tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

N° d'ordre : D.U. 2198

UNIVERSITE BLAISE PASCAL
U.F.R. Sciences et Technologies
ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES N°701

T H E S E

présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR d'UNIVERSITÉ

Spécialité : Physique de l'atmosphère

Par Quennehen Boris

Master Physico-Chimie de l'Atmosphère et Climat

Etude des aérosols transportés en Arctique à partir des mesures aéroportées (ATR-42) du LaMP durant le projet POLARCAT

soutenue publiquement le 14 décembre 2011, devant la comission d'examen.

Jury :

Président :	Pr. Wolfram Wobrock	- LaMP
Directeur :	Pr. Alfons Schwarzenboeck	- LaMP
Rapporteurs :	Dr. Jean-Luc Jaffrezo	- LGGE
	Dr. Jean Sciare	- LSCE
Examinateurs :	Dr. Gérard Ancellet	- LATMOS
	Dr. Jean-Daniel Paris	- LSCE

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Remerciements

Mener une thèse de doctorat à son terme est un travail, parfois une épreuve, principalement solitaire. Néanmoins, il est important de rappeler l'importance qu'ont les personnes constituant l'environnement direct ou indirect, par leur support technique, intellectuel, humoristique, amical, affectif, sportif, etc... Cette section est dédiée à tous ceux qui m'ont permis d'atteindre le terme de mes travaux.

Je tiens donc tout d'abord à remercier Wolfram Wobrock qui, en plus de présider mon jury, m'a accueilli dans le laboratoire qu'il dirige. Je n'oublie pas par ailleurs les autres membres de mon jury qui ont accepté de lire et d'évaluer mon manuscrit et de faire le déplacement jusqu'à Clermont-Ferrand pour assister à ma soutenance. Parmi ce jury, Alfons Schwarzenboeck occupait, en tant que directeur de thèse, une place à part. Aucun des résultats que j'ai présenté ici n'aurait été possible sans lui. Sa patience face à mes explications parfois peu claires, son expertise en réponse à mes questions et sa passion dans nos discussions mais aussi sont implication dans l'évolution de mes travaux ont contribué à l'admiration et au respect que j'ai pour lui. Alfons, j'été le premier et tout s'est bien passé (les suivants sont bien tombés !) merci pour tout et à bientôt j'espère pour de nouvelles aventures.

J'aimerai également honorer les personnes qui m'ont permis de m'épanouir pleinement au sein du LaMP, en donc en premier lieu mes camarades et amis thésard. Pour mon bureau, au bâtiment 8, Hervé, Guillaume, Vincent qui nous ont vite quitté (parfois pour des lieux proches) ; Max, Julien et Emmanuel qui m'ont supporté pendant plus de 2 ans du matin au soir (et souvent aussi du soir au matin mais plutôt le week-end) et enfin Clémence et Gwennolé qui débutent et à qui je souhaite bon courage. Je n'oublie pas non plus mes amis du batiment 5 avec qui le RU est devenu bien plus fun, Cécé et Fred (passés chez la perfide albion), Carole, Aura, Christelle, Elise, Laurent et Yoann (également présents du soir au matin). Quelques post-doc passé par le labo méritent également quelques mots : Suzanne, parce qu'on l'entend depuis le bout du couloir et Nick, parce qu'il boit des pintes en moins de temps qu'il faut pour le dire. Merci à tous !

Autre moment important de mes journée au labo : La pause café. Souvent programmée autour de 10h, garnie de viennoiseries, gâteaux, cerises, fromages,... au rythme des saisons, des anniversaires ou des vacances. Sa durée dépaissait d'ailleurs souvent nos intentions, signe des intenses discussions qui s'y sont tenues ! Merci donc à tous ses participants réguliers (j'en oublie surement) : Karine, Evelyne,

Mickael, Aurélie, Jean-Marc, Christophe, Régis, David, Laeticia, et bien entendu une forte proportion de thésard et de stagiaire. Merci également à Marie, Olivier, Fred, Yahya, Laurent du batiment 5 pour les moments de rire et de plaisir via le foot en salle ou les soirées à thème : crémaillère, hiver, angleterre, etc...

Si je me tourne maintenant vers l'extérieur du labo, je ne peux que penser à mes deux colocataires, Catherine et Manu, qui du statut d'amis sont passés à celui de famille au cours de ces 2 années de vie commune. Leur humour et leur amour va beaucoup me manquer, merci pour ces 2 années de folie, je vous aime les amis ! J'en profite pour saluer également Manu, le nouveau colocataire, qui fait déjà presque parti de la famille ainsi que Gaëlle, Emilie et Joël (entre autres).

Une part importante de ma vie de thésard a été rythmée par mes sessions de squash et c'est donc logiquement que je souhaite remercier mes multiples partenaires pour les nombreuses heures passées sur les parquets, mais aussi autour d'une bonne bière (si ce n'est plus) après l'effort. Merci donc à Harold, Olivier D., Olivier B., Julien, Séb, Nico M., Florian, Nolween, Eric, Dom, Hervé, David, Jean, Fred, Philippe, Laurent, Nico D., Arnaud, Armand, Olivier S., Franky, etc...

Enfin, last but not least, j'adresse à ma famille de chaleureux remerciements pour leur soutien tout d'abord et ce depuis mes premiers pas sur les bancs de la fac, mais aussi pour leur présence lors de la soutenance, un ultime soutien de taille indéniablement, merci d'avoir fait le déplacement. Pour terminer cette liste, merci à celle qui partage ma vie depuis maintenant plus de deux ans et qui a tenu bon malgré la distance et les fatiguants trajets en TEOZ (sans compter mes nombreux problèmes de thésard) et que je rejoins (enfin ! ! Se serait-elle exclamée...) à Paris pour la suite de mes aventures...

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Table des matières

1 Introduction générale **1**
1.1 Contexte scientifique . . . 1
1.2 Le climat en Arctique . . . 2
1.3 Rôle des aérosols dans le système climatique . . . 4
1.3.1 Effet radiatif direct . . . 6
1.3.2 Effet radiatif semi-direct . . . 6
1.3.3 Focus sur les régions Arctiques . . . 7
1.4 Enjeux et objectifs de la thèse . . . 9
1.5 Plan du manuscrit . . . 11

2 Les aérosols : Propriétés, processus et observations - focus sur les régions Arctiques **13**
Introduction . . . 13
2.1 Propriétés des aérosols . . . 14
2.1.1 Distribution en taille des particules . . . 14
2.1.2 État de mélange de l'aérosol . . . 15
2.1.3 Propriétés chimiques des aérosols . . . 16
2.1.4 Propriétés optiques des aérosols . . . 17
2.2 Les processus des aérosols . . . 21
2.2.1 Sources . . . 21
2.2.2 Processus de vieillissement : coagulation et condensation . . . 23
2.2.3 Dépôt . . . 24
2.3 Observations des aérosols . . . 26
2.3.1 Mesures in-situ . . . 26
2.3.2 Télédétection . . . 27

3 Le projet POLARCAT : mesures in-situ des aérosols arctiques et modélisation du transport **29**
Introduction . . . 29
3.1 Le projet POLARCAT . . . 30
3.2 Les mesures à bord de l'ATR-42 . . . 31
3.2.1 Les veines de prélèvement . . . 31
3.2.2 Les instruments de mesures couplés aux veines CVI/CAI . . . 33
3.3 Modélisation Lagrangienne du transport de la pollution vers l'Arctique 40

