-B., Dulac, F., Mallet, M., Pelon, J., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., Augustin, P., Boselli, A., Bravo-Aranda, J. A., Burlizzi, P., Chazette, P., Comerón, A., D'Amico, G., Granados-Muñoz, M. J., Leto, G., Guerrero-Rascado, J. L., Madonna, F., Mona, L., Muñoz-Porcar, C., Pappalardo, G., Perrone, M. R., Pont, V., Roca-denbosch, F., Rodriguez, A., Scollo, S., Spinelli, N., Titos, G., Wang, X., and Zanmar Sanchez, R.: Characterization of aerosol transport and ageing during a multi-intrusion Saharan dust event over the western and central Mediterranean Basin in June 2013 in the framework of the ADRI-MED/ChArMEx campaign, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, in preparation, 2016.
- Benavent-Oltra, J. A., Granados-Muñoz, M. J., Pérez, D., Román, R., Bravo-Aranda, J. A., Titos, G., Guerrero-Rascado, J. L., Navas-Guzmán, F., Mallet, M., Ortiz-Amezcu, P., Lyamani, H., Valenzuela, A., Cazorla, A., Olmo, F. J., and Alados-Arboledas, L.: Remote-sensing and in-situ characterization of atmospheric aerosol during ChArMEx/ADRI-MED over Granada, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, in preparation, 2016.
- Berthier, S., Chazette, P., Couvert, P., Pelon, J., Dulac, F., Thieuleux, F., Moulin, C., and Pain, T.: Desert dust aerosol columnar properties over ocean and continental Africa from Lidar in-Space Technology Experiment (LITE)

- and Meteosat synergy, *J. Geophys. Res.*, 111, D21202, doi:10.1029/2005JD006999, 2006.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honoré, C., Liousse, C., and Rouil, L.: Aerosol modeling with CHIMERE: preliminary evaluation at the continental scale, *Atmos. Environ.*, 38, 2803–2817, 2004.
- Beuvier, J., Sevault, F., Herrmann, M., Kontoyiannis, H., Ludwig, W., Rixen, M., Stanev, E., Béranger, K., and Somot, S.: Modeling the Mediterranean Sea interannual variability during 1961–2000: Focus on the Eastern Mediterranean Transient, *J. Geophys. Res.*, 115, C08017, doi:10.1029/2009JC005950, 2010.
- Brauch, H. G.: Urbanization and natural disasters in the Mediterranean: Population growth and climate change in the 21st century, in *Building Safer Cities – The Future of Disaster Risk*, edited by: Kreimer, A., Arnold, M., and Carlin, A., The World Bank, Washington D.C., Disaster Risk Management Series No.3, 149–164, 2003.
- Cachier, H., Aulagnier, F., Sarda, R., Gautier, F., Masclet, P., Besombes, J. L., Marchand, N., Despiu, S., Croci, D., Mallet, M., Laj, P., Marinoni, A., Deveau, P. A., Roger, J. C., Putaud, J. P., Van Dingenen, R., Dell’Acqua, A., Viidanoja, J., Martins-Dos Santos, S., Liousse, C., Cousin, F., and Rosset, R.: Aerosol studies during the ESCOMPTE Experiment: an overview, *Atmos. Res.*, 74, 547–563, doi:10.1016/j.atmosres.2004.06.013, 2005.
- Cachorro, V. E., Toledano, C., Prats, N., Sorribas, M., Mogo, S., Berjon, A., Torres, B., Rodrigo, R., de la Rosa, J., and De Frutos, A. M.: The strongest desert dust intrusion mixed with smoke over the Iberian Peninsula registered with Sun photometry, *J. Geophys. Res.*, 113, D14S04, doi:10.1029/2007JD009582, 2008.
- Casasanta, G., di Sarra, A., Meloni, D., Monteleone, F., Pace, G., Piacentino, S., and Sferlazzo, D.: Large aerosol effects on ozone photolysis in the Mediterranean, *Atmos. Environ.*, 45, 3937–3943, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.04.065, 2011.
- Chazette, P. and Liousse, C.: A case study of optical and chemical ground apportionment for urban aerosols in Thessaloniki, *Atmos. Environ.*, 35, 2497–2506, doi:10.1016/S1352-2310(00)00425-8, 2001.
- Chazette, P., Marnas, F., Totems, J.: The mobile Water vapor Aerosol Raman Lidar and its implication in the framework of the HyMeX and ChArMEx programs: application to a dust transport process, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 1629–1647, doi:10.5194/amt-7-1629-2014, 2014a.
- Chazette, P., Marnas, F., Totems, J., and Shang, X.: Comparison of IASI water vapor retrieval with H<sub>2</sub>O-Raman lidar in the framework of the Mediterranean HyMeX and ChArMEx programs, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9583–9596, doi:10.5194/acp-14-9583-2014, 2014b.
- Chazette, P., Totems, J., Ancellet, G., Pelon, J., and Sicard, M.: Temporal consistency of lidar observables during aerosol transport events in the framework of the ChArMEx/ADRIMED campaign at Menorca Island in June 2013, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 32723–32757, doi:10.5194/acpd-15-32723-2015, 2015.
- Chenoweth J., Hadjinicolaou, P., Bruggeman, A., Lelieveld, J., Levin, Z., Lange, M. A., Xoplaki, E., and Hadzikakou, M.: Impact of climate change on the water resources of the eastern Mediterranean and middle east region: modeled 21st century, *Water Resour. Res.*, 47, W06506, doi:10.1029/2010WR010269, 2011.
- Ciardini, V., Di Iorio, T., Di Liberto, L., Tirelli, C., Casasanta, G., di Sarra, A., Fiocco, G., Fuà, D., and Cacciani, M.: Seasonal variability of tropospheric aerosols in Rome, *Atmos. Res.*, 118, 205–214, doi:10.1016/j.atmosres.2012.06.026, 2012.
- Claeys, M., Roberts, G., Mallet, M., Sciare, J., Sellegri, K., Sauvage, B., Tulet, P., and Arndt, J.: Characterisation of a sea salt episode during ADRIMED campaign: ageing, transport and size distribution study, in preparation, 2016.
- Collaud Coen, M., Weingartner, E., Schaub, D., Hueglin, C., Corrigan, C., Henning, S., Schwikowski, M., and Baltensperger, U.: Saharan dust events at the Jungfraujoch: detection by wavelength dependence of the single scattering albedo and first climatology analysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 2465–2480, doi:10.5194/acp-4-2465-2004, 2004.
- Denjean, C., Cassola, F., Mazzino, A., Triquet, S., Chevaillier, S., Grand, N., Bourrianne, T., Momboisse, G., Sellegri, K., Schwarzenbock, A., Freney, E., Mallet, M., and Formenti, P.: Size distribution and optical properties of mineral dust aerosols transported in the western Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 21607–21669, doi:10.5194/acpd-15-21607-2015, 2015.
- Déqué, M. and Somot, S.: Extreme precipitation and high resolution with Aladin, Időjaras, Q. J. Hungarian Meteorol. Service, 112, 179–190, 2008.
- Derimian, Y., Karnieli, A., Kaufman, Y. J., Andreae, M. O., Andreae, T. W., Dubovik, O., Maenhaut, W., Koren, I., and Holben, B. N.: Dust and pollution aerosols over the Negev desert, Israel: Properties, transport, and radiative effect, *J. Geophys. Res.*, 111, D05205, doi:10.1029/2005JD006549, 2006.
- Deschamps, P.-Y., Bréon, F.-M., Leroy, M., Podaire, A., Bricaud, A., Buriez, J. C., and Sèze, G.: The POLDER mission: Instrument characteristics and scientific objectives, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 32, 598–615, 1994.
- Di Biagio, C., di Sarra, A., Meloni, D., Monteleone, F., Piacentino, S., and Sferlazzo, D.: Measurements of Mediterranean aerosol radiative forcing and influence of the single scattering albedo, *J. Geophys. Res.*, 114, D06211, doi:10.1029/2008JD011037, 2009.
- Di Biagio, C., di Sarra, A., and Meloni, D.: Large atmospheric shortwave radiative forcing by Mediterranean aerosol derived from simultaneous ground-based and spaceborne observations, and dependence on the aerosol type and single scattering albedo, *J. Geophys. Res.*, 115, D10209, doi:10.1029/2009JD012697, 2010.
- Di Iorio, T., Di Sarra, A., Junkermann, W., Cacciani, M., Fiocco, G., and Fuà, D.: Tropospheric aerosols in the Mediterranean: 1. Microphysical and optical properties, *J. Geophys. Res.*, 108, 4316, doi:10.1029/2002JD002815, 2003.
- Di Iorio, T., di Sarra, A., Sferlazzo, D. M., Cacciani, M., Meloni, D., Monteleone, F., Fuà, D., and Fiocco, G.: Seasonal evolution of the tropospheric aerosol vertical profile in the central Mediterranean and role of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 114, D02201, doi:10.1029/2008JD010593, 2009.
- Di Iorio, T., Di Biagio, C., di Sarra, A., Formenti, P., Gomez Amo, J.-L., Meloni, D., and Pace, G.: Height resolved aerosol optical properties at Lampedusa during ADRIMED, in preparation, 2016.
- di Sarra, A., Pace, G., Meloni, D., De Silvestri, L., Piacentino, S., and Monteleone, F.: Surface shortwave radiative forcing of dif-

