



Soutenance de thèse CNRM :

**Measurements and regional-scale modeling of
atmospheric black carbon particles**

Par Sarah TINORUA (GMEI/MNPCA)

**Le jeudi 23 novembre à 14H
en Salle Joël Noilhan (246 Navier)**

Lien BJ : <https://bluejeans.com/474281400/6080>

Membres du jury :

Mme Karine SARTELET – CEREAA, Marne-la-vallée
(Rapporteure)

M. Paolo LAJ – IGE, Grenoble (Rapporteur)

M. Denis PETITPREZ – PC2A, Lille (Rapporteur)

Mme Céline MARI – LAERO, Toulouse (Examinatrice)

M. Martin GYSEL – PSI, Suisse (Examineur)

Mme Cyrielle DENJEAN – CNRM, Toulouse (Directrice de
thèse)

M. Pierre NABAT – CNRM, Toulouse (Co-directeur de thèse)

Mme Véronique PONT – LAERO, Toulouse (Invitée)

Abstract:

Black carbon (BC), a light absorbing aerosol resulting from incomplete combustion of both anthropogenic and natural emissions, exerts a large but uncertain warming contribution to Earth's climate. An improved quantification of its concentration and a better understanding of its aging processes during atmospheric transport and its deposition rates, could reduce these uncertainties. Mountain sites are of particular interest for studying the life cycle of BC far from local pollution sources. The aim of this thesis is to better quantify and understand the variability of BC's microphysical and optical properties in the free troposphere in order to better estimate its effects on regional climate. This work is based on two years of measurements carried out at the Pic du Midi research station located at 2877 m altitude in the French Pyrenees.

The first part of this thesis presents the development of a program to quantify the concentration and mixing state of rBC-containing particles measured by a SP2 (Single Particle Soot Photometer). In the second part, an intercomparison of three commonly used instruments for measuring the BC mass concentration is presented : an aethalometer, an SP2 and a thermal-optical analyser. The largest biases were observed for the aethalometer with concentrations around two time greater than those measured by the other instruments. The principal reasons of such large discrepancy was explained by the too low mass absorption cross-section of BC (MAC) and C values recommended by the constructor and applied to the absorption coefficients measured by the aethalometer and the presence of dust particles in the sample. Other causes of biases are investigated and a list of recommendations for avoiding or correcting them is proposed.

In the third part, the variability of the optical and microphysical properties of aerosols and rBC-containing particles at PDM is investigated. Analysis of the spectral dependence of aerosol optical properties showed that absorption is governed by rBC-containing particles. A marked seasonality in the properties of rBC-containing particles was observed, with higher concentration and MAC in summer than in winter. An analysis of emission sources and atmospheric dynamics revealed a dominant contribution of rBC-containing particles emitted by biomass burning emissions and transported into the free troposphere in summer. By contrast, in winter a larger contribution of rBC-containing particles from fossil fuels coming from the boundary layer was observed.

In order to study the interactions between BC and regional climate, simulations with the regional climate model CNRM-ALADIN were carried out and analyzed in the last section. As in numerous climate models, the representation of BC is highly simplified for computation time reasons. A first comparison with observations showed an overall underestimation of the MAC, a correct estimation of their concentrations and an underestimation of the aerosol single scattering albedo. Sensitivity tests were carried out to investigate the effects of increasing MAC on BC radiative effects. A direct radiative forcing larger by a factor two was obtained compared to the reference simulation when adjusting MAC to the value observed at PDM. Significant differences in the temperature vertical profiles and the radiative fluxes at surface were obtained for the two simulations, showing the strong influence of semi-direct effects over the domain. This highlights the importance of an accurate representation of BC vertical distribution in climate modelling.

Résumé :

Le carbone-suie (BC), espèce particulaire absorbante issue de la combustion incomplète d'origine anthropique et naturelle, peut induire un réchauffement de l'atmosphère soumis à de fortes incertitudes. Une meilleure estimation de sa concentration, ainsi qu'une meilleure compréhension de son transport, son vieillissement dans l'atmosphère et son dépôt permettrait d'améliorer la quantification de ses effets sur le climat. Les sites de montagne sont particulièrement intéressants pour étudier le cycle de vie du BC, car ils sont éloignés des sources de pollution locale. L'objectif de cette thèse est de mieux quantifier et comprendre la variabilité des propriétés microphysiques et optiques du BC en troposphère libre, afin de mieux estimer ses effets sur le climat régional. Ce travail se base sur deux années de mesures réalisées à la station de recherche du Pic du Midi située à 2877 m d'altitude dans les Pyrénées françaises.

La première partie de cette thèse présente le programme de traitement de données qui a été développé pour quantifier la concentration et l'état de mélange des particules contenant du BC réfractaire (rBC), à partir de mesures du photomètre SP2 (Single Particle Soot Photometer).

Dans une deuxième partie, une intercomparaison de trois instruments couramment utilisées pour mesurer la concentration massique des particules contenant du BC est exposée : un aethalomètre, un SP2 et un analyseur thermo-optique. L'aethalomètre a montré des concentrations environ 2 fois plus fortes que celles des autres instruments. Les valeurs de section efficace d'absorption (MAC) et du paramètre de correction C recommandées par le constructeur de l'aethalomètre pour calculer ces concentrations ainsi que la présence de poussières désertiques ont été identifiées comme les sources de ces biais. D'autres sources de biais sur chacun des instruments (limites de détection en taille, en concentration,...) sont présentés et une liste de recommandations pour les éviter ou les corriger est proposée.

La troisième partie vise à étudier la variabilité des propriétés optiques et microphysiques des aérosols et des particules contenant du rBC au PDM. L'analyse de la dépendance spectrale des propriétés optiques des aérosols a montré une absorption gouvernée par les particules contenant du rBC au PDM. Une saisonnalité marquée des propriétés des particules contenant du rBC a été constatée, avec une concentration et un MAC plus importants en été qu'en hiver. Une analyse des sources d'émissions et de la dynamique atmosphérique a révélé une influence prépondérante de particules contenant du rBC émises par les feux de biomasse et transportées en troposphère libre en été, contrairement à l'hiver où une contribution plus importante de particules contenant du rBC issus de combustibles fossiles provenant de la couche limite a été observée.

Afin d'étudier les interactions entre le BC et le climat régional, des simulations avec le modèle de climat régional CNRM-ALADIN ont été réalisées et analysées dans la dernière partie. Comme dans beaucoup de modèles de climat, la représentation des particules contenant du BC y est très simplifiée pour des raisons de temps de calcul. Les premières comparaisons aux observations ont montré un MAC des particules contenant du BC globalement sous-estimé, une bonne représentation de leur concentrations et une sous-estimation de l'albédo de simple diffusion des aérosols. Une étude de sensibilité des effets radiatifs des particules contenant du BC à leur absorption a été réalisée en modifiant le MAC du BC dans ALADIN conformément aux mesures réalisées au PDM. Cette nouvelle configuration a mis en évidence un forçage radiatif direct deux fois plus fort au PDM par rapport à la simulation de référence. L'étude des différences de profils verticaux de température et de rayonnement reçu à la surface entre les deux simulations montre un effet semi-direct hétérogène sur le domaine et souligne l'importance de la représentation de la distribution verticale des particules contenant du BC dans les modèles de climat.