4 Étude de la partie réfractaire et du vieillissement des aérosols pollués transportés en Arctique **45**
Introduction . . . 45
4.1 Présentation de la campagne . . . 46
4.2 Identification des panaches de pollution . . . 46
4.2.1 Étude des séries temporelles de ΔCO . . . 47
4.2.2 Identification des panaches . . . 48
4.3 Étude des panaches transportés vers l'Arctique . . . 53
4.3.1 Feux russes et panaches anthropiques européens . . . 54
4.3.2 Pollution asiatique . . . 58
4.3.3 Analyse des échantillons prélevés in-situ . . . 61
4.4 Étude de cas : vieillissement d'un aérosol anthropique européen . . . 65
4.4.1 Évolution des propriétés du panache . . . 65
4.4.2 Modélisation du vieillissement par coagulation . . . 70
4.5 Conclusions . . . 79

5 Étude des aérosols pollués transportés vers le Groenland, impact du dépôt humide. **83**
Introduction . . . 83
5.1 Présentation de la campagne . . . 84
5.2 Identification des panaches de pollution . . . 85
5.2.1 Étude des séries temporelles de CO . . . 85
5.2.2 Origine géographique des sources de pollution . . . 86
5.3 Propriétés des panaches de pollution d'Amérique du nord . . . 93
5.3.1 Propriétés chimiques . . . 94
5.3.2 Propriétés physiques . . . 94
5.3.3 Propriétés optiques . . . 107
5.4 Etude du processus de dépôt humide . . . 110
5.4.1 Outils d'analyse . . . 110
5.4.2 Le dépôt humide . . . 110
5.5 Conclusions . . . 112

6 Conclusions générales **115**
6.1 Synthèse . . . 115
6.2 Perspectives . . . 118

Bibliographie **121**

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

A Liste des publications, communications, et principaux travaux accomplis **143**
A.1 Publications dans des journaux à comité de lecture 143
A.2 Participation à des conférences 144
A.3 Publications en préparation 144
A.4 Principaux travaux accomplis 145

B Étude des mesures AMS obtenues durant la campagne POLARCAT été par Schmale et al.(2011) **147**

C Analyse des propriétés optiques des particules d'aérosols transportés depuis l'Asie durant la campagne printemps par Adam de Villiers et al.(2010) **175**

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Chapitre 1

Introduction générale

1.1 Contexte scientifique

Les questions environnementales sont aujourd'hui omniprésentes dans notre société. Si les impacts de la pollution sur la santé sont pris en considération depuis de nombreuses années déjà (création de l'Agence pour la qualité de l'Air en 1980), la prise de conscience de l'existence d'un changement climatique, dont l'origine pourrait en partie être imputée aux activités humaines, est récente et suscite un débat sans précédent sur la place de l'être humain au sein de l'écosystème global. Ces discussions ont fait leur apparition dans le débat politique avec notamment la signature par 5 des 12 candidats à l'élection présidentielle française de 2007 (dont les deux finalistes) d'un pacte écologique (Hulot, 2007) qui a débouché sur la mise en place d'un Grenelle de l'environnement par le ministère de l'écologie et du développement durable. Si on peut s'étonner que ce document rédigé par un militant écologiste sans réelle base scientifique suscite plus d'intérêt auprès de la population que le rapport (hautement scientifique lui) spécialement conçu pour les dirigeants par le Groupement Intergouvernemental d'Expert sur le Climat (GIEC, 2007), il reste néanmoins que le thème du réchauffement climatique est désormais incontournable. L'avènement de l'ère industrielle à la fin du XVIII^{e} siècle en Europe a marqué le début de l'influence, toujours grandissante, de l'Homme sur son environnement et à plus large échelle sur le climat.

L'atmosphère, de par son interaction avec les autres compartiments de l'environnement (océan, biosphère, cryosphère et, à moindre mesure, espace), en est sûrement l'un des plus importants. C'est en son sein qu'a lieu le célèbre effet de serre, processus naturel indispensable à la vie qui consiste en un véritable piège pour les rayonnements solaire et tellurique. En effet, par le biais d'interactions avec certains constituants de l'atmosphère tels que les gaz, les particules d'aérosols et les nuages, ces rayonnements peuvent être réfléchis, absorbés ou diffusés. Ce sont ces interactions qui déterminent la quantité d'énergie piégée par l'atmosphère, ce qui conduit à penser qu'en modifiant les concentrations des éléments responsables de ces interactions, les activités humaines ont un impact non négligeable sur l'effet de serre. Ainsi par exemple, depuis le début des années 1800, une nette augmentation

dans l'atmosphère des concentrations en gaz à effet de serre tels que le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4) a été mise en évidence au travers de l'étude de carottes de glace (collectées par exemple à Summit, Groenland (Mayewski et al., 1986, 1990)) et de mesures directes. Cette aumentation s'est révélée corrélée avec une hausse de la température moyenne globale à la surface de la Terre ainsi qu'une montée du niveau de la mer (GIEC, 2007). Si ces changements ne peuvent pas être intégralement imputés aux activités humaines (et encore moins à la seule action des gaz à effet de serre), celles-ci jouent néanmoins un rôle évident, le challenge actuel étant de quantifier le plus précisément possible celui-ci au travers de l'étude approfondie des constituants de l'atmosphère et de leurs évolutions à l'aide de modèles climatiques régionaux et globaux et d'observations in-situ et de télédétection. L'impact de ces éléments dépend (i) de la zone d'émission mais aussi (ii) de la zone géographique dans laquelle ils sont transportés. C'est pourquoi il est important de connaître et/ou d'estimer les émissions, les voies de transport et les « destinations » de ces éléments mais aussi d'estimer les quantités transportées.

1.2 Le climat en Arctique

La région Arctique (zone gégraphique située au dessus de 60°N) est plus sensible au changement climatique que le reste de la planète (Polyakov et al., 2002). En effet, cette région a comme principales caractéristiques d'être recouverte d'une surface glacée très étendue et de subir d'importantes chutes de neige. Les interactions de ces grandes surfaces à fort albédo, propres aux régions polaires avec le rayonnement solaire, l'océan et l'atmosphère contribuent au phénomène d'« amplification polaire » qui fait que l'Arctique subit des tendances de réchauffement plus importantes que le reste de la planète (Chapman and Walsh, 2007).
À travers l'analyse d'une compilation de données comprenant l'étude des sédiments marins et lacustres couplée à des analyses dendrochronologiques et de carottes de glace, Overpeck et al. (1997) ont montré que l'Arctique était une zone climatique à forte variabilité. Cette dernière peut être en partie expliquée par les phénomènes spécifiques à cette région. Ainsi, l'oscillation Nord Atlantique (ONA) (Hurrell, 1995), également connue sous le nom d'oscillation Arctique (Deser, 2000) est un mode dominant de la circulation atmosphérique dans l'hémisphère nord qui s'étend de l'Europe au milieu du continent américain et qui transporte de la chaleur et de la matière des régions tempérées vers l'Arctique. Eckhardt et al. (2003) ont montré que ce mode dominait le transport de pollution vers l'Arctique, contribuant à la position et à

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

l'intensité du vortex polaire (voir plus bas). La variabilité de l'intensité de la NAO a également un impact sur la composition de l'océan Arctique (Dickson et al., 2000). Par ailleurs, la circulation thermohaline qui permet le transport d'importantes quantités de chaleur depuis les régions tempérées vers des latitudes plus septentrionales joue également un rôle important dans le climat de la région Arctique (Delworth and Mann, 2000).