- ferent aerosol types in the central Mediterranean, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L02714, doi:10.1029/2007GL032395, 2008.
- di Sarra, A., Di Biagio, C., Meloni, D., Monteleone, F., Pace, G., Pugnaghi, S., and Sferlazzo, D.: Shortwave and longwave radiative effects of the intense Saharan dust event of 25–26 March 2010 at Lampedusa (Mediterranean Sea), *J. Geophys. Res.*, 116, D23209, doi:10.1029/2011JD016238, 2011.
- di Sarra, A., Fuà, D., and Meloni, D.: Estimate of surface direct radiative forcing of desert dust from atmospheric modulation of the aerosol optical depth, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5647–5654, doi:10.5194/acp-13-5647-2013, 2013.
- di Sarra, A., Sferlazzo, D., Meloni, D., Anello, F., Bommarito, C., Corradini, S., De Silvestri, L., Di Iorio, T., Monteleone, F., Pace, G., Piacentino, S., and Pugnaghi, S.: Empirical correction of multi filter rotating shadowband radiometer (MFRSR) aerosol optical depths for the aerosol forward scattering and development of a long-term integrated MFRSR-Cimel dataset at Lampedusa, *Appl. Optics*, 54, 2725–2737, doi:10.1364/AO.54.002725, 2015.
- Dubovik, O. and King, M. D.: A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 20673–20696, doi:10.1029/2000JD900282, 2000.
- Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B. N., King, M. D., Kaufman, Y. J., Eck, T. F., and Slutsker, I.: Accuracy assessment of aerosol optical properties retrieval from AERONET Sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105, 9791–9806, doi:10.1029/2000JD900040, 2000.
- Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *J. Atmos. Sci.*, 59, 590–608, doi:10.1175/1520-0469(2002)059<0590:VOAAOP>2.0.CO;2, 2002.
- Dubovik, O., Sinyuk, A., Lapyonok, T., Holben, B. N., Mishchenko, M., Yang, P., Eck, T. F., Volten, H., Muñoz, O., Veihelmann, B., van der Zande, W. J., Léon, J.-F., Sorokin, M., and Slutsker, I.: Application of spheroid models to account for aerosol particle nonsphericity in remote sensing of desert dust, *J. Geophys. Res.*, 111, D11208, doi:10.1029/2005JD006619, 2006.
- Dubuisson, P., Dessailly, D., Vesperini, M., and Frouin, R.: Water vapor retrieval over ocean using near-infrared radiometry, *J. Geophys. Res.*, 109, D19106, doi:10.1029/2004JD004516, 2004.
- Ducrocq, V., Braud, I., Davolio, S., Ferretti, R., Flamant, C., Jansa, A., Kalthoff, N., Richard, E., Taupier-Letage, I., Ayrat, P. A., Belamari, S., Berne, A., Borga, M., Boudevillain, B., Bock, O., Boichard, J. L., Bouin, M. N., Bousquet, O., Bouver, C., Chiggiato, J., Cimini, D., Corsmeier, U., Coppola, L., Cocquerez, P., Defer, E., Delanoë, J., Delrieu, G., Di Girolamo, P., Doerenbecher, A., Drobinski, P., Dufournet, Y., Fourrié, N., Gourley, J. J., Labatut, L., Lambert, D., Le Coz, J., Marzano, F. S., Montani, A., Nuret, M., Ramage, K., Rison, B., Roussot, O., Saïd, F., Schwarzenboeck, A., Testor, P., Van Baelen, J., Vincendon, B., Aran, M., and Tamayo, J.: HyMeX-SOP1, the Field Campaign Dedicated to Heavy Precipitation and Flash-Flooding in Northwestern Mediterranean, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 95, 1083–1100, doi:10.1175/BAMS-D-12-00244.1, doi:10.1175/BAMS-D-12-00244.2, 2014.
- Dulac, F. and Chazette, P.: Airborne study of a multi-layer aerosol structure in the eastern Mediterranean observed with the airborne polarized lidar ALEX during a STAAARTE campaign (7 June 1997), *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1817–1831, doi:10.5194/acp-3-1817-2003, 2003.
- Eleftheriadis, K., Colbeck, I., Housiada, C., Lazaridis, M., Mihalopoulos, N., Mitsakou, C., Smolik, J., and Zdimal, V.: Size distribution, composition and origin of the submicron aerosol in the marine boundary layer during the eastern Mediterranean “SUB-AERO” experiment, *Atmos. Environ.*, 40, 6245–6260, 2006.
- Foltz, G. R. and McPhaden, M. J.: Impact of Saharan dust on tropical North Atlantic SST, *J. Climate*, 21, 5048–5060, doi:10.1175/2008JCLI2232.1, 2008.
- Formenti, P., Boucher, O., Reiner, T., Sprung, D., Andreae, M. O., Wendisch, M., Wex, H., Kindred, D., Tzortziou, M., Vasaras, A., and Zerefos, C.: STAAARTE-MED 1998 summer airborne measurements over the Aegean Sea, 2. Aerosol scattering and absorption, and radiative calculations, *J. Geophys. Res.*, 107, 4451, doi:10.1029/2001JD001536, 2002.
- Formenti, P., Doussin, J. F., Desboeufs, K., Di Biagio, C., Denjean, C., Maillé, M., Zapf, P., Chevaillier, S., Oskanian, S., Triquet, S., Gaimoz, C., Grand, N., Laurent, B., Loisil, R., D’Anna, B., Mème, A., Bove, M.-C., Massabo, D., Cassola, F., Prati, P., Roberts, G., Mallet, M., Pelon, J., Tanré, D., Parol, F., Gröbner, J., Di Iorio, T., Meloni, D., Pace, G., Gomez-Amo, J.-L., Sferlazzo, D., and di Sarra, A. G.: Characterisation of aerosols in a remote marine atmosphere in the West Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, in preparation, 2016.
- Fotiadi, A., Hatzianastassiou, N., Drakakis, E., Matsoukas, C., Pavlakis, K. G., Hatzidimitriou, D., Gerasopoulos, E., Mihalopoulos, N., and Vardavas, I.: Aerosol physical and optical properties in the Eastern Mediterranean Basin, Crete, from Aerosol Robotic Network data, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 5399–5413, doi:10.5194/acp-6-5399-2006, 2006.
- Gangoiti, G., Millán, M., Salvador, R., and Mantilla, E.: Long-range transport and re-circulation of pollutants in the western Mediterranean during the project Regional Cycles of Air Pollution in the West-Central Mediterranean Area, *Atmos. Environ.*, 35, 6267–6276, doi:10.1016/S1352-2310(01)00440-X, 2001.
- García, O. E., Díaz, J. P., Expósito, F. J., Díaz, A. M., Dubovik, O., Derimian, Y., Dubuisson, P., and Roger, J.-C.: Shortwave radiative forcing and efficiency of key aerosol types using AERONET data, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 5129–5145, doi:10.5194/acp-12-5129-2012, 2012.
- García-Ruiz, J. M., López-Moreno, J. I., Vicente-Serrano, S. M., Lasanta-Martínez, T., and Beguería, S.: Mediterranean water resources in a global change scenario, *Earth-Sci. Rev.*, 105, 121–139, doi:10.1016/j.earscirev.2011.01.006, 2011.
- Gard, E., Mayer, J. E., Morrical, B. D., Dienes, T., Ferguson, D. P., and Prather, K. A.: Real-time analysis of individual atmospheric aerosol particles: Design and performance of a portable ATOFMS, *Anal. Chem.*, 69, 4083–4091, doi:10.1021/ac970540n, 1997.
- Gerasopoulos, E., Andreae, M. O., Zerefos, C. S., Andreae, T. W., Balis, D., Formenti, P., Merlet, P., Amiridis, V., and Papastefanou, C.: Climatological aspects of aerosol optical properties in Northern Greece, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2025–2041, doi:10.5194/acp-3-2025-2003, 2003.
- Gheusi, F., Durand, P., Verdier, N., Dulac, F., Attié, J.-L., Commun, P., Barret, B., Basdevant, C., Clenet, A., Derrien, S., Doerenbecher, El Amraoui, L., Fontaine, A., Hache, E., Jambert, C., Jau-

- mouillé, E., Meyerfeld, Y., Roblou, L., and Tocquer, F.: Adapted ECC ozone sonde for long-duration flights aboard boundary-layer pressurized balloons, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, in review, 2015.
- Gimeno, L., Drumond, A., Nieto, R., Trigo, R. M., and Stohl, A.: On the origin of continental precipitation, *Geophys. Res. Lett.*, 37, L13804, doi:10.1029/2010GL043712, 2010.
- Giorgi, F. and Lionello, P.: Climate change projections for the Mediterranean region, *Global Planet. Change*, 63, 90–104, doi:10.1016/j.gloplacha.2007.09.005, 2008.
- Giorgi, F., Coppola, E., Solmon, F., Mariotti, L., Sylla, M. B., Bi, X., Elguindi, N., Diro, G. T., Nair, V., Giuliani, G., Turuncoglu, U. U., Cozzini, S., Guttler, I., O'Brien, T. A., Tawfik, A. B., Shalaby, A., Zakey, A. S., Steiner, A. L., Stordal, F., Sloan, L. C., and Brankovic, C.: RegCM4: Model description and preliminary tests over multiple CORDEX domains, *Clim. Res.*, 52, 7–29, doi:10.3354/cr01018, 2012.
- Gross, D. S., Atlas, R., Rzeszutarski, J., Turetsky, E., Christensen, J., Benzaid, S., Olson, J., Smith, T., Steinberg, L., and Sulman, J.: Environmental chemistry through intelligent atmospheric data analysis, *Environ. Model. Softw.*, 25, 760–769, doi:10.1016/j.envsoft.2009.12.001, 2010.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181–3210, doi:10.5194/acp-6-3181-2006, 2006.
- Guerrero-Rascado, J. L., Olmo, F. J., Avilés-Rodríguez, I., Navas-Guzmán, F., Pérez-Ramírez, D., Lyamani, H., and Alados Arboledas, L.: Extreme Saharan dust event over the southern Iberian Peninsula in september 2007: active and passive remote sensing from surface and satellite, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8453–8469, doi:10.5194/acp-9-8453-2009, 2009.
- Hamonou, E., Chazette, P., Balis, D., Dulac, F., Schneider, X., Galani, E., Ancellet, G., and Papayannis, A.: Characterization of the vertical structure of Saharan dust export to the Mediterranean basin, *J. Geophys. Res.*, 104, 22257–22270, 1999.
- Harris, I., Jones, P., Osborn, T., and Lister, D.: Updated high-resolution grids of monthly climatic observations – the cru ts3.10 dataset, *Int. J. Climatol.*, 34, 623–642, doi:10.1002/joc.3711, 2013.
- Hashimoto, M., Nakajima, T., Dubovik, O., Campanelli, M., Che, H., Khatrri, P., Takamura, T., and Pandithurai, G.: Development of a new data-processing method for SKYNET sky radiometer observations, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2723–2737, doi:10.5194/amt-5-2723-2012, 2012.
- Hatzianastassiou, N., Gkikas, A., Mihalopoulos, N., Torres, O., and Katsoulis, B. D.: Natural versus anthropogenic aerosols in the eastern Mediterranean basin derived from multiyear TOMS and MODIS satellite data, *J. Geophys. Res.*, 114, D24202, doi:10.1029/2009JD011982, 2009.
- Healy, R. M., Hellebust, S., Kourtchev, I., Allan, A., O'Connor, I. P., Bell, J. M., Healy, D. A., Sodeau, J. R., and Wenger, J. C.: Source apportionment of PM<sub>2.5</sub> in Cork Harbour, Ireland using a combination of single particle mass spectrometry and quantitative semi-continuous measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 9593–9613, doi:10.5194/acp-10-9593-2010, 2010.
- Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenue, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A.: AERONET – A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Rem. Sens. Environ.*, 66, 1–16, doi:10.1016/S0034-4257(98)00031-5, 1998.
- Horvath, H., Alados Arboledas, L., Olmo, F. J., Jovanovic, O., Gangl, M., Sanchez, C., Sauerzopf, H., and Seidl, S.: Optical characteristics of the aerosol in Spain and Austria and its effect on radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 107, 4386, doi:10.1029/2001JD001472, 2002.
- Johnson, G., Ristovski, Z., and Morawska, L.: Application of the VH-TDMA technique to coastal ambient aerosols, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L16105, doi:10.1029/2004GL020126, 2004.
- Kahn, R. A., Gaitley, B. J., Garay, M. J., Diner, D. J., Eck, T. F., Smirnov, A., and Holben, B. N.: Multiangle Imaging SpectroRadiometer global aerosol product assessment by comparison with the Aerosol Robotic Network, *J. Geophys. Res.*, 115, D23209, doi:10.1029/2010JD014601, 2010.
- Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Leetmaa, A., Reynolds, R., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K. C., Ropelewski, C., and Wang, J.: The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 77, 437–470, 1996.
- Karol, Y., Tanré, D., Goloub, P., Vervaeke, C., Balois, J. Y., Blarel, L., Podvin, T., Mortier, A., and Chaikovsky, A.: Airborne sun photometer PLASMA: concept, measurements, comparison of aerosol extinction vertical profile with lidar, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 2383–2389, doi:10.5194/amt-6-2383-2013, 2013.
- Kaskaoutis, D. G., Kharol, S. K., Sifakis, N., Nastos, P. T., Sharma, A. R., Badarinarath, K. V. S., and Kambezidis, H. D.: Satellite monitoring of the biomass-burning aerosols during the wildfires of August 2007 in Greece: Climate implications, *Atmos. Environ.*, 45, 716–726, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.09.043, 2011.
- Kok, J. F.: A scaling theory for the size distribution of emitted dust aerosols suggests climate models underestimate the size of the global dust cycle, *P. Natl. Acad. Sci. USA*, 108, 1016–1021, doi:10.1073/pnas.1014798108, 2011.
- Kubilay, N., Cokacar, T., and Oguz, T.: Optical properties of mineral dust outbreaks over the northeastern Mediterranean, *J. Geophys. Res.*, 108, 4666, doi:10.1029/2003JD003798, 2003.
- Kumar, D., Rocadenbosch, F., Sicard, M., Comeron, A., Muñoz, C., Lange, D., Tomás, S., and Gregorio, E.: Six-channel polychromator design and implementation for the UPC elastic/Raman LIDAR, in: *SPIE Remote Sens., Int. Soc. Opt. Photon., Prague, Czech Republic*, 81820W–81820W, 2011.
- Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P. J., Dentener, F. J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P. J., Heland, J., Holzinger, R., Korrmann, R., Lawrence, M. G., Levin, Z., Markowicz, K. M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., de Reus, M., Roelofs, G. J., Scheeren, H. A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E. G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., and Ziereis, H.: Global air pollution crossroads over the Mediterranean, *Science*, 298, 794–799, doi:10.1126/science.1075457, 2002.
- Léon, J.-F., Augustin, P., Mallet, M., Bourrianne, T., Pont, V., Dulac, F., Fourmentin, M., Lambert, D., and Sauvage, B.: Aerosol vertical distribution, optical properties and transport over Corsica (western Mediterranean), *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 9507–9540, doi:10.5194/acpd-15-9507-2015, 2015.