Le vortex polaire est un phénomène qui apparait durant l'automne (dans l'hémisphère nord) lorsque la région Arctique n'est plus atteinte par les rayonnements solaires. Un important gradient de pression se développe alors entre le pôle et les latitudes moyennes et celui-ci, combiné à la rotation de la Terre, forme une « barrière » de vents d'ouest qui constitue le vortex polaire (Schoeberl and Hartmann, 1991). Le vortex fait descendre la température de la basse stratosphère suffisamment bas pour permettre l'apparition de nuages stratosphériques polaires (NSP). Les NSP sont constitués d'acide nitrique trihydraté qui a une forte réactivité avec des polluant tels que les radicaux hypochlorite (ClO) (Molina and Molina, 1987) et hypobromite (BrO) (Anderson et al., 1991). Les produits de cette réaction participent ensuite, dès le retour des rayons du soleil au début du printemps, à la destruction de l'ozone stratosphérique par photo-réaction (Schoeberl and Hartmann, 1991), impactant ainsi la couche d'ozone. Taalas et al. (1997) ont montré qu'une couche d'ozone plus fine et laissant donc passer plus de rayons UV, conduisait à une augmentation de l'ozone troposphérique. Jusqu'à récemment, seul l'hémisphère sud avait subi une dégradation suffisamment importante de sa couche d'ozone pour que l'expression « trou » soit utilisée. Manney et al. (2011) ont montré que durant l'hiver 2010-2011 a été observé pour la première fois dans l'hémisphère nord une déplétion suffisamment importante de la quantité d'ozone stratosphérique pour parler d'un nouveau trou d'ozone.

La région Arctique est principalement recouverte de surfaces glacées et/ou enneigées. Celles-ci recouvrent une grande partie de l'océan Arctique en hiver et voient naturellement leurs surfaces se réduire en été du fait de l'inclinaison de la Terre vis à vis du soleil. Néanmoins, il a été montré que la surface couverte chaque été s'est réduite régulièrement entre les années 1979 et 2011 (Cavalieri et al., 1997; Parkinson et al., 1999; Serreze et al., 2007; Stroeve et al., 2011) avec notamment des minimums « records » observés en septembre 2002 (Serreze et al., 2003), en septembre 2004 (Stroeve et al., 2005), en septembre 2005 (Stroeve et al., 2007) pour atteindre la plus petite surface observée à ce jour en septembre 2007 (Stroeve et al., 2008). Cette décroissance est principalement attribuée aux variations de la température de l'air, des circulations atmosphérique et océanique et au forçage radiatif dû à l'augmentation des concentrations en gaz à effet de serre (Moritz et al., 2002; Serreze

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

et al., 2007). De façon plus générale, le forçage radiatif des gaz à effet de serre et les variations dans les circulations atmosphérique et océanique jouent un rôle important dans l'amplification polaire (Thompson and Wallace, 2001; Moritz et al., 2002; Wang and Key, 2005). Enfin, les particules d'aérosols, à travers leurs interactions avec le rayonnement solaire et leur rôle dans la formation et la durée de vie des nuages, impactent également le climat arctique. Ce sont les fameux effets direct, semi-direct et indirect des aérosols sur le climat. C'est sur ces particules atmosphériques mesurées en Arctique que se concentreront les travaux présentés dans ce manuscrit.

1.3 Rôle des aérosols dans le système climatique

Les particules d'aérosols sont, par définition, l'ensemble des particules liquides et/ou solides en suspension dans l'atmosphère, à l'exception des gouttelettes d'eau et des cristaux de glace constituants les nuages, également connus sous le nom d'hydrométéores. Bien que moins concentrés que les molécules gazeuses, ils n'ont pas pour autant moins d'impacts sur notre environnement. Si leurs effets sur le climat sont connus depuis la fin des années 1960 (McCormick and Ludwig, 1967) et le début des années 1970 (Twomey, 1974), il reste cependant à quantifier ces effets sur le long terme ainsi que les différents processus qui les gouvernent, notamment dans les régions reculées comme l'Arctique.

La pollution, selon sa définition, correspond à la dégradation d'un environnement par l'introduction de substances ou de radiations entraînant une perturbation de l'écosystème. Ainsi, une part des aérosols émis naturellement peut être considérée comme de la pollution, par exemple des cendres volcaniques ou des produits de combustion issus de feux de forêts, l'année 2010 pouvant aisément servir d'exemple avec l'éruption du volcan islandais Eyjafjallajökull aux mois de mars et avril (Schumann et al., 2011; Hervo et al., 2011) et l'épisode de feux de forêts en Russie durant l'été (Konovalov et al., 2011).

Les aérosols influencent naturellement le bilan radiatif terrestre. L'injection par l'être humain, dans l'atmosphère, de grandes quantités de particules d'aérosols va donc impacter ce bilan radiatif, la difficulté se trouvant dans la quantification de cet impact comme le souligne le GIEC dans son rapport de 2007 (GIEC, 2007). En effet, la distribution des aérosols est particulièrement hétérogène autour de la planète et leurs propriétés physiques, chimiques et optiques (et donc les interactions avec les rayonnements solaire et tellurique) varient en fonction de la distribution en taille et de la composition chimique. Cette dernière étant connectée (i) aux proces-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

sus d'émission mais également (ii) de vieillissement lors du transport. Si le forçage radiatif (variation nette d'éclairement énergétique vertical, expirmée en watts par mètre carré (W m^{-2})) induit par les gaz à effet de serre est positif (figure 1.1), il apparaît clairement que celui lié aux aérosols est pour l'ensemble du globe négatif, autrement dit qu'il compense en partie le forçage radiatif induit par les gaz à effet de serre à l'échelle globale, comme l'ont montré de nombreux travaux (Charlson et al., 1990; Kiehl and Briegleb, 1993; Taylor and Penner, 1994).