- Lionello, P., Malanotte-Rizzoli, P., Boscolo, R., Alpert, P., Artale, V., Li, L., Luterbacher, J., May, W., Trigo, R., Tsimplis, M., Ulbrich, U., and Xoplaki, E.: The Mediterranean climate: An overview of the main characteristics and issues, in: *The Mediterranean Climate Variability*, edited by: Lionello, P., Malanotte-Rizzoli, P., and Boscolo, R., *Developments in Earth and Environmental Sciences*, Elsevier, 4, 1–26, 2006.
- Liu, Y., Kahn, R. A., Chaloulakou, A., and Koutrakis, P.: Analysis of the impact of the forest fires in August 2007 on air quality of Athens using multi-sensor aerosol remote sensing data, meteorology and surface observations, *Atmos. Environ.*, 43, 3310–3318, 2009.
- Lyamani, H., Valenzuela, A., Perez-Ramirez, D., Toledano, C., Granados-Muñoz, M. J., Olmo, F. J., and Alados-Arboledas, L.: Aerosol properties over the western Mediterranean basin: temporal and spatial variability, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 2473–2486, doi:10.5194/acp-15-2473-2015, 2015.
- Mailler, S., Menut, L., di Sarra, A. G., Becagli, S., Di Iorio, T., Formenti, P., Bessagnet, B., Briant, Régis, Luis Gómez-Amo, J., Mallet, M., Rea, Géraldine, Siour, G., Sferlazzo, D. M., Traversi, R., Udisti, R., and Turquety, S.: On the radiative impact of aerosols on photolysis rates: comparison of simulations and observations in the Lampedusa island during the ChArMEx/ADRI MED campaign, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 7585–7643, doi:10.5194/acpd-15-7585-2015, 2015.
- Mallet, M., Roger, J. C., Despiiau, S., Dubovik, O., and Putaud, J. P.: Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during ESCOMPTE, *Atmos. Res.*, 69, 73–97, doi:10.1016/j.atmosres.2003.07.001, 2003.
- Mallet, M., Roger, J. C., Despiiau, S., Putaud, J. P., and Dubovik, O.: A study of the mixing state of black carbon in urban zone, *J. Geophys. Res.*, 109, D04202, doi:10.1029/2003JD003940, 2004.
- Mallet, M., Van Dingenen, R., Roger, J. C., Despiiau, S., and Cachier, H.: In situ airborne measurements of aerosol optical properties during photochemical pollution events, *J. Geophys. Res.*, 110, D03205, doi:10.1029/2004JD005139, 2005.
- Mallet, M., Pont, V., Liousse, C., Roger, J. C., and Dubuisson, P.: Simulation of aerosol radiative properties with the ORISAM-RAD model during a pollution event (ESCOMPTE 2001), *Atmos. Environ.*, 40, 7696–7705, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.08.031, 2006.
- Mallet, M., Gomes, L., Solmon, F., Sellegri, K., Pont, V., Roger, J. C., Missamou, T., and Piazzola, J.: Calculations of key optical properties over the main anthropogenic aerosols over the Western French coastal Mediterranean Sea, *Atmos. Res.*, 101, 396–411, doi:10.1016/j.atmosres.2011.03.008, 2011.
- Mallet, M., Dubovik, O., Nabat, P., Dulac, F., Kahn, R., Sciare, J., Paronis, D., and Léon, J. F.: Absorption properties of Mediterranean aerosols obtained from multi-year ground-based remote sensing observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 9195–9210, doi:10.5194/acp-13-9195-2013, 2013.
- Markowicz, K. M., Flatau, P. J., Ramana, M. V., Crutzen, P. J., and Ramanathan, V.: Absorbing Mediterranean aerosols lead to a large reduction in the solar radiation at the surface, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1968, doi:10.1029/2002GL015767, 2002.
- Mariotti, A., Zeng, N., Yoon, J., Artale, V., Navarra, A., Alpert, P., and Li, L. Z. X.: Mediterranean water cycle changes: transition to drier 21st century conditions in observations and CMIP3 simulations, *Environ. Res. Lett.*, 3, 044001, doi:10.1088/1748-9326/3/4/044001, 2008.
- Mariotti, A., Pan, Y., Zeng, N., and Alessandri, A.: Long-term climate change in the Mediterranean region in the midst of decadal variability, *Clim. Dynam.*, 44, 1437–1456, doi:10.1007/s00382-015-2487-3, 2015.
- Marticorena, B. and Bergametti, G.: Modeling the atmospheric dust cycle 1. Design of a soil-derived dust production scheme, *J. Geophys. Res.*, 100, 16415–16430, 1995.
- McConnell, C. L., Formenti, P., Highwood, E. J., and Harrison, M. A. J.: Using aircraft measurements to determine the refractive index of Saharan dust during the DODO Experiments, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3081–3098, doi:10.5194/acp-10-3081-2010, 2010.
- Meloni, D., di Sarra, A., DeLuisi, J., Di Iorio, T., Fiocco, G., Junkermann, W., and Pace, G.: Tropospheric aerosols in the Mediterranean: 2. Radiative effects through model simulations and measurements, *J. Geophys. Res.*, 108, 4317, doi:10.1029/2002JD002807, 2003.
- Meloni, D., di Sarra, A., Di Iorio, T., and Fiocco, G.: Direct radiative forcing of Saharan dust in the Mediterranean from measurements at Lampedusa Island and MISR space-borne observations, *J. Geophys. Res.*, 109, D08206, doi:10.1029/2003JD003960, 2004.
- Meloni, D., di Sarra, A., Pace, G., and Monteleone, F.: Aerosol optical properties at Lampedusa (Central Mediterranean). 2. Determination of single scattering albedo at two wavelengths for different aerosol types, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 715–727, doi:10.5194/acp-6-715-2006, 2006.
- Meloni, D., di Sarra, A., Monteleone, F., Pace, G., Piacentini, S., and Sferlazzo, D. M.: Seasonal transport patterns of intense dust events at the Mediterranean island of Lampedusa, *Atmos. Res.*, 88, 134–148, doi:10.1016/j.atmosres.2007.10.007, 2008.
- Meloni, D., Junkermann, W., di Sarra, A., Cacciani, M., De Silvestri, L., Di Iorio, T., Estellés, V., Gómez-Amo, J. L., Pace, G., and Sferlazzo, D. M.: Altitude-resolved shortwave and longwave radiative effects of desert dust in the Mediterranean during the GAMARF campaign: indications of a net daily cooling in the dust layer, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 120, 3386–3407, doi:10.1002/2014JD022312, 2015.
- Meloni, D., di Sarra, A., Brogniez, G., Denjean, C., De Silvestri, L., Di Iorio, T., Formenti, P., Gomez-Amo, J.-L., Gröbner, J., Kouremeti, N., Mallet, M., and Pace, G.: Simulating vertically resolved SW and LW irradiances and infrared brightness temperatures measured at Lampedusa during the ChArMEx/ADRI MED campaign, in preparation, 2016.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J.-L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M. G.: CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, *Geosci. Model Dev.*, 6, 981–1028, doi:10.5194/gmd-6-981-2013, 2013.
- Menut, L., Mailler, S., Siour, G., Bessagnet, B., Turquety, S., Rea, G., Briant, R., Mallet, M., Sciare, J., Formenti, P., and Meleux, F.: Ozone and aerosol tropospheric concentrations variability analyzed using the ADRI MED measurements and the WRF and CHIMERE models, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 6159–6182, doi:10.5194/acp-15-6159-2015, 2015.

- Millán, M. M., Salvador, R., Mantilla, E., and Kallos, G.: Photooxidant dynamics in the Mediterranean basin in summer: Results from European research projects, *J. Geophys. Res.*, 102, 8811–8823, doi:10.1029/96JD03610, 1997.
- Mlawer, E. J., Taubman, S. J., Brown, P. D., Iacono, M. J., and Clough, S. A.: Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave, *J. Geophys. Res.*, 102, 16663–16682, 1997.
- Moosmüller, H., Chakrabarty, R. K., and Arnott, W. P.: Aerosol light absorption and its measurement: A review, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 100, 844–878, 2009.
- Morcrette, J. J.: Description of the radiation scheme in the ecmwf model, Tech. rep., ECMWF, 1989.
- Mulcahy, J. P., O'Dowd, C. D., Jennings, S. G., and Ceburnis, D.: Significant enhancement of aerosol optical depth in marine air under high wind conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L16810, doi:10.1029/2008GL034303, 2008.
- Nabat, P., Solmon, F., Mallet, M., Kok, J. F., and Somot, S.: Dust emission size distribution impact on aerosol budget and radiative forcing over the Mediterranean region: a regional climate model approach, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10545–10567, doi:10.5194/acp-12-10545-2012, 2012.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Chiapello, I., Morcrette, J. J., Solmon, F., Szopa, S., Dulac, F., Collins, W., Ghan, S., Horowitz, L. W., Lamarque, J. F., Lee, Y. H., Naik, V., Nagashima, T., Shindell, D., and Skeie, R.: A 4-D climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the Mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 1287–1314, doi:10.5194/amt-6-1287-2013, 2013.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Sanchez-Lorenzo, A., and Wild, M.: Contribution of anthropogenic sulfate aerosols to the changing Euro-Mediterranean climate since 1980, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 5605–5611, doi:10.1002/2014GL060798, 2014.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Sevault, F., Chiacchio, M., and Wild, M.: Direct and semi-direct aerosol radiative effect on the Mediterranean climate variability using a coupled regional climate system model, *Clim. Dynam.*, 44, 1127–1155, doi:10.1007/s00382-014-2205-6, 2015a.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech, F., Meloni, D., di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., Sicard, M., Léon, J.-F., and Bouin, M.-N.: Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol–atmosphere–ocean model over the Mediterranean, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 3303–3326, doi:10.5194/acp-15-3303-2015, 2015b.
- Nicolas, J., Mallet, M., Roberts, G., Denjean, C., Formenti, P., Fresney, E., Sellegri, K., Borgniet, G., Bourriane, T., Piguet, B., Torres, B., Dubuisson, P., and Dulac, F.: Aerosol direct radiative forcing at a regional scale over the western Mediterranean in summer within the ADRIMED project: airborne observations compared to GAME simulations, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, in preparation, 2016.
- Noilhan, J. and Mahfouf, J.-F.: The ISBA land surface parameterisation scheme, *Global Planet. Change*, 13, 145–159, doi:10.1016/0921-8181(95)00043-7, 1996.
- Ortiz-Amezcu, P., Guerrero-Rascado, J. L., Granados-Muñoz, M. J., Bravo-Aranda, J. A., and Alados-Arboledas, L.: Characterization of atmospheric aerosols for a long range transport of biomass burning particles from canadian forest fires over the southern iberian peninsula in July 2013, *Optica Pura y Aplicada*, 47, 43–49, 2014.
- Otto, S., Bierwirth, E., Weinzierl, B., Kandler, K., Esselborn, M., Tesche, M., Schladitz, A., Wendisch, M., and Trautmann, T.: Solar radiative effects of a Saharan dust plume observed during SAMUM assuming spheroidal model particles, *Tellus B*, 61, 270–296, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00389.x, 2009.
- Ritter, B. and Geleyn, J.-F.: A comprehensive radiation scheme for numerical weather prediction models with potential applications in climate simulations, *Mon. Weather Rev.*, 120, 303–325, 1992.
- Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A.: Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003, *J. Geophys. Res.*, 110, D21202, doi:10.1029/2005JD005986, 2005.
- Pace, G., di Sarra, A., Meloni, D., Piacentino, S., and Chamard, P.: Aerosol optical properties at Lampedusa (Central Mediterranean). 1. Influence of transport and identification of different aerosol types, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 697–713, doi:10.5194/acp-6-697-2006, 2006.
- Papadimas, C. D., Hatzianastassiou, N., Matsoukas, C., Kanakidou, M., Mihalopoulos, N., and Vardavas, I.: The direct effect of aerosols on solar radiation over the broader Mediterranean basin, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7165–7185, doi:10.5194/acp-12-7165-2012, 2012.
- Papayannis, A., Balis, D., Amiridis, V., Chourdakis, G., Tsaknakis, G., Zerefos, C., Castanho, A. D. A., Nickovic, S., Kazadzis, S., and Grabowski, J.: Measurements of Saharan dust aerosols over the Eastern Mediterranean using elastic backscatter-Raman lidar, spectrophotometric and satellite observations in the frame of the EARLINET project, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2065–2079, doi:10.5194/acp-5-2065-2005, 2005.
- Papayannis, A., Amiridis, V., Mona, L., Tsaknakis, G., Balis, D., Bösenberg, J., Chaikovski, A., De Tomasi, F., Grigorov, I., Mattis, I., Mitev, V., Müller, D., Nickovic, S., Pérez, C., Pietruczuk, A., Pisani, G., Ravetta, F., Rizi, V., Sicard, M., Trickl, T., Wiegner, M., Gerding, M., Mamouri, R. E., D'Amico, G., and Pappalardo, G.: Systematic lidar observations of Saharan dust over Europe in the frame of EARLINET (2000–2002), *J. Geophys. Res.*, 113, D10204, doi:10.1029/2007JD009028, 2008.
- Pappalardo, G., Amodeo, A., Mona, L., Pandolfi, M., Pergola, N., and Cuomo, V.: Raman lidar observations of aerosol emitted during the 2002 Etna eruption, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L05120, doi:10.1029/2003GL019073, 2004.
- Pappalardo, G., Amodeo, A., Apituley, A., Comeron, A., Freudenthaler, V., Linné, H., Ansmann, A., Bösenberg, J., D'Amico, G., Mattis, I., Mona, L., Wandinger, U., Amiridis, V., Alados-Arboledas, L., Nicolae, D., and Wiegner, M.: EARLINET: towards an advanced sustainable European aerosol lidar network, *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 2389–2409, doi:10.5194/amt-7-2389-2014, 2014.
- Péré, J.-C., Mallet, M., Pont, V., and Bessagnet, B.: Impact of aerosol direct radiative forcing on the radiative budget, surface heat fluxes, and atmospheric dynamics during the heat wave of summer 2013 over western Europe: A modelling study, *J. Geophys. Res.*, 116, D23119, doi:10.1029/2011JD016240, 2011.
- Pérez, C., Sicard, M., Jorba, O., Comerón, A., and Baldasano, J. M.: Summertime re-circulations of air pollutants over the north-eastern Iberian coast observed from systematic EARLINET lidar measurements in Barcelona, *Atmos. Environ.*, 38, 3983–4000, 2004.