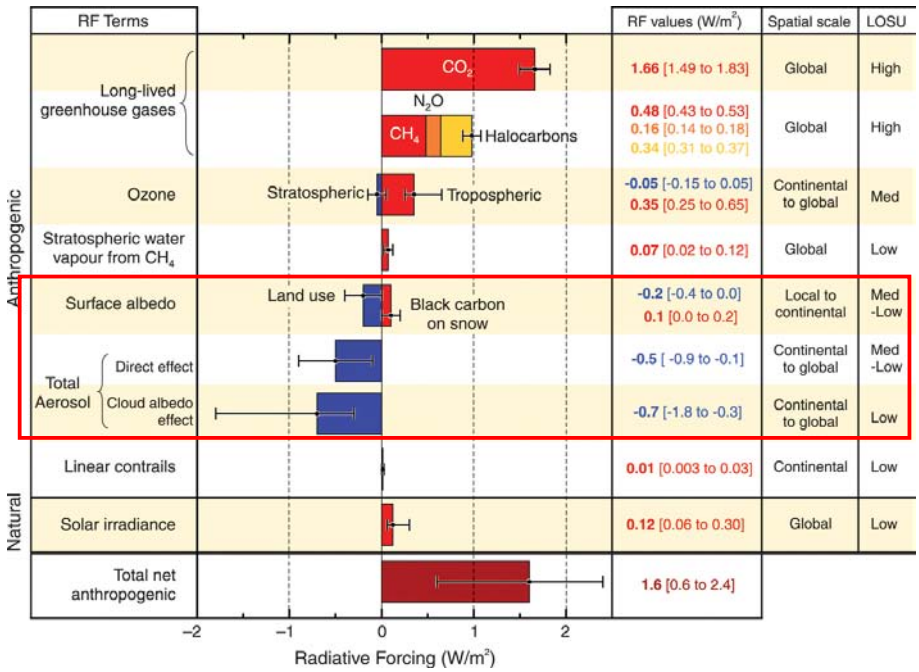


FIGURE *1.1 – Bilan du forçage radiatif induit par les activités humaines et naturelles au niveau de la tropopause. Les valeurs correspondent aux forçages en 2005 (par rapport au début de l'ère industrielle en 1750). Un forçage positif induit un réchauffement quand un forçage négatif induit un refroidissement. La barre d'erreur correspond aux valeurs comprises entre les 5^e et 95^e percentiles et les valeurs correspondantes sont indiquées dans la colonne « RF values (W/m^2) ». Le domaine géographique associé au forçage (« Spatial scale ») ainsi que le niveau de connaissance scientifique estimé (« LOSU ») sont indiqués dans les 2 dernières colonnes.*

L'impact des aérosols peut être divisé en 3 effets distincts, communément nommés effets direct, semi-direct et indirect. Par leurs interactions multiples avec le rayonnement solaire, ils peuvent modifier l'albédo terrestre (rapport d'énergie ren-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

voyé par la Terre sur l'énergie solaire reçue) de façon significative. L'albédo moyen à la surface de la Terre est de 0,28. Plus localement, il est autour de 0,26 au dessus des océans et compris entre 0,4 et 0,9 pour les nuages autres que les cirrus. Un résumé des effets induits par les particules d'aérosols sur le bilan radiatif terrestre est présenté dans la figure 1.2.

1.3.1 Effet radiatif direct

Au même titre que les gaz à effet de serre, les aérosols agissent sur le climat de manière directe en interagissant avec le rayonnement solaire (McCormick and Ludwig, 1967). Ainsi, après interaction, la majeure partie du rayonnement est rediffusée dans toutes les directions alors que l'énergie restante est absorbée, une partie du rayonnement solaire étant donc réémise vers l'espace. C'est le premier effet radiatif direct des aérosols, également connu sous le nom d'effet « parasol ». Son impact sur le bilan radiatif est négatif puisque les particules d'aérosol empêchent une partie du rayonnement solaire d'atteindre la surface de la Terre. Ainsi, Charlson et al. (1992) estiment que le forçage radiatif dû aux aérosols est compris entre -1 à -2 W/m^2. Un autre effet direct peut être observé dans le cas de particules très absorbantes par exemple la suie. Le rayonnement solaire est absorbé et permet à une plus grande partie de l'énergie d'être transmise à l'atmosphère sous forme de chaleur (Kaufman and Nakajima, 1993; Haywood and Shine, 1995), diminuant ainsi l'albédo. Le forçage radiatif direct est estimé entre -0.9 et -0.1 W/m^2 (Forster et al., 2007).

1.3.2 Effet radiatif semi-direct

L'absorption du rayonnement solaire par les particules d'aérosols, notamment la suie, entraîne un réchauffement de celles-ci qui conduit à l'effet dit « semi-direct ». L'expression de celui-ci peut aller jusqu'à l'évaporation de nuages formés de gouttelettes d'eau ayant nucléé en partie sur des particules absorbantes ou l'inhibition de la nucléation des gouttelettes d'eau sur ces mêmes particules (Ackerman et al., 2000). Cet effet conduit à un forçage radiatif positif puisqu'il tend à diminuer la couverture nuageuse et ainsi à diminuer l'albédo terrestre.

1.3.2.1 Effet radiatif indirect

Les particules d'aérosols sont indispensables dans le processus de formation des nuages (Pruppacher and Klett, 1997). En effet, la vapeur d'eau condense sur ces particules, qui sont alors appelées noyaux de condensation (CCN) ou noyaux glaçogènes (IN), pour former respectivement des gouttelettes d'eau ou des cristaux de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

glace. Ainsi, modifier les concentrations et les propriétés de ces CCN ou IN conduit à une modification des processus de nucléation des gouttelettes de nuages mais aussi des propriétés intrinsèques au nuage. À un volume de vapeur d'eau constant, l'augmentation de la surface sur laquelle peut condenser cette vapeur d'eau va induire une augmentation du nombre de CCN (ou d'IN) mais également une diminution du diamètre moyen des gouttelettes d'eau (ou des cristaux de glace). Ces variations vont entrainer deux effets dits indirects.
Le premier effet indirect, dit effet Twomey, décrit pour la première fois par Twomey (1974), correspond à une augmentation de la couverture nuageuse. Les gouttelettes d'eau aux diamètres plus petits induisent une diffusion accrue du rayonnement solaire et donc une augmentation de l'albédo du nuage (Twomey, 1977; Coakley et al., 1987; Kim and Cess, 1993). Cet effet conduit ainsi à la diminution de l'énergie solaire traversant le nuage avec pour conséquence un forçage radiatif négatif. Un second effet indirect a été observé par Albrecht (1989) qui lui a donné son nom. Cet effet s'exprime par un retard de précipitation induit par la diminution du diamètre moyen des gouttelettes d'eau nuageuses (Rosenfeld, 1999, 2000). La finalité de cette inhibition des précipitations est une augmentation de la durée de vie des nuages qui amplifie l'effet Twomey et donc le forçage radiatif négatif correspondant.
La résultante de ces deux effets indirects est donc un forçage radiatif négatif estimé entre -1,8 et -0,3 W/m^2 (Forster et al., 2007). Le forçage radiatif imputable aux aérosols est donc compris entre -2,7 et -0,4 W/m^2(Forster et al., 2007).

1.3.3 Focus sur les régions Arctiques

L'impact du changement climatique sur les régions arctiques est particulièrement important. Chapman and Walsh (2007) estiment, à partir d'un consensus de plusieurs modèles, une augmentation de la température moyenne dans ces régions entre 2.8 et 7.8°C d'ici 2100. Par ailleurs, la fonte de la couverture glaciaire induirait une augmentation du réchauffement du fait de la diminution de l'albédo (de 0,6 pour la glace à 0,10-0,15 pour l'eau), diminuant de cette manière la quantité d'énergie renvoyée vers l'espace. Un résumé des forçages radiatifs et des réponses en température induit par les différentes formes de pollution sur les régions comprises entre 60 et 90° Nord, en fonction de la saison est présenté dans la figure 1.3 (adapté de Quinn et al. (2008)).