- Pérez, C., Nickovic, S., Baldasano, J. M., Sicard, M., Rocadenbosch, F., and Cachorro, V. E.: A long Saharan dust event over the western Mediterranean: Lidar, sun photometer observations, and regional dust modeling, *J. Geophys. Res.*, 111, D15214, doi:10.1029/2005JD006579, 2006.
- Petzold, A., Onasch, T., Kebabian, P., and Freedman, A.: Intercomparison of a Cavity Attenuated Phase Shift-based extinction monitor (CAPS PMex) with an integrating nephelometer and a filter-based absorption monitor, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 1141–1151, doi:10.5194/amt-6-1141-2013, 2013.
- Piazzola, J., Tedeschi, G., and Demois, A.: A model for a transport of sea-spray Aerosols in the coastal zone, *Bound. Lay. Meteorol.*, 155, 329–350, 2015.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Lelieveld, J., Mitra, A. P., Althausen, D., Anderson, J., Andreae, M. O., Cantrell, W., Cass, G., Chung, C. E., Clarke, A. D., Coakley, J. A., Collins, W. D., Conant, W. C., Dulac, F., Heintzenberg, J., Heymsfield, A. J., Holben, B., Howell, S., Hudson, J., Jayaraman, A., Kiehl, J. T., Krishnamurti, T. N., Lubin, D., MacFarquhar, G., Novakov, T., Ogren, J. A., Podgorny, I. A., Prather, K., Priestley, K., Prospero, J. M., Quinn, P. K., Rajeev, K., Rasch, P., Rupert, S., Sadourny, R., Satheesh, S. K., Shaw, G. E., Sheridan, P., and Valero, F. P. J.: Indian Ocean experiment: An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great Indo-Asian haze, *J. Geophys. Res.*, 106, 28371–28398, doi:10.1029/2001JD900133, 2001.
- Ravetta, F., Ancellet, G., Colette, A., and Schlager, H.: Long-range transport and tropospheric ozone variability in the western Mediterranean region during the Intercontinental Transport of Ozone and Precursors (ITOP-2004) campaign, *J. Geophys. Res.*, 112, 1–12, doi:10.1029/2006JD007724, 2007.
- Rea, G., Turquety, S., Menut, L., Briant, R., Mailler, S., and Siour, G.: Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 8191–8242, doi:10.5194/acpd-15-8191-2015, 2015.
- Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelles, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Thauray, C., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., Mineau, J.-L., Verdier, N., Mallet, M., Gensdarmes, F., Charpentier, P., Mesmin, S., Duverger, V., Dupont, J.-C., Elias, T., Crenn, V., Sciare, J., Giacomoni, J., Gobbi, M., Hamonou, E., Olafsson, H., Dagsson-Waldhauserova, P., Camy-Peyret, C., Mazel, C., Décamps, T., Piringer, M., Surcin, J., and Daugeron, D.: LOAC: a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles – Part 1: Principle of measurements and instrument evaluation, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 8, 1203–1259, doi:10.5194/amt-d-8-1203-2015, 2015a.
- Renard, J.-B., Dulac, F., Berthet, G., Lurton, T., Vignelle, D., Jégou, F., Tonnelier, T., Thauray, C., Jeannot, M., Couté, B., Akiki, R., Mineau, J.-L., Verdier, N., Mallet, M., Gensdarmes, F., Charpentier, P., Mesmin, S., Duverger, V., Dupont, J.-C., Elias, T., Crenn, V., Sciare, J., Giacomoni, J., Gobbi, M., Hamonou, E., Olafsson, H., Dagsson-Waldhauserova, P., Camy-Peyret, C., Mazel, C., Décamps, T., Piringer, M., Surcin, J., and Daugeron, D.: LOAC: a small aerosol optical counter/sizer for ground-based and balloon measurements of the size distribution and nature of atmospheric particles – Part 2: First results from balloon and unmanned aerial vehicle flights, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, 8, 1261–1299, doi:10.5194/amt-d-8-1261-2015, 2015b.
- Ripoll, A., Minguillón, M. C., Pey, J., Pérez, N., Querol, X., and Alastuey, A.: Joint analysis of continental and regional background environments in the western Mediterranean: PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub> concentrations and composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 1129–1145, doi:10.5194/acp-15-1129-2015, 2015.
- Roger, J. C., Mallet, M., Dubuisson, P., Cachier, H., Vermote, E., Dubovik, O., and Despiu, S.: A synergetic approach for estimating the local direct aerosol forcing: application to an urban zone during the Experience sur Site pour Contraindre les Modèles de Pollution et de Transport d'Emission (ESCOMPTE) experiment, *J. Geophys. Res.*, 111, D13208, doi:10.1029/2005JD006361, 2006.
- Royer, P., Raut, J.-C., Ajello, G., Berthier, S., and Chazette, P.: Synergy between CALIOP and MODIS instruments for aerosol monitoring: application to the Po Valley, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 893–907, doi:10.5194/amt-3-893-2010, 2010.
- Ryder, C. L., Highwood, E. J., Rosenberg, P. D., Trembath, J., Brooke, J. K., Bart, M., Dean, A., Crosier, J., Dorsey, J., Brindley, H., Banks, J., Marsham, J. H., McQuaid, J. B., Sodemann, H., and Washington, R.: Optical properties of Saharan dust aerosol and contribution from the coarse mode as measured during the Fennec 2011 aircraft campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 303–325, doi:10.5194/acp-13-303-2013, 2013.
- Saha, A., Mallet, M., Roger, J. C., Dubuisson, P., Piazzola, J., and Despiu, S.: One year measurements of aerosol optical properties over an urban coastal site: Effect on local direct radiative forcing, *Atmos. Res.*, 90, 195–202, doi:10.1016/j.atmosres.2008.02.003, 2008.
- Sanchez-Gomez, E., Somot, S., and Mariotti, A.: Future changes in the Mediterranean water budget projected by an ensemble of regional climate models, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L21401, doi:10.1029/2009GL040120, 2009.
- Salameh, T., Drobinski, P., Menut, L., Bessagnet, B., Flamant, C., Hodzic, A., and Vautard, R.: Aerosol distribution over the western Mediterranean basin during a Tramontane/Mistral event, *Ann. Geophys.*, 25, 2271–2291, doi:10.5194/angeo-25-2271-2007, 2007.
- Santese, M., Perrone, M. R., Zakey, A. S., De Tomasi, F., and Giorgi, F.: Modeling of Saharan dust outbreaks over the Mediterranean by RegCM3: case studies, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 133–156, doi:10.5194/acp-10-133-2010, 2010.
- Sassen, K.: Lidar backscatter depolarization technique for cloud and aerosol research, in: *Light Scattering by Nonspherical Particles: Theory, Measurements, and Applications*, edited by: Mishchenko, M., Hovenier, J. W., and Travis, L. D., Academic Press, San Diego, 393–417, 1999.
- Schepanski, K., Tegen, I., Laurent, B., Heinold, B., and Macke, A.: A new Saharan dust source activation frequency map derived from MSG-SEVIRI IR-channels, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L18803, doi:10.1029/2007GL030168, 2007.
- Sciare, J., Cachier, H., Oikonomou, K., Ausset, P., Sarda-Estève, R., and Mihalopoulos, N.: Characterization of carbonaceous aerosols during the MINOS campaign in Crete, July–August 2001: a multi-analytical approach, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1743–1757, doi:10.5194/acp-3-1743-2003, 2003.
- Sciare, J., Oikonomou, K., Favez, O., Liakakou, E., Markaki, Z., Cachier, H., and Mihalopoulos, N.: Long-term measurements of carbonaceous aerosols in the Eastern Mediterranean: evidence of