Bien qu'éloignées des sources anthropiques de pollution, les régions arctiques ne sont donc pas épargnées par les processus du changement climatique. Ainsi, Lubin and Vogelmann (2006) et Garrett and Zhao (2006) ont montré que le transport vers l'Arctique de particules d'aérosols de pollution émises dans l'hémisphère nord

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

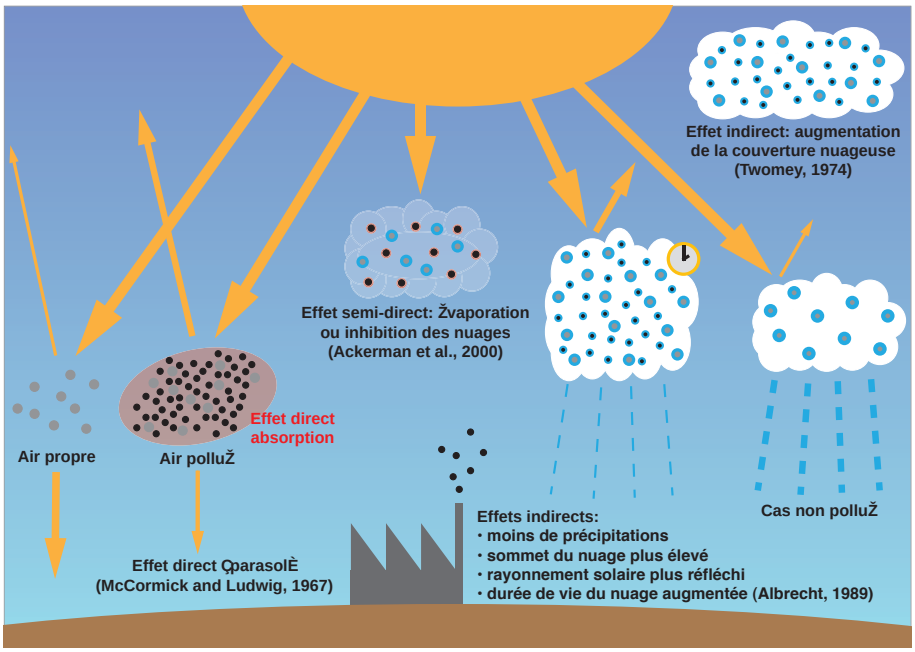


FIGURE *1.2 – Schéma symbolique des différents mécanismes de forçage radiatif liés aux aérosols de pollution. Les points gris correspondent à des particules non issues de la pollution alors que les points noirs représentent des particules issues d'émissions polluantes (anthropiques ou naturelles).*

conduisait à une augmentation de la diffusion des nuages arctiques avec pour conséquence l'augmentation du premier effet indirect des aérosols, l'effet Twomey. De plus, le transport de carbone suie dans les régions arctique contribue également au changement climatique, au travers de l'effet semi-direct dans l'atmosphère, puis en se déposant sur la glace ou la neige où il diminue l'albédo (Jacobson, 2004). Cet effet sur l'albédo de la neige a été quantifié entre 0 et 2 W/m^2 par Forster et al. (2007). Le transport vers les régions arctiques de particules d'aérosols de pollution conduit à la création d'une « brume arctique » dont les premières observations remontent aux années 1950 par des pilotes d'avion (Greenaway, 1950; Mitchell, 1957). Plus récemment, Dreiling and Friederich (1997) ont étudié ce phénomène avant que Quinn et al. (2007) dresse un résumé des connaissances actuelles. La brume arctique est composée principalement de particules de sulfate, de matière organique et, à des concentrations moindres, de carbone suie (Quinn et al., 2002). Une description des propriétés de cette brume arctique sera faite lors du chapitre 2 en parallèle des présentations des propriétés et des processus des aérosols. La figure 1.4 illustre le phénomène de brume arctique rencontré durant un vol de la campagne POLARCAT.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

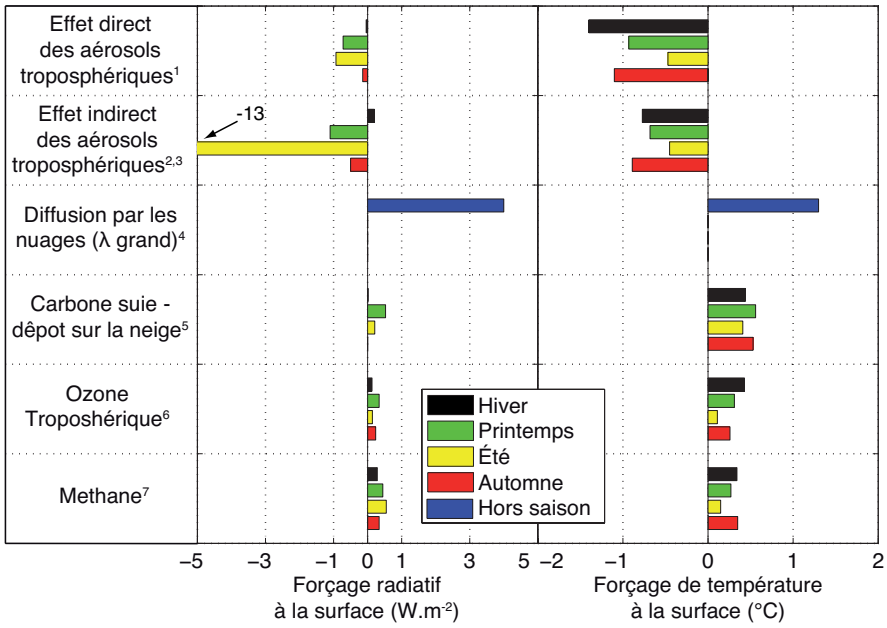


FIGURE *1.3 – Forçage radiatif et de température à la surface des régions comprises entre 60 et 90 ° nord (adapté de Quinn et al. (2008)) en fonction des saisons.* [1] *Valeurs issues des travaux de Koch and Hansen (2005).* [2] *Forçage radiatif de Menon and Rotstayn (2006).* [3] *Réponse en température de Hansen et al. (2007).* [4] *Basé sur Garrett and Zhao (2006).* [5] *Résultats de Flanner et al. (2007).* [6] *valeurs de Shindell et al. (2006).* [7] *valeurs de Shindell et al. (2005)*

1.4 Enjeux et objectifs de la thèse

Si un nombre conséquent d'études sur le transport de pollution en Arctique ont déjà été menées, elles l'ont été principalement au travers de la modélisation (Stohl, 2006), d'études de carottes de glace (McConnell et al., 2007) ou d'analyses de mesures effectuées au sol dans des stations multi-instrumentées comme Alert au Nunavut, Canada (Sirois and Barrie, 1999; Sharma et al., 2002), Barrow en Alaska, États-Unis (Quinn et al., 2002), ou Zeppelin au Spitzberg, Norvège (Eleftheriadis et al., 2009). à la fin des années 1990, dans le cadre du projet SHEBA, un bateau canadien a été volontairement fait prisonnier de la glace pour servir de station de mesure (Uttal et al., 2002) au dessus de laquelle des mesures aéroportées ont été effectuées (Curry et al., 2000). Des mesures aéroportées ont également été effectuées dans les années 1970 par Shaw (1975) et dans les années 1990 par Brock et al. (1990), Browell et al. (1992), et Dreiling and Friederich (1997). Plus récemment, des vols ont eu lieu avec