- long-range transport of biomass burning, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 5551–5563, doi:10.5194/acp-8-5551-2008, 2008.
- Schicker, I., Radanovics, S., and Seibert, P.: Origin and transport of Mediterranean moisture and air, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5089–5105, doi:10.5194/acp-10-5089-2010, 2010.
- Schroeder, W., Csizsar, I., Giglio, L., and Schmidt, C. C.: On the use of fire radiative power, area, and temperature estimates to characterize biomass burning via moderate to coarse spatial resolution remote sensing data in the Brazilian Amazon, *J. Geophys. Res.*, 115, D21121, doi:10.1029/2009JD013769, 2010.
- Sellegrì, K., Rose, C., Culot, A., Sauvage, S., Roberts, G., Marchand, N., Pey, J., Sciare, J., Bourriane, T., Mallet, M., and Dulac, F.: Spatial extent, occurrence and precursors of nucleation events over the western Mediterranean basin, in preparation, 2016.
- Sellitto, P., di Sarra, A., Corradini, S., Boichu, M., Herbin, H., Dubuisson, P., Sèze, G., Meloni, D., Monteleone, F., Merucci, L., Rusaleim, J., Salerno, G., Briole, P., and Legras, B.: Synergistic use of Lagrangian dispersion modelling, satellite and surface remote sensing measurements for the investigation of volcanic plumes: the Mount Etna eruption of 25–27 October 2013, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 31335–31383, doi:10.5194/acpd-15-31335-2015, 2015.
- Sicard, M., Rocadenbosch, F., Reba, M. N. M., Comerón, A., Tomás, S., García-Vízcaino, D., Batet, O., Barrios, R., Kumar, D., and Baldasano, J. M.: Seasonal variability of aerosol optical properties observed by means of a Raman lidar at an EARLINET site over Northeastern Spain, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 175–190, doi:10.5194/acp-11-175-2011, 2011.
- Sicard, M., Bertolín, S., Mallet, M., Dubuisson, P., and Comerón, A.: Estimation of mineral dust long-wave radiative forcing: sensitivity study to particle properties and application to real cases in the region of Barcelona, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9213–9231, doi:10.5194/acp-14-9213-2014, 2014a.
- Sicard, M., Bertolín, S., Muñoz, C., Rodríguez, A., Rocadenbosch, F., and Comerón, A.: Separation of aerosol fine- and coarse-mode radiative properties: Effect on the mineral dust longwave, direct radiative forcing, *Geophys. Res. Lett.*, 41, 6978–6985, doi:10.1002/2014GL060946, 2014b.
- Sicard, M., Barragan, R., Muñoz-Porcar, C., Comerón, A., Mallet, M., Dulac, F., Pelon, J., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., Boselli, A., Bravo-Aranda, J. A., D'Amico, G., Granados-Muñoz, M. J., Leto, G., Guerrero-Rascado, J. L., Madonna, F., Mona, L., Pappalardo, G., Perrone, M. R., Burlizzi, P., Rocadenbosch, F., Rodríguez-Gómez, A., Scollo, Spinelli, N., Titos, G., Wang, X., and Zannmar Sanchez, R.: Contribution of EARLINET/ACTRIS to the summer 2013 Special Observing Period of the ChArMEx project, *Óptica Pura y Aplicada*, submitted, 2015a.
- Sicard, M., Barragan, R., Dulac, F., Alados-Arboledas, L., and Mallet, M.: Aerosol optical, microphysical and radiative properties at three regional background insular sites in the western Mediterranean Basin, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, in press, 2015b.
- Solmon, F., Giorgi, F., and Liousse, C.: Aerosol modelling for regional climate studies: application to anthropogenic particles and evaluation over a European/African domain, *Tellus*, 58B, 51–72, doi:10.1111/j.1600-0889.2005.00155.x, 2006.
- Solmon, F., Mallet, M., Elguindi, N., Giorgi, F., Zakey, A., and Konaré, A.: Dust aerosol impact on regional precipitation over western Africa: mechanisms and sensitivity to absorption properties, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L24705, doi:10.1029/2008GL035900, 2008.
- Spada, M., Jorba, O., Pérez García-Pando, C., Janjic, Z., and Baldasano, J. M.: Modeling and evaluation of the global sea-salt aerosol distribution: sensitivity to size-resolved and sea-surface temperature dependent emission schemes, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11735–11755, doi:10.5194/acp-13-11735-2013, 2013.
- Tafuro, A. M., Barnaba, F., De Tomasi, F., Perrone, M. R., and Gobbi, G. P.: Saharan dust particle properties over the central Mediterranean, *Atmos. Res.*, 81, 67–93, 2006.
- Tafuro, A. M., Kinne, S., De Tomasi, F., and Perrone, M. R.: Annual cycle of aerosol direct radiative effect over southeast Italy and sensitivity studies, *J. Geophys. Res.*, 112, D20202, doi:10.1029/2006JD008265, 2007.
- Tanré, D., Kaufman, Y. J., Herman, M., and Mattoo, S.: Remote sensing of aerosol properties over oceans using the MODIS/EOS spectral radiances, *J. Geophys. Res.*, 102, 16971–16988, 1997.
- Tanré, D., Bréon, F. M., Deuzé, J. L., Dubovik, O., Ducos, F., François, P., Goloub, P., Herman, M., Lifermann, A., and Waquet, F.: Remote sensing of aerosols by using polarized, directional and spectral measurements within the A-Train: the PARASOL mission, *Atmos. Meas. Tech.*, 4, 1383–1395, doi:10.5194/amt-4-1383-2011, 2011.
- Tegen, I., Harrison, S. P., Kohfeld, K. E., and Prentice, I. C.: Impact of vegetation and preferential source areas on global dust aerosol: Results from a model study, *J. Geophys. Res.*, 107, 4576, doi:10.1029/2001JD000963, 2002.
- Thieuleux, F., Moulin, C., Bréon, F. M., Maignan, F., Poitou, J., and Tanré, D.: Remote sensing of aerosols over the oceans using MSG/SEVIRI imagery, *Ann. Geophys.*, 23, 3561–3568, doi:10.5194/angeo-23-3561-2005, 2005.
- Torres, B., Dubovik, O., Fuertes, D., Lapyonok, T., Toledano, C., Schuster, G. L., Goloub, P., Blarel, L., Barreto, A., Mallet, M., and Tanré, D.: Advanced characterization of aerosol properties from measurements of spectral optical thickness of the atmosphere, in preparation, 2016.
- Turquety, S., Menut, L., Bessagnet, B., Anav, A., Viovy, N., Maignan, F., and Wooster, M.: APIFLAME v1.0: high-resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region, *Geosci. Model Dev.*, 7, 587–612, doi:10.5194/gmd-7-587-2014, 2014.
- Vaishya, A., Jennings, S. G., and O'Dowd, C.: Wind-driven influences on aerosol light scattering in north-east Atlantic air, *Geophys. Res. Lett.*, 39, L05805, doi:10.1029/2011GL050556, 2012.
- Valenzuela, A., Olmo, F. J., Lyamani, H., Antón, M., Quirantes, A., and Alados-Arboledas, L.: Aerosol radiative forcing during African desert dust events (2005–2010) over Southeastern Spain, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 10331–10351, doi:10.5194/acp-12-10331-2012, 2012.
- Vialard, J., Duvel, J.-P., McPhaden, M., Bouruet-Aubertot, P., Ward, B., Key, E., Bourras, D., Weller, R., Minnett, P., Weill, A., Casou, C., Eymard, L., Fristedt, T., Basdevant, C., Dandoneau, Y., Duteil, O., Izumo, T., de Boyer Montegut, C., Masson, S., Marsac, F., Menkes, C., and Kennan, S.: Cirene: Air-sea interactions in the Seychelles-Chagos thermocline ridge region, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 90, 45–61, doi:10.1175/2008BAMS2499.1, 2009.
- Villani, P., Picard, D., Marchand, N., and Laj, P.: Design and validation of a 6-volatility tandem differential mobil-

- ity analyzer (VTDMA), *Aerosol Sci. Technol.*, 41, 898–906, doi:10.1080/02786820701534593, 2007.
- Wang, Y., Sartelet, K. N., Bocquet, M., Chazette, P., Sicard, M., D'Amico, G., Léon, J. F., Alados-Arboledas, L., Amodeo, A., Augustin, P., Bach, J., Belegante, L., Biniotoglou, I., Bush, X., Comerón, A., Delbarre, H., García-Vázquez, D., Guerrero-Rascado, J. L., Hervo, M., Iarlori, M., Kokkalis, P., Lange, D., Molero, F., Montoux, N., Muñoz, A., Muñoz, C., Nicolae, D., Papayannis, A., Pappalardo, G., Preissler, J., Rizi, V., Rocadenbosch, F., Sellegri, K., Wagner, F., and Dulac, F.: Assimilation of lidar signals: application to aerosol forecasting in the western Mediterranean basin, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 12031–12053, doi:10.5194/acp-14-12031-2014, 2014.
- Waquet, F., Cornet, C., Deuzé, J.-L., Dubovik, O., Ducos, F., Goloub, P., Herman, M., Lapyonok, T., Labonnote, L. C., Riedi, J., Tanré, D., Thieuleux, F., and Vanbaue, C.: Retrieval of aerosol microphysical and optical properties above liquid clouds from POLDER/PARASOL polarization measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 991–1016, doi:10.5194/amt-6-991-2013, 2013.
- Wolke, R., Schroeder, W., Schroedner, R., and Renner, E.: Influence of grid resolution and meteorological forcing on simulated European air quality: A sensitivity study with the modeling system COSMO-MUSCAT, *Atmos. Environ.*, 53, 110–130, 2012.
- Yue, X., Liao, H., Wang, H. J., Li, S. L., and Tang, J. P.: Role of sea surface temperature responses in simulation of the climatic effect of mineral dust aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6049–6062, doi:10.5194/acp-11-6049-2011, 2011.
- Zakey, A. S., Solmon, F., and Giorgi, F.: Implementation and testing of a desert dust module in a regional climate model, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 4687–4704, doi:10.5194/acp-6-4687-2006, 2006.
- Zakey, A. S., Giorgi, F., and Bi, X.: Modeling of sea salt in a regional climate model: Fluxes and radiative forcing, *J. Geophys. Res.*, 113, D14221, doi:10.1029/2007JD009209, 2008.
- Zanis, P., Ntogras, C., Zakey, A., Pytharoulis, I., and Karacostas, T.: Regional climate feedback of anthropogenic aerosols over Europe using RegCM3, *Clim. Res.*, 52, 267–278, doi:10.3354/cr01070, 2012.
- Zhu, A., Ramanathan, V., Li, F., and Kim, D.: Dust plumes over the Pacific, Indian, and Atlantic oceans: Climatology and radiative impact, *J. Geophys. Res.*, 112, D16208, doi:10.1029/2007JD008427, 2007.

.

# Bibliographie

- Alados-Arboledas, L., H. Lyamani, et F. Olmo, 2003 : Aerosol size properties at armilla, granada (spain). *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **129 (590)**, 1395–1413.
- Ancellet, G., et al., 2016 : Long-range transport and mixing of aerosol sources during the 2013 north american biomass burning episode : analysis of multiple lidar observations in the western mediterranean basin. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **16 (7)**, 4725–4742.
- Andreae, M., et al., 1998 : Airborne studies of emissions from savanna fires in southern africa. 2. aerosol chemical composition.
- Andreae, M. O., 1995 : Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels. *World survey of climatology*, **16**, 347–398.
- Andreae, M. O. et P. Merlet, 2001 : Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global biogeochemical cycles*, **15 (4)**, 955–966.
- Andreae, M. O. et al., 2007 : Aerosols before pollution. *Science(Washington)*, **315 (5808)**, 50–51.
- Anguelova, M. D. et F. Webster, 2006 : Whitecap coverage from satellite measurements : A first step toward modeling the variability of oceanic whitecaps. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, **111 (C3)**.
- Aouizerats, B., P. Tulet, et L. Gomes, 2012 : 3d direct impacts of urban aerosols on dynamics during the capitoul field experiment. *Geophysical Research Letters*, **39 (23)**.
- Asmi, A., et al., 2013 : Aerosol decadal trends–part 2 : In-situ aerosol particle number concentrations at gaw and actris stations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **13 (2)**, 895–916.
- Bardouki, H., et al., 2003 : Chemical composition of size-resolved atmospheric aerosols in the eastern Mediterranean during summer and winter. *Atmos. Environ.*, **37**, 195–208, doi : 10.1016/S1352-2310(02)00859-2.

- Bates, T. S., B. J. Huebert, J. L. Gras, F. B. Griffiths, et P. A. Durkee, 1998 : International global atmospheric chemistry (igac) project's first aerosol characterization experiment (ace 1) : Overview. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **103 (D13)**, 16 297–16 318.
- Bègue, N., P. Tulet, J.-P. Chaboureau, G. Roberts, L. Gomes, et M. Mallet, 2012 : Long-range transport of saharan dust over northwestern europe during eucaari 2008 campaign : Evolution of dust optical properties by scavenging. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **117 (D17)**.
- Benedetti, A., J. Kaiser, et J. Morcrette, 2011 : Global climate. *Aerosols [in "State of the Climate in 2010"]*, *Bulletin of the American Meteorological Society*, **92 (6)**, S65–S67.
- Biagio, C. D., et al., 2015 : Continental pollution in the western mediterranean basin : vertical profiles of aerosol and trace gases measured over the sea during traqa 2012 and safmed 2013. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15 (16)**, 9611–9630.
- Blanchard, D. et A. Woodcock, 1957 : Bubble formation and modification in the sea and its meteorological significance. *Tellus*, **9 (2)**, 145–158.
- Blanchard, D. C., 1963 : The electrification of the atmosphere by particles from bubbles in the sea. *Progress in oceanography*, **1**, 73IN7113–112 202.
- Blanchard, D. C., 1964 : Sea-to-air transport of surface active material. *Science*, **146 (3642)**, 396–397.
- Blanchard, D. C., 1983 : The production, distribution, and bacterial enrichment of the sea-salt aerosol. *Air-sea exchange of gases and particles*, Springer, 407–454.
- Brewer, P. G., 1975 : Minor elements in sea water. *Chemical oceanography*, **1**, 415–496.
- Cachier, H., et al., 2005 : Aerosol studies during the escompte experiment : an overview. *Atmospheric Research*, **74 (1)**, 547–563.
- Callaghan, A., G. de Leeuw, L. Cohen, et C. D. O'Dowd, 2008 : Relationship of oceanic whitecap coverage to wind speed and wind history. *Geophysical Research Letters*, **35 (23)**.
- Callaghan, A. H., G. B. Deane, M. D. Stokes, et B. Ward, 2012 : Observed variation in the decay time of oceanic whitecap foam. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, **117 (C9)**.
- Chazette, P. et C. Liousse, 2001 : A case study of optical and chemical ground apportionment for urban aerosols in thessaloniki. *Atmospheric Environment*, **35 (14)**, 2497–2506.
- Ciardini, V., et al., 2012 : Seasonal variability of tropospheric aerosols in rome. *Atmospheric Research*, **118**, 205–214.

- Claeys, M., G. Roberts, M. Mallet, J. Arndt, K. Sellegri, J. Sciare, J. Wenger, et B. Sauvage, 2016 : Optical, physical and chemical properties of aerosols transported to a coastal site in the western mediterranean : Focus on primary marine aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **2016**, 1–42, doi :10.5194/acp-2016-602, URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2016-602/>.
- Clarke, A., V. Kapustin, S. Howell, K. Moore, B. Lienert, S. Masonis, T. Anderson, et D. Covert, 2003 : Sea-salt size distributions from breaking waves : implications for marine aerosol production and optical extinction measurements during seas\*. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, **20** (10), 1362–1374.
- Clarke, A., et al., 2004 : Size distributions and mixtures of dust and black carbon aerosol in asian outflow : Physiochemistry and optical properties. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **109** (D15).
- Clarke, A. D., S. R. Owens, et J. Zhou, 2006 : An ultrafine sea-salt flux from breaking waves : Implications for cloud condensation nuclei in the remote marine atmosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **111** (D6).
- Clegg, S. L. et P. Brimblecombe, 1985 : Potential degassing of hydrogen chloride from acidified sodium chloride droplets. *Atmos. Environ. - Part A Gen. Top.*, **19** (3), 465–470, doi : 10.1016/0004-6981(85)90167-2.
- Collaud Coen, M., E. Weingartner, D. Schaub, C. Hueglin, C. Corrigan, S. Henning, M. Schwikowski, et U. Baltensperger, 2004 : Saharan dust events at the jungfrauoch : detection by wavelength dependence of the single scattering albedo and first climatology analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **4** (11/12), 2465–2480.
- Cros, B., et al., 2004 : The escompte program : an overview. *Atmospheric Research*, **69** (3), 241–279.
- Cuevas, E., S. Basart, J. M. Baldasano Recio, et A. Berjon, 2015 : The macc-ii 2007-2008 reanalysis : atmospheric dust evaluation and characterization over northern africa and the middle east. *Atmospheric chemistry and physics*, **15** (8), 3991–4024.
- D O'Dowd, C. et G. De Leeuw, 2007 : Marine aerosol production : a review of the current knowledge. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, **365** (1856), 1753–1774.
- Denjean, C., et al., 2016 : Size distribution and optical properties of mineral dust aerosols transported in the western mediterranean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **16** (2), 1081–1104.

- Di Biagio, C., A. di Sarra, et D. Meloni, 2010 : Large atmospheric shortwave radiative forcing by mediterranean aerosols derived from simultaneous ground-based and spaceborne observations and dependence on the aerosol type and single scattering albedo. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **115** (D10).
- Di Sarra, A., C. Di Biagio, D. Meloni, F. Monteleone, G. Pace, S. Pugnaghi, et D. Sferlazzo, 2011 : Shortwave and longwave radiative effects of the intense saharan dust event of 25–26 march 2010 at lampedusa (mediterranean sea). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **116** (D23).
- Di Sarra, A., et al., 2002 : Effects of desert dust and ozone on the ultraviolet irradiance at the mediterranean island of lampedusa during paup ii. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **107** (D18).
- Drennan, W. M., P. K. Taylor, et M. J. Yelland, 2005 : Parameterizing the sea surface roughness. *Journal of physical oceanography*, **35** (5), 835–848.
- Dubovik, O., B. Holben, T. F. Eck, A. Smirnov, Y. J. Kaufman, M. D. King, D. Tanré, et I. Slutsker, 2002 : Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *Journal of the atmospheric sciences*, **59** (3), 590–608.
- Dubovik, O. et M. D. King, 2000 : A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from Sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, **105** (D16), 20 673, doi :10.1029/2000JD900282.
- Eleftheriadis, K., I. Colbeck, C. Housiadas, M. Lazaridis, N. Mihalopoulos, C. Mitsakou, J. Smolik, et V. Zdimal, 2006 : Size distribution, composition and origin of the submicron aerosol in the marine boundary layer during the eastern mediterranean “sub-aero” experiment. *Atmospheric Environment*, **40** (32), 6245–6260.
- Fan, T. et O. Toon, 2011 : Modeling sea-salt aerosol in a coupled climate and sectional microphysical model : mass, optical depth and number concentration. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11** (9), 4587–4610.
- Fitzgerald, J. W., 1989 : Model of the aerosol extinction profile in a well-mixed marine boundary layer. *Applied optics*, **28** (16), 3534–3538.
- Fomba, K. W., K. Müller, D. van Pinxteren, L. Poulain, M. van Pinxteren, et H. Herrmann, 2014 : Long-term chemical characterization of tropical and marine aerosols at the CVAO : field studies (2007 to 2011). *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **14**, 3917–3971, doi :10.5194/acpd-14-3917-2014.

- Formenti, P., et al., 2002 : Staaarte-med 1998 summer airborne measurements over the aegean sea 2. aerosol scattering and absorption, and radiative calculations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **107** (D21).
- Fotiadi, A., et al., 2006 : Aerosol physical and optical properties in the Eastern Mediterranean Basin, Crete, from Aerosol Robotic Network Data. doi :10.5194/acpd-6-7791-2006.
- Fouquart, Y. et B. Bonnel, 1980 : Computations of solar heating of the earth's atmosphere-a new parameterization. *Beitraege zur Physik der Atmosphaere*, **53**, 35–62.
- Freney, E., et al., 2011 : Seasonal variations in aerosol particle composition at the puy-de-dôme research station in france. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11** (24), 13 047–13 059.
- Friedlander, S. K., 1977 : Smoke, dust and haze : Fundamentals of aerosol behavior. *New York, Wiley-Interscience, 1977. 333 p., 1.*
- Gantt, B. et N. Meskhidze, 2013 : The physical and chemical characteristics of marine primary organic aerosol : a review. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **13** (8), 3979–3996.
- García, O., et al., 2008 : Validation of aeronet estimates of atmospheric solar fluxes and aerosol radiative forcing by ground-based broadband measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **113** (D21).
- Garratt, J., 1977 : Review of drag coefficients over oceans and continents. *Monthly weather review*, **105** (7), 915–929.
- Gerasopoulos, E., et al., 2003 : Climatological aspects of aerosol optical properties in northern greece. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **3** (6), 2025–2041.
- Gerber, H. E., 1985 : Relative-humidity parameterization of the navy aerosol model (nam). Tech. rep., DTIC Document.
- Goddijn-Murphy, L., D. K. Woolf, et A. H. Callaghan, 2011 : Parameterizations and algorithms for oceanic whitecap coverage. *Journal of Physical Oceanography*, **41** (4), 742–756.
- Gong, S., 2003 : A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub-and super-micron particles. *Global biogeochemical cycles*, **17** (4).
- Gong, S., L. Barrie, et J.-P. Blanchet, 1997 : Modeling sea-salt aerosols in the atmosphere : 1. model development. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **102** (D3), 3805–3818.

- Grini, A., G. Myhre, J. K. Sundet, et I. S. Isaksen, 2002 : Modeling the annual cycle of sea salt in the global 3d model oslo ctm2 : Concentrations, fluxes, and radiative impact. *Journal of Climate*, **15** (13), 1717–1730.
- Grini, A., P. Tulet, et L. Gomes, 2006 : Dusty weather forecasts using the mesonh mesoscale atmospheric model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **111** (D19).
- Grythe, H., J. Ström, R. Krejci, P. Quinn, et A. Stohl, 2014 : A review of sea-spray aerosol source functions using a large global set of sea salt aerosol concentration measurements. *Atmos. Chem. Phys*, **14** (3), 1277–1297.
- Guelle, W., M. Schulz, Y. Balkanski, et F. Dentener, 2001 : Influence of the source formulation on modeling the atmospheric global distribution of sea salt aerosol. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **106** (D21), 27 509–27 524.
- Guerrero-Rascado, J. L., F. J. Olmo Reyes, I. Avilés-Rodríguez, E. Navas-Guzmán, D. Pérez-Ramírez, H. Lyamani, et L. Alados-Arboledas, 2009 : Extreme saharan dust event over the southern iberian peninsula in september 2007 : active and passive remote sensing from surface and satellite.
- Hamonou, E., P. Chazette, D. Balis, F. Dulac, X. Schneider, E. Galani, G. Ancellet, et A. Papayannis, 1999 : Characterization of the vertical structure of saharan dust export. *Journal of Geophysical Research*, **104** (D18), 22–257.
- Haywood, J. et O. Boucher, 2000 : Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols : A review. *Reviews of geophysics*, **38** (4), 513–543.
- Haywood, J., V. Ramaswamy, et B. J. Soden, 1999 : Tropospheric aerosol climate forcing in clear-sky satellite observations over the oceans. *Science*, **283** (5406), 1299–1303.
- Hervo, M., 2013 : Etude des propriétés optiques et radiatives des aérosols en atmosphère réelle : Impact de l’hygroscopicité. Ph.D. thesis, Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand II.
- Hoffman, E. J. et R. A. Duce, 1976 : Factors influencing the organic carbon content of marine aerosols : A laboratory study. *J. geophys. Res*, **81** (21), 3667–3670.
- Holmgren, H., K. Sellegri, M. Hervo, C. Rose, E. Freney, P. Villani, et P. Laj, 2014 : Hygroscopic properties and mixing state of aerosol measured at the high-altitude site puy de dôme (1465 m asl), france. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **14** (18), 9537–9554.
- Hoppel, W. et G. Frick, 1990 : Submicron aerosol size distributions measured over the tropical and south pacific. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, **24** (3), 645–659.

- Horvath, H., et al., 2002 : Optical characteristics of the aerosol in Spain and Austria and its effect on radiative forcing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **107** (D19).
- Jaeglé, L., P. Quinn, T. Bates, B. Alexander, et J.-T. Lin, 2011 : Global distribution of sea salt aerosols : new constraints from in situ and remote sensing observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **11** (7), 3137–3157.
- Johansen, A. M., R. L. Siefert, et M. R. Hoffmann, 1999 : Chemical characterization of ambient aerosol collected during the southwest monsoon and intermonsoon seasons over the Arabian Sea : Anions and cations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **104** (D21), 26 325–26 347.
- Kerminen, V.-M., K. Teinilä, R. Hillamo, et T. Pakkanen, 1998 : Substitution of chloride in sea-salt particles by inorganic and organic anions. *Journal of aerosol science*, **29** (8), 929–942.
- Köhler, H., 1936 : The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. *Transactions of the Faraday Society*, **32**, 1152–1161.
- Koulouri, E., et al., 2008 : Chemical composition and sources of fine and coarse aerosol particles in the Eastern Mediterranean. *Atmos. Environ.*, **42**, 6542–6550, doi :10.1016/j.atmosenv.2008.04.010.
- Kreidenweis, S., L. McInnes, et F. Brechtel, 1998 : Observations of aerosol volatility and elemental composition at Macquarie Island during the first aerosol characterization experiment (ACE 1). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **103** (D13), 16 511–16 524.
- Kubilay, N., T. Cokacar, et T. Oguz, 2003 : Optical properties of mineral dust outbreaks over the northeastern Mediterranean. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **108** (D21).
- Kulmala, M., et al., 2009 : Introduction : European integrated project on aerosol cloud climate and air quality interactions (EUCAARI)—integrating aerosol research from nano to global scales. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **9** (8), 2825–2841.
- Kumar, A., A. Sudheer, et M. Sarin, 2008 : Chemical characteristics of aerosols in the Bay of Bengal and Arabian Sea during spring inter-monsoon : a comparative study. *Journal of earth system science*, **117** (1), 325–332.
- Kushta, J., G. Kallos, M. Astitha, S. Solomos, C. Spyrou, C. Mitsakou, et J. Lelieveld, 2014 : Impact of natural aerosols on atmospheric radiation and consequent feedbacks with the meteorological and photochemical state of the atmosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **119** (3), 1463–1491.

- Lafore, J.-P.-a., et al., 1997 : The meso-nh atmospheric simulation system. part i : Adiabatic formulation and control simulations. **16 (1)**, 90–109.
- Leeuw, G., F. P. Neele, M. Hill, M. H. Smith, et E. Vignati, 2000 : Production of sea spray aerosol in the surf zone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **105 (D24)**, 29 397–29 409.
- Leeuw, G. D., E. L. Andreas, M. D. Anguelova, C. W. Fairall, R. Ernie, C. O. Dowd, M. Schulz, et S. E. Schwartz, 2011 : Production Flux of Sea-Spray Aerosol. **80 (2010)**, 1–39, doi :10.1029/2010RG000349.1.INTRODUCTION.
- Lelieveld, J., et al., 2002 : Global air pollution crossroads over the mediterranean. *Science*, **298 (5594)**, 794–799.
- Lewis, E. R. et S. E. Schwartz, 2004 : *Sea salt aerosol production : mechanisms, methods, measurements, and models-A critical review*. American geophysical union.
- Li, X., H. Maring, D. Savoie, K. Voss, J. Prospero, et al., 1996 : Dominance of mineral dust in aerosol light-scattering in the north atlantic trade winds. *Nature*, **380 (6573)**, 416–419.
- Lundgren, K., B. Vogel, H. Vogel, et C. Kottmeier, 2013 : Direct radiative effects of sea salt for the Mediterranean region under conditions of low to moderate wind speeds. *J. Geophys. Res. Atmos.*, **118 (November 2012)**, 1906–1923, doi :10.1029/2012JD018629.
- Lyamani, H., A. Valenzuela, D. Pérez-Ramírez, C. Toledano, M. J. Granados-Muñoz, F. Olmo, et L. Alados-Arboledas, 2015 : Aerosol properties over the western mediterranean basin : temporal and spatial variability. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15 (5)**, 2473–2486.
- Ma, X., K. von Salzen, et J. Li, 2008 : Modelling sea salt aerosol and its direct and indirect effects on climate. *Atmos. Chem. Phys.*, **8 (5)**, 1311–1327, doi :10.5194/acp-8-1311-2008.
- Mallet, M., L. Gomes, F. Solmon, K. Sellegri, V. Pont, J. Roger, T. Missamou, et J. Piazzola, 2011 : Calculation of key optical properties of the main anthropogenic aerosols over the western french coastal mediterranean sea. *Atmospheric Research*, **101 (1)**, 396–411.
- Mallet, M., V. Pont, C. Lioussé, J.-C. Roger, et P. Dubuisson, 2006 : Simulation of aerosol radiative properties with the orisam-rad model during a pollution event (escompte 2001). *Atmospheric environment*, **40 (40)**, 7696–7705.
- Mallet, M., J. Roger, S. Despiiau, O. Dubovik, et J. Putaud, 2003 : Microphysical and optical properties of aerosol particles in urban zone during escompte. *Atmospheric Research*, **69 (1)**, 73–97.