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012



FIGURE *1.4 – Photo d'une couche de pollution (brume arctique) prise durant un vol de la campagne POLARCAT printemps au dessus de la mer de Norvège (Photo : Atsushi Matsuki).*

pour objectif la caractérisation de la brume arctique autour du Spitzberg dans le cadre de la campagne ASTAR 2000 (Yamanouchi et al., 2005). Ces données sont très précieuses pour les modélisateurs qui sont particulièrement intéressés par les mesures in-situ pour implémenter leurs modèles et/ou les comparer avec les résultats de leurs travaux. Nous avons vu dans le paragraphe 1.3.3 que les modèles globaux de climat concluent unanimement sur le fait que les régions arctiques sont en moyenne plus touchées par le changement climatique que les autres parties du monde. De plus, les incertitudes sur l'effet des aérosols pollués transportés en Arctique sont encore très grandes et doivent être contraintes. Le premier enjeu de ces travaux de thèse sera donc de fournir un nouvelle base de données sur les propriétés des aérosols de pollution transportés en Arctique, obtenue à travers la campagne POLARCAT, et ainsi d'apporter à la communauté des modélisateurs des paramétrisations encore plus précises des propriétés physiques, chimiques et optiques de ces aérosols. Un deuxième enjeu sera de comprendre les processus de vieillissement et de déposition qui sont associés à ce transport de polluants vers l'Arctique, en tentant d'expliquer et de quantifier les parts qui disparaissent avant d'atteindre les régions arctiques et celles qui subsistent dans l'atmosphère arctique.
L'objectif de ces travaux de thèse sera donc, dans un premier temps, de fournir une base de donnée regroupant les propriétés phydique, chimique et optique des parti-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

cules d'aérosols de pollution transportés au nord de la scandinavie et au Groenland au travers des mesures in-situ effectuées durant les deux campagnes de mesure du projet POLARCAT. Pour ce faire, ces travaux s'appuiront sur les mesures effectuées à bord de l'ATR-42 par les équipes du LaMP pour les propriétés physique et optique et du MPI de Mainz, du LATMOS et de la FSO de Kanazawa pour les propriétés chimiques. L'organisation de la base de donnée sera basée sur l'origine continentale des panaches de pollution déterminée à l'aide du modèle lagrangien de retro-trajectoire FLEXPART. Cette approche ayant comme intérêt de fournir à la communauté des modélisateurs des points de comparaison avec les résutats issus des modélisations, les modèles pouvant ainsi être évalués, sur une région assez peu décrite par le passé et sur laquelle d'importantes incertitudes persisent. Le premier objectif de cette thèse est donc en partie dédié à la mise en forme et au traitement des données en vue de les transmettre à la communauté des modélisateurs.
Dans un second temps, toujours au travers des mesures in-situ aéroportées, ces travaux visent à améliorer la compréhension des processus qui sont associés aux transports de ces particules d'aérosols vers l'Arctique. De façon générale, le retrait de l'atmosphère des particules de pollution, au travers des processus de déposition (humide dans notre cas), sera étudié. Pour ce faire, l'analyse des rétro-trajectoire du modèle lagrangien HYSPLIT ainsi que des propriétés qui y sont associées sera effectué. Ce processus joue un rôle important sur la quantité de matière transportée jusqu'en Arctique et pouvant potentiellement impacter le climat de cette région, au travers des effets direct et indirects des aérosols et de la déposition du carbone suie sur la neige et/ou la glace. Enfin, l'évolution des propriétés des particules de pollution durant leur transport reste peu connue et sera partiellement contrainte durant ces travaux, à l'aide d'une étude de cas qui verra de façon originale l'analyse d'une même masse d'air au cours de 3 vols consécutifs, les paramétres liés à l'évolution de ce panache évoluant de façon cohérente sur la période temporelle considérée.

1.5 Plan du manuscrit

Ce manuscrit est principalement articulé autour des résultats présentés dans 2 articles publiés dans des revues scientifiques à comité de lecture : Quennehen et al. (2011) et Quennehen et al. (in prep.). Ainsi, à la suite de ce chapitre introductif, on trouvera dans le chapitre 2 une revue des connaissances fondamentales sur les aérosols, en termes de propriétés et de processus, avec une focalisation particulière sur les régions arctiques. Le chapitre 3 verra une présentation de la campagne de mesures POLARCAT ainsi que des outils d'analyses utilisés aux cours de ces travaux. Une

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

attention particulière sera portée sur les instruments de mesures des propriétés des particules d'aérosol qui ont été montés à bord de l'avion de recherche français (ATR-42). Dans le chapitre 4, les mesures de la campagne POLARCAT printemps seront présentées à travers l'étude du vieillissement d'un aérosol anthropique issu du continent européen, de ses propriétés et de ses impacts sur le climat arctique ainsi que ceux de masses d'air asiatiques, se basant principalement sur les résultats de Quennehen et al. (in prep.). Le chapitre 5 s'appuiera sur Quennehen et al. (2011) qui décrit les mesures de la campagne POLARCAT été et met en avant le processus de dépôt humide qui a lieu durant le transport de la pollution vers l'Arctique. Enfin, un résumé des conclusions issues de ce travail doctoral ainsi que les perspectives qu'il fournit seront donnés en fin de document.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Chapitre 2

Les aérosols : Propriétés, processus et observations - focus sur les régions Arctiques

Sommaire

Introduction **13**

2.1 Propriétés des aérosols **14**

2.1.1 Distribution en taille des particules 14

2.1.2 État de mélange de l'aérosol 15

2.1.3 Propriétés chimiques des aérosols 16

2.1.4 Propriétés optiques des aérosols 17

2.2 Les processus des aérosols **21**

2.2.1 Sources 21

2.2.2 Processus de vieillissement : coagulation et condensation . . . 23

2.2.3 Dépôt 24

2.3 Observations des aérosols **26**

2.3.1 Mesures in-situ 26

2.3.2 Télédétection 27

Introduction

Comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, une grande incertitude existe concernant l'impact des aérosols sur le bilan radiatif. Cette incertitude est liée à la grande variabilité des propriétés des particules d'aérosols en fonction de leurs sources, de leurs vieillissements ainsi que des différents processus de dépôt et qui sont faiblement quantifiés. Ces paramètres conduisent à une hétérogénéité des distributions tant horizontalement que verticalement et compliquent grandement l'étude des aérosols. Ce chapitre propose une description des connaissances fondamentales sur les aérosols à l'échelle globale et plus précisément dans les régions arctiques.