- Mallet, M., J. Roger, S. Despiaud, J. Putaud, et O. Dubovik, 2004 : A study of the mixing state of black carbon in urban zone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **109** (D4).
- Mallet, M., et al., 2016 : Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEx/ADRI-MED) summer 2013 campaign. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **15** (14), 19615–19727, doi :10.5194/acpd-15-19615-2015, URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/15/19615/2015/>.
- Marenco, F., et al., 2006 : Characterization of atmospheric aerosols at monte cimone, italy, during summer 2004 : source apportionment and transport mechanisms. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **111** (D24).
- Maring, H., D. Savioe, M. Izaguirre, L. Custals, et J. Reid, 2003 : Vertical distributions of dust and sea-salt aerosols over puerto rico during pride measured from a light aircraft. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **108** (D19).
- Mårtensson, E., E. Nilsson, G. de Leeuw, L. Cohen, et H.-C. Hansson, 2003 : Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **108** (D9).
- Masson, V., 2000 : A physically-based scheme for the urban energy budget in atmospheric models. *Boundary-layer meteorology*, **94** (3), 357–397.
- Masson, V., et al., 2008 : The canopy and aerosol particles interactions in toulouse urban layer (capitoul) experiment. *Meteorology and Atmospheric Physics*, **102** (3-4), 135–157.
- Masson, V., et al., 2013 : The surfexv7. 2 land and ocean surface platform for coupled or offline simulation of earth surface variables and fluxes. *Geoscientific Model Development*, **6**, 929–960.
- McConnell, C., et al., 2008 : Seasonal variations of the physical and optical characteristics of saharan dust : Results from the dust outflow and deposition to the ocean (dodo) experiment. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **113** (D14).
- Meehl, G. A. et C. Tebaldi, 2004 : More intense, more frequent, and longer lasting heat waves in the 21st century. *Science*, **305** (5686), 994–997.
- Meloni, D., A. Di Sarra, J. DeLuisi, T. Di Iorio, G. Fiocco, W. Junkermann, et G. Pace, 2003 : Tropospheric aerosols in the mediterranean : 2. radiative effects through model simulations and measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **108** (D10).

- Meloni, D., A. Di Sarra, T. Di Iorio, et G. Fiocco, 2004 : Direct radiative forcing of saharan dust in the mediterranean from measurements at lampedusa island and misr space-borne observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **109** (D8).
- Menut, L., et al., 2015 : Ozone and aerosol tropospheric concentrations variability analyzed using the adrimed measurements and the wrf and chimere models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15** (11), 6159–6182.
- Mihalopoulos, N., E. Stephanou, M. Kanakidou, S. Pilitsidis, et P. Bousquet, 1997 : Tropospheric aerosol ionic composition in the Eastern Mediterranean region. 314–326 pp., doi :10.1034/j.1600-0889.49.issue3.7.x.
- Mishra, A. K., K. Klingmueller, E. Fredj, J. Lelieveld, Y. Rudich, et I. Koren, 2014 : Radiative signature of absorbing aerosol over the eastern Mediterranean basin. *Atmos. Chem. Phys.*, **14**, 7213–7231, doi :10.5194/acp-14-7213-2014, URL [www.atmos-chem-phys.net/14/7213/2014/](http://www.atmos-chem-phys.net/14/7213/2014/).
- Mlawer, E. J., S. J. Taubman, P. D. Brown, M. J. Iacono, et S. A. Clough, 1997 : Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres : Rrtm, a validated correlated-k model for the longwave. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **102** (D14), 16 663–16 682.
- Monahan, E. C. et I. Muircheartaigh, 1980 : Optimal power-law description of oceanic whitemcap coverage dependence on wind speed. *Journal of Physical Oceanography*, **10** (12), 2094–2099.
- Monahan, E. C., D. E. Spiel, et K. L. Davidson, 1986 : A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption. *Oceanic whitecaps and their role in air-sea exchange processes*, Springer, 167–174.
- Morcrette, J.-J., L. Smith, et Y. Fouquart, 1986 : Pressure and temperature dependence of the absorption in longwave radiation parametrizations. *Beiträge zur Physik der Atmosphäre*, **59** (4), 455–469.
- Morcrette, J.-J., et al., 2009 : Aerosol analysis and forecast in the european centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system : Forward modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **114** (D6).
- Mulcahy, J. P., C. D. O'Dowd, S. G. Jennings, et D. Ceburnis, 2008 : Significant enhancement of aerosol optical depth in marine air under high wind conditions. *Geophys. Res. Lett.*, **35** (16), 1–4, doi :10.1029/2008GL034303.
- Murphy, D., et al., 1998 : Influence of sea-salt on aerosol radiative properties in the southern ocean marine boundary layer. *Nature*, **392** (6671), 62–65.

- Nabat, P., S. Somot, M. Mallet, F. Sevault, M. Chiacchio, et M. Wild, 2015a : Direct and semi-direct aerosol radiative effect on the mediterranean climate variability using a coupled regional climate system model. *Climate dynamics*, **44** (3-4), 1127–1155.
- Nabat, P., et al., 2013 : A 4-d climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products. *Atmospheric Measurement Techniques*, **6** (5), 1287–1314.
- Nabat, P., et al., 2015b : Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol–atmosphere–ocean model over the mediterranean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15** (6), 3303–3326.
- Nicolas, J., 2013 : Caractérisation physico-chimique de l’aérosol troposphérique en méditerranée : sources et devenir. Ph.D. thesis, Ph. D. thesis, Univ. Versailles Saint-Quentin, 2013. 121.
- Noilhan, J. et S. Planton, 1989 : A simple parameterization of land surface processes for meteorological models. *Monthly Weather Review*, **117** (3), 536–549.
- Norris, S., I. Brooks, G. d. Leeuw, M. Smith, M. Moerman, et J. Lingard, 2008 : Eddy covariance measurements of sea spray particles over the atlantic ocean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8** (3), 555–563.
- Norris, S. J., I. M. Brooks, M. K. Hill, B. J. Brooks, M. H. Smith, et D. A. Sproson, 2012 : Eddy covariance measurements of the sea spray aerosol flux over the open ocean. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **117** (D7).
- O’Connor, T., S. Jennings, et C. D. O’Dowd, 2008 : Highlights of fifty years of atmospheric aerosol research at mace head. *Atmospheric Research*, **90** (2), 338–355.
- O’Dowd, C. D. et M. H. Smith, 1993 : Physicochemical properties of aerosols over the northeast atlantic : Evidence for wind-speed-related submicron sea-salt aerosol production. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **98** (D1), 1137–1149.
- O’Dowd, C. D., M. H. Smith, I. E. Consterdine, et J. A. Lowe, 1997 : Marine aerosol, sea-salt, and the marine sulphur cycle : A short review. *Atmospheric Environment*, **31** (1), 73–80.
- O’Dowd, C. D., et al., 2004 : Biogenically driven organic contribution to marine aerosol. *Nature*, **431** (7009), 676–680.
- Otto, S., et al., 2009 : Solar radiative effects of a saharan dust plume observed during samum assuming spheroidal model particles. *Tellus B*, **61** (1), 270–296.

- Ovadnevaite, J., D. Ceburnis, M. Canagaratna, H. Berresheim, J. Bialek, G. Martucci, D. R. Worsnop, et C. O'Dowd, 2012 : On the effect of wind speed on submicron sea salt mass concentrations and source fluxes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **117** (D16).
- Ovadnevaite, J., A. Manders, G. De Leeuw, D. Ceburnis, C. Monahan, A. Partanen, H. Korhonen, et C. O'Dowd, 2014 : A sea spray aerosol flux parameterization encapsulating wave state. *Atmos. Chem. Phys.*, **14** (4), 1837–1852.
- Ovadnevaite, J., C. O'Dowd, M. Dall'Osto, D. Ceburnis, D. R. Worsnop, et H. Berresheim, 2011 : Detecting high contributions of primary organic matter to marine aerosol : A case study. *Geophysical Research Letters*, **38** (2).
- Pace, G., A. di Sarra, D. Meloni, S. Piacentino, et P. Chamard, 2006 : Aerosol optical properties at Lampedusa (Central Mediterranean) – 1. Influence of transport and identification of different aerosol types. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/6/697/2006/acp-6-697-2006.pdf>, 4929–4969 pp., doi :10.5194/acpd-5-4929-2005.
- Pace, G., D. Meloni, et A. Di Sarra, 2005 : Forest fire aerosol over the mediterranean basin during summer 2003. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **110** (D21).
- Pandis, S. N., R. A. Harley, G. R. Cass, et J. H. Seinfeld, 1992 : Secondary organic aerosol formation and transport. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, **26** (13), 2269–2282.
- Partanen, A.-I., et al., 2014 : Global modelling of direct and indirect effects of sea spray aerosol using a source function encapsulating wave state. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **14** (21), 11 731–11 752.
- Penner, J. E., et al., 2001 : Aerosols, their direct and indirect effects. *Climate Change 2001 : The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Cambridge University Press, 289–348.
- Petelski, T. et J. Piskozub, 2006 : Vertical coarse aerosol fluxes in the atmospheric surface layer over the north polar waters of the atlantic. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, **111** (C6).
- Pey, J., X. Querol, et A. Alastuey, 2009 : Variations of levels and composition of PM10 and PM2.5 at an insular site in the Western Mediterranean. *Atmos. Res.*, **94** (2), 285–299, doi : 10.1016/j.atmosres.2009.06.006, URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosres.2009.06.006>.
- Piazzola, J. et S. Despiaud, 1997 : Vertical distribution of aerosol particles near the air-sea interface in coastal zone. *Journal of aerosol science*, **28** (8), 1579–1599.

- Piazzola, J., P. Forget, et S. Despiau, 2002 : A sea spray generation function for fetch-limited conditions. *Annales Geophysicae*, Vol. 20, 121–131.
- Piazzola, J., K. Sellegri, L. Bourcier, M. Mallet, G. Tedeschi, et T. Missamou, 2012 : Physicochemical characteristics of aerosols measured in the spring time in the mediterranean coastal zone. *Atmospheric environment*, **54**, 545–556.
- Pio, C., et al., 2008 : Chemical composition of atmospheric aerosols during the 2003 summer intense forest fire period. *Atmospheric Environment*, **42 (32)**, 7530–7543.
- Pio, C. A., L. M. Castro, M. A. Cerqueira, I. M. Santos, F. Belchior, et M. L. Salgueiro, 1996 : Source assessment of particulate air pollutants measured at the southwest european coast. *Atmospheric Environment*, **30 (19)**, 3309–3320.
- Podgorny, I., W. Conant, V. Ramanathan, et S. Satheesh, 2000 : Aerosol modulation of atmospheric and surface solar heating over the tropical indian ocean. *Tellus B*, **52 (3)**, 947–958.
- Querol, X., et al., 2008 : Spatial and temporal variations in airborne particulate matter (pm 10 and pm 2.5) across spain 1999–2005. *Atmospheric Environment*, **42 (17)**, 3964–3979.
- Quinn, P., V. Kapustin, T. Bates, et D. Covert, 1996 : Chemical and optical properties of marine boundary layer aerosol particles of the mid-pacific in relation to sources and meteorological transport. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **101 (D3)**, 6931–6951.
- Quinn, P. K. et T. S. Bates, 2005 : Regional aerosol properties : Comparisons of boundary layer measurements from ace 1, ace 2, aerosols99, indoex, ace asia, tarfox, and neaqs. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **110 (D14)**.
- Randles, C., L. Russell, et V. Ramaswamy, 2004 : Hygroscopic and optical properties of organic sea salt aerosol and consequences for climate forcing. *Geophysical Research Letters*, **31 (16)**.
- Reddy, M. S., O. Boucher, Y. Balkanski, et M. Schulz, 2005 : Aerosol optical depths and direct radiative perturbations by species and source type. *Geophysical research letters*, **32 (12)**.
- Redelsperger, J.-L., F. Guichard, et S. Mondon, 2000 : A parameterization of mesoscale enhancement of surface fluxes for large-scale models. *Journal of Climate*, **13 (2)**, 402–421.
- Resch, F., J. Darrozes, et G. Afeti, 1986 : Marine liquid aerosol production from bursting of air bubbles. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, **91 (C1)**, 1019–1029.