2.1 Propriétés des aérosols

2.1.1 Distribution en taille des particules

En général

La distribution en taille des particules d'aérosols couvre 5 ordres de grandeur allant du nanomètre à la dizaine de micromètres. En effet, les différents types et sources d'émissions, tout comme la variabilité de processus de vieillissement contribuent à la grande variabilité dans la taille et la forme de ces particules. La distribution en taille est un paramètre primordial du fait des nombreuses propriétés qui peuvent en être déduites, notamment concernant les propriétés optiques (diffusion et absorption de la lumière, présentées dans la section 2.1.4) et les processus de déposition (voir section 2.2.3). De façon générale, il est possible de modéliser la distribution en taille des aérosols au travers de lois log-normales. Du fait des différentes résolutions des instruments utilisés pour mesurer cette distribution, il est commun d'utiliser des distributions dont les concentrations sont normalisées par la largeur des canaux de mesures. De plus, la largeur de ces canaux est souvent équidistante logarithmiquement (comme c'est le cas pour le SMPS par exemple, voir section 3.2.2.1). Ainsi, pour représenter les distributions en taille, on utilisera des lois log-normales (Aitchison and Brown, 1957) du type :

$$N_i = \frac{N}{\log \sigma \sqrt{2\pi}} \exp \frac{-(\log d_i - \log d)^2}{2 \log \sigma^2} \tag{2.1}$$

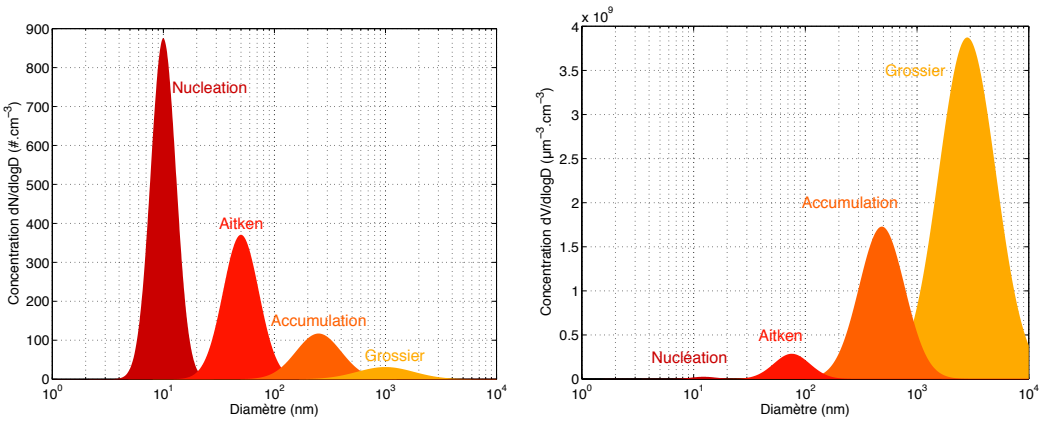
Où N_i et d_i représentent respectivement la concentration et le diamètre moyen de la classe i. Les paramètres de la distribution log-normales étant la concentration totale N, le diamètre moyen d et l'écart-type σ qui exprime la dispersion de la population. La façon la plus courante de représenter une distribution en taille d'aérosols atmosphériques correspond à une somme de lois log-normales, décrite pour la première fois par Whitby (1978). Chaque loi log-normale est associée à une gamme de tailles communément appelée « mode » et qui possède les caractéristiques qui sont regroupées dans le tableau 2.1.

La figure 2.1 (a) illustre une distribution standard en nombre où les quatres modes définis dans le tableau 2.1 sont représentés. Pour mettre en avant la distribution de la masse, il est également courant de représenter la distribution en volume, comme c'est le cas sur la figure 2.1 (b).

En Arctique

En Arctique, du fait de l'absence de sources, les concentrations de fond en particules d'aérosols sont faibles et principalement centrées sur le mode accumulation

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012



(a) (b)

FIGURE *2.1 – Exemples de distributions de particules d'aérosols représentées (a) en nombre et (b) en volume.*

Mode	Gamme de taille (nm)
Nucléation	5-20
Aitken	20-100
Accumulation	100-800
Grossier	$>$ 800

TABLEAU 2.1 – Définition des différents modes constituants une distribution en taille de particules d'aérosols.

(Seinfeld and Pandis, 1998). En revanche, lors d'épisodes de transport de pollution des régions subarctiques, i.e., de brume arctique, les concentrations augmentent significativement, comme l'ont montré plusieurs études menées par Heintzenberg (1980),Hillamo et al. (1993), Covert and Heintzenberg (1993), Tunved et al. (2003), et Engvall et al. (2009). Il est important de noter que la majorité des mesures a été effectuée à partir de stations au sol, empêchant ainsi de mesurer in-situ les propriétés de l'atmosphère en altitude.

2.1.2 État de mélange de l'aérosol

Du fait des différentes sources de particules et des processus qui ont lieu dans l'atmosphère, de nombreuses interactions ont lieu dans l'atmosphère conduisant à différents états de mélange. Ceux-ci décrivent la façon suivant laquelle les particules

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

d'aérosols issues de différentes sources se mêlent. Ainsi, on distinguera principalement deux états :

- **Le mélange externe** correspond au mélange de deux populations différentes d'aérosols qui n'interagissent pas entre elles. La composition de chaque particule n'étant reliée qu'à une seule source.
- **Le mélange interne** qualifie des particules dont les compositions chimiques sont dues à plusieurs origines, dans le cas de coagulation ou de réaction chimique à la surface des particules par exemple. Il est également courant de voir un composé chimique, à l'état de vapeur, condenser sur des particules d'aérosols. Dans ce cas précis, qui est observé notamment lors du transport sur de longues distances, les particules seront dites recouvertes.

La Figure 2.2 présente les états de mélange possibles pour des populations d'aérosols coexistantes dans l'atmosphère (inspiré de Seinfeld and Pandis (1998)).

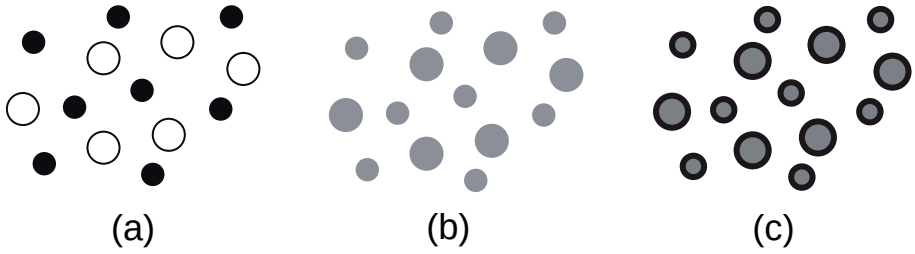


FIGURE *2.2 – États de mélange possibles entre deux populations d'aérosols (a) mélange externe, (b) mélange interne et (c) mélange interne avec recouvrement.*

Jacobson (2001) a montré que l'état de mélange du carbone suie, produit de la combustion de combustibles fossiles et de la biomasse, a un impact important sur les propriétés radiatives des particules. En effet, il a montré que plus le carbone suie était mélangé de façon interne, plus il contribuait positivement au forçage radiatif à tel point qu'il pourrait être le second plus important facteur (derrière le CO_2) de réchauffement climatique, compensant quasiment le forçage radiatif négatif induit par les autres particules d'aérosols anthropiques.

2.1.3 Propriétés chimiques des aérosols

En général

Fort logiquement, la composition chimique des aérosols est significativement influencée par la source d'émission. Chimiquement, on distingue 3 types de composés dans la composition des particules d'aérosols : les matières organique et inorganique

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

et le carbone élémentaire, aussi appelé carbone suie.
La matière inorganique se trouve dans les aérosols marins sous forme de sels (NaCl, KCl) ou dans les aérosols désertiques sous forme de silice et d'aluminium. Elle est également présente sous forme de sulfates, de nitrates et d'ammonium dans les régions polluées puisque ces espèces chimiques se retrouvent en général dans l'atmosphère suite à un rejet anthropique et viennent ensuite recouvrir des particules d'aérosols préexistantes par condensation. Ainsi, si les sels de mer et les poussières désertiques se retrouvent principalement dans le mode grossier (décrit dans la section 2.1.1), les sulfates, nitrates et ammonium sont eux localisés dans le mode accumulation (Seinfeld and Pandis, 1998). La matière organique elle, est à ce jour mal connue. Nombre de ses composés sont des carbones organiques issus d'émissions anthropiques ou naturelles (voir la section 2.2.1). Ces composés peuvent se mélanger par coagulation (ou condensation s'ils sont émis à l'état de gaz) avec les particules présentes.
Le carbone suie est presque intégralement composé d'atomes de carbone. On le retrouve dans les particules émises par la combustion de combustibles fossiles et les feux de biomasse. Il possède des propriétés très spécifiques, par exemple l'absorption de la lumière et une forte hydrophobicité.

En Arctique
Les aérosols transportés vers l'Arctique sont en général composés de carbone suie et de particules recouvertes par les carbones organiques et les sulfates émis par la combustion de combustibles fossiles et/ou les feux de biomasse, si bien que ces composés sont les principaux constituants du brouillard arctique (Quinn et al., 2008).

2.1.4 Propriétés optiques des aérosols

En général
L'interaction du rayonnement électromagnétique (comme par exemple le rayonnement solaire) avec les particules d'aérosols joue un rôle important dans le fonctionnement du climat. Les propriétés optiques des aérosols correspondent aux réponses des particules lors de leur interaction avec le rayonnement solaire. Ainsi, lorsqu'une particule est excitée par un rayon électromagnétique, elle réémet l'énergie dans toutes les directions, c'est la diffusion, et elle convertit parfois une partie de l'énergie en chaleur, c'est l'absorption. La somme de ces deux termes correspond à l'extinction due à l'aérosol.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

2.1.4.1 L'extinction de la lumière par les particules

Différents paramètres influencent l'intensité et le type de ces interactions. Ce sont principalement : la longueur d'onde du rayon incident λ, le diamètre de la particule D_p, sa forme et sa composition chimique (au travers de son indice de réfraction m). Trois régimes de diffusion principaux se distinguent à l'aide du paramètre de taille x (sans unité), définis selon la relation suivante (Bohren and Huffman, 1983) :

$$x = \frac{\pi D_p}{\lambda} \tag{2.2}$$

Lorsque la taille des particules est petite en comparaison de la longueur d'onde du rayon incident ($x \ll 1$), la diffusion est dominée par le régime de Rayleigh. Pour les longueurs d'onde dans le visible, cela correspond à $D_p \leq 0.1\ \mu m$. En régime Rayleigh, la diffusion est symétrique, autrement dit, la diffusion est la même dans toutes les directions d'un angle donné par rapport au plan d'incidence, comme on peut le voir sur la figure 2.3. L'intensité de diffusion P pour un angle θ est obtenue selon la relation suivante (Seinfeld and Pandis, 1998) :

$$P(\theta) = \frac{\lambda^2}{8\pi^2}\left(\frac{\pi D_p}{\lambda}\right)^6 \left|\frac{m^2-1}{m^2+2}\right| (1+\cos^2\theta) \tag{2.3}$$

Selon l'équation 2.3, on voit que la diffusion d'une sphère dont le diamètre est petit par rapport à la longueur d'onde est proportionnelle à λ^{-4}. La diffusion de Rayleigh est donc prédominante dans la troposphère libre et la stratosphère du fait de la faible concentration en particules. Ainsi, le rayonnement solaire est diffusé de façon plus efficace aux petites longueurs d'ondes (violet et bleu dans le spectre du visible), ce qui explique pourquoi le ciel nous apparaît bleu.

Dans le cas où la taille de la particule est proche de celle de la longueur d'onde ($x \approx 1$), il faut appliquer le régime de Mie (Mie, 1908). Le régime Rayleigh étant en fait une approximation de ce régime. En effet, la théorie mathématique proposée par Gustav Mie vise à calculer la valeur exacte des sections efficaces de diffusion et d'absorption en résolvant les équations d'ondes électromagnétiques pour une sphère. Une démonstration complète des calculs est donnée dans le livre de Bohren and Huffman (1983). On y trouve également un code informatique permettant de calculer les différents paramètres cités précédemment et qui est utilisé dans la suite de ces travaux, notamment dans la section 3.6. Dans le régime de Mie, on ne retrouve plus de symétrie entre la diffusion arrière et la diffusion avant puisque c'est cette dernière qui domine la distribution de la diffusion en fonction de l'angle (voir figure 2.3).

Enfin, lorsque le diamètre de la particule est très supérieur à la longueur d'onde ($x \gg 1$), ce sont les conditions de l'optique géométrique qui s'appliquent, c'est à dire

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

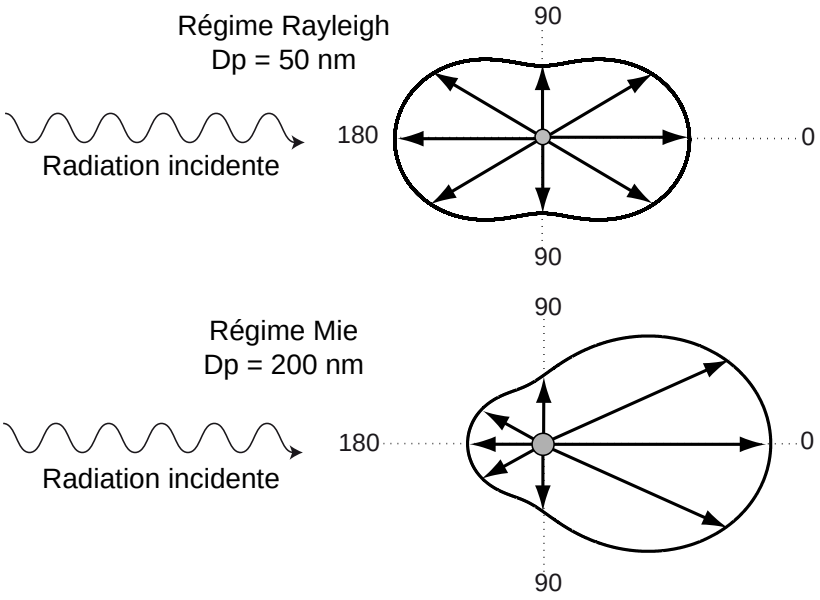


FIGURE *2.3 – Exemple de la distribution de la lumière diffusée en régime Rayleigh (en haut) et en régime de Mie (en bas). En régime Rayleigh, la lumière est diffusée de façon symétrique en avant ($\theta = 0^\circ$) et en arrière ($\theta = 180^\circ$) alors qu'en régime de Mie, la diffusion vers l'avant est de plus en plus prépondérante quand le diamètre de la particule augmente.*

la réflexion, la réfraction et la diffraction. A ce régime, la diffusion est dépendante de la taille et de l'orientation de la particule par rapport aux rayons incidents.

L'absorption résulte également de l'interaction entre les particules et le rayonnement solaire. L'absorption correspond à la partie