- Rinaldi, M., et al., 2010 : Primary and secondary organic marine aerosol and oceanic biological activity : Recent results and new perspectives for future studies. *Advances in Meteorology*, **2010**.
- Rinaldi, M., et al., 2013 : Is chlorophyll-a the best surrogate for organic matter enrichment in submicron primary marine aerosol? *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **118** (10), 4964–4973.
- Ripoll, a., M. C. Minguillón, J. Pey, N. Pérez, X. Querol, et a. Alastuey, 2015 : Joint analysis of continental and regional background environments in the western Mediterranean : PM<sub>1</sub> and PM<sub>10</sub> concentrations and composition. *Atmos. Chem. Phys.*, **15** (2), 1129–1145, doi :10.5194/acp-15-1129-2015, URL <http://www.scopus.com/inward/record.url?eid=2-s2.0-84922042349&partnerID=tZ0tx3y1>.
- Roelofs, G., 2008 : A gcm study of organic matter in marine aerosol and its potential contribution to cloud drop activation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **8** (3), 709–719.
- Roger, J.-C., M. Mallet, P. Dubuisson, H. Cachier, E. Vermote, O. Dubovik, et S. Despiiau, 2006 : A synergetic approach for estimating the local direct aerosol forcing : Application to an urban zone during the expérience sur site pour contraindre les modèles de pollution et de transport d’émission (escompte) experiment. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **111** (D13).
- Rosenberg, P. D., et al., 2014 : Quantifying particle size and turbulent scale dependence of dust flux in the sahara using aircraft measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **119** (12), 7577–7598.
- Sakamoto, K., J. Allan, H. Coe, J. Taylor, T. Duck, et J. Pierce, 2015 : Aged boreal biomass-burning aerosol size distributions from bortas 2011. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15** (4), 1633–1646.
- Salameh, T., P. Drobinski, L. Menut, B. Bessagnet, C. Flamant, A. Hodzic, et R. Vautard, 2007 : Aerosol distribution over the western mediterranean basin during a tramontane/mistral event. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, **6** (6), 11 913–11 956.
- Salgado, R. et P. Le Moigne, 2010 : Coupling of the flake model to the surfex externalized surface model.
- Salvador, P., S. Alonso-Pérez, J. Pey, B. Artíñano, J. de Bustos, A. Alastuey, et X. Querol, 2014 : African dust outbreaks over the western mediterranean basin : 11-year characterization of atmospheric circulation patterns and dust source areas. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **14** (13), 6759–6775.

- Sapkota, A., et al., 2005 : Impact of the 2002 canadian forest fires on particulate matter air quality in baltimore city. *Environmental science & technology*, **39** (1), 24–32.
- Satheesh, S. et K. K. Moorthy, 2005 : Radiative effects of natural aerosols : A review. *Atmospheric Environment*, **39** (11), 2089–2110.
- Schulz, M., G. de Leeuw, et Y. Balkanski, 2004 : Sea-salt aerosol source functions and emissions. *Emissions of Atmospheric Trace Compounds*, Springer, 333–359.
- Schwier, A. N., et al., 2015 : Primary marine aerosol emissions from the mediterranean sea during pre-bloom and oligotrophic conditions : correlations to seawater chlorophyll a from a mesocosm study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **15** (14), 7961–7976.
- Sciare, J., O. Favez, R. Sarda-Estève, K. Oikonomou, H. Cachier, et V. Kazan, 2009 : Long-term observations of carbonaceous aerosols in the austral ocean atmosphere : Evidence of a biogenic marine organic source. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **114** (D15).
- Seinfeld, J. H. et S. N. Pandis, 1997 : *Atmospheric chemistry and physics*.
- Seinfeld, J. H. et S. N. Pandis, 2012 : *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.
- Seinfeld, J. H. et S. N. Pandis, 2016 : *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.
- Sellegri, K., J. Gourdeau, J.-P. Putaud, et S. Despiiau, 2001 : Chemical composition of marine aerosol in a Mediterranean coastal zone during the FETCH experiment. *J. Geophys. Res.*, **106** (D11), 12 023, doi :10.1029/2000JD900629.
- Sellegri, K., C. O'Dowd, Y. Yoon, S. Jennings, et G. de Leeuw, 2006 : Surfactants and sub-micron sea spray generation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **111** (D22).
- Sevault, F., et al., 2014 : A fully coupled mediterranean regional climate system model : design and evaluation of the ocean component for the 1980-2012 period. *Tellus A*, **66**.
- Sharqawy, M. H., J. H. Lienhard, et S. M. Zubair, 2010 : Thermophysical properties of seawater : a review of existing correlations and data. *Desalination and Water Treatment*, **16** (1-3), 354–380.
- Shinozuka, Y., A. D. Clarke, S. G. Howell, V. N. Kapustin, et B. J. Huebert, 2004 : Sea-salt vertical profiles over the southern and tropical pacific oceans : Microphysics, optical properties, spatial variability, and variations with wind speed. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **109** (D24).

- Sic, B., L. El Amraoui, V. Marécal, B. Josse, J. Arteta, J. Guth, M. Joly, et P. Hamer, 2015 : Modelling of primary aerosols in the chemical transport model mocage : development and evaluation of aerosol physical parameterizations. *Geoscientific Model Development*, **8** (2).
- Sicard, M., S. Bertolín, M. Mallet, P. Dubuisson, et A. Comerón, 2014 : Estimation of mineral dust long-wave radiative forcing : sensitivity study to particle properties and application to real cases in the region of barcelona. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **14** (17), 9213–9231.
- Sicard, M., M. Mallet, D. García-Vizcaíno, A. Comerón, F. Rocadenbosch, P. Dubuisson, et C. Muñoz-Porcar, 2012 : Intense dust and extremely fresh biomass burning outbreak in barcelona, spain : characterization of their optical properties and estimation of their direct radiative forcing. *Environmental Research Letters*, **7** (3), 034016.
- Slinn, W., 1979 : Atmospheric sciences and power production : Precipitation scavenging, report. *US Dep. of Energy, Washington, DC*.
- Smirnov, A., B. N. Holben, Y. J. Kaufman, O. Dubovik, T. F. Eck, I. Slutsker, C. Pietras, et R. N. Halthore, 2002 : Optical properties of atmospheric aerosol in maritime environments. *Journal of the Atmospheric Sciences*, **59** (3), 501–523.
- Smith, M. et N. Harrison, 1998 : The sea spray generation function. *Journal of Aerosol Science*, **29**, S189–S190.
- Smith, M., P. Park, et I. Consterdine, 1993 : Marine aerosol concentrations and estimated fluxes over the sea. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **119** (512), 809–824.
- Sofiev, M., J. Soares, M. Prank, G. de Leeuw, et J. Kukkonen, 2011 : A regional-to-global model of emission and transport of sea salt particles in the atmosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **116** (D21).
- Spada, M., O. Jorba, C. Pérez García-Pando, Z. Janjic, et J. Baldasano, 2013 : Modeling and evaluation of the global sea-salt aerosol distribution : sensitivity to size-resolved and sea-surface temperature dependent emission schemes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **13** (23), 11 735–11 755.
- Stein, A., R. Draxler, G. Rolph, B. Stunder, M. Cohen, et F. Ngan, 2015 : Noaa’s hysplit atmospheric transport and dispersion modeling system. *Bulletin of the American Meteorological Society*, **96** (12), 2059–2077.
- Stohl, A., M. Hittenberger, et G. Wotawa, 1998 : Validation of the lagrangian particle dispersion model flexpart against large-scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment*, **32** (24), 4245–4264.

- Sturges, W. T. et G. E. Shaw, 1993 : Halogens in aerosols in central alaska. *Atmospheric environment. Part A. General Topics*, **27 (17)**, 2969–2977.
- Tafuro, A. M., S. Kinne, F. De Tomasi, et M. R. Perrone, 2007 : Annual cycle of aerosol direct radiative effect over southeast italy and sensitivity studies. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **112 (D20)**.
- Tang, I. N., 1996 : Chemical and size effects of hygroscopic aerosols on light scattering coefficients. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **101 (D14)**, 19 245–19 250.
- Tang, I. N., 1997 : Thermodynamic and optical properties of mixed-salt aerosols of atmospheric importance. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **102 (D2)**, 1883–1893.
- Thorpe, S., P. Bowyer, et D. Woolf, 1992 : Some factors affecting the size distributions of oceanic bubbles. *Journal of physical oceanography*, **22 (4)**, 382–389.
- Tost, H., P. Jöckel, A. Kerkweg, R. Sander, et J. Lelieveld, 2006 : Technical note : A new comprehensive scavenging submodel for global atmospheric chemistry modelling. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **6 (3)**, 565–574.
- Tsyro, S., W. Aas, J. Soares, M. Sofiev, H. Berge, et G. Spindler, 2011 : Modelling of sea salt concentrations over Europe : key uncertainties and comparison with observations. *Atmos. Chem. Phys.*, **11 (20)**, 10 367–10 388, doi :10.5194/acp-11-10367-2011, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/11/10367/2011/>.
- Tulet, P., V. Crassier, F. Cousin, K. Suhre, et R. Rosset, 2005 : Orilam, a three-moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model : Online coupling into the mesonh-c model and validation on the escompte campaign. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **110 (D18)**.
- Turšič, J., B. Podkrajšek, I. Grgić, P. Ctyroky, A. Berner, U. Dusek, et R. Hitzengerger, 2006 : Chemical composition and hygroscopic properties of size-segregated aerosol particles collected at the adriatic coast of slovenia. *Chemosphere*, **63 (7)**, 1193–1202.
- Tyree, C. A., V. M. Hellion, O. A. Alexandrova, et J. O. Allen, 2007 : Foam droplets generated from natural and artificial seawaters. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **112 (D12)**.
- Vaishya, A., J. Ovadnevaite, J. Bialek, S. G. Jennings, D. Ceburnis, et C. D. O'Dowd, 2013 : Bistable effect of organic enrichment on sea spray radiative properties. *Geophysical Research Letters*, **40 (24)**, 6395–6398.

- Valenzuela, A., et al., 2014 : Aerosol transport over the western mediterranean basin : Evidence of the contribution of fine particles to desert dust plumes over alborán island. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **119** (24).
- Vignati, E., G. Leeuw, et R. Berkowicz, 2001 : Modeling coastal aerosol transport and effects of surf-produced aerosols on processes in the marine atmospheric boundary layer. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **106** (D17), 20 225–20 238.
- Vogel, B., H. Vogel, D. Bäumer, M. Bangert, K. Lundgren, R. Rinke, et T. Stanelle, 2009 : The comprehensive model system cosmo-art—radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **9** (22), 8661–8680.
- Ward, T. J. et G. C. Smith, 2005 : The 2000/2001 missoula valley pm 2.5 chemical mass balance study, including the 2000 wildfire season—seasonal source apportionment. *Atmospheric Environment*, **39** (4), 709–717.
- Wesely, M., 1989 : Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmospheric Environment (1967)*, **23** (6), 1293–1304.
- Wotawa, G., P. Novelli, M. Trainer, et C. Granier, 2001 : Inter-annual variability of summertime co concentrations in the northern hemisphere explained by boreal forest fires in north america and russia. *Geophysical Research Letters*, **28** (24), 4575–4578.
- Yoon, Y., et al., 2007 : Seasonal characteristics of the physicochemical properties of north atlantic marine atmospheric aerosols. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **112** (D4).
- Zábori, J., M. Matisāns, R. Krejci, E. Nilsson, et J. Ström, 2012 : Artificial primary marine aerosol production : a laboratory study with varying water temperature, salinity, and succinic acid concentration. *Atmospheric Chemistry and Physics*, **12** (22), 10 709–10 724.
- Zakey, A., F. Giorgi, et X. Bi, 2008 : Modeling of sea salt in a regional climate model : Fluxes and radiative forcing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, **113** (D14).
- Zhao, D. et Y. Toba, 2001 : Dependence of whitecap coverage on wind and wind-wave properties. *Journal of oceanography*, **57** (5), 603–616.
- Zheng, M., G. R. Cass, J. J. Schauer, et E. S. Edgerton, 2002 : Source apportionment of pm2. 5 in the southeastern united states using solvent-extractable organic compounds as tracers. *Environmental science & technology*, **36** (11), 2361–2371.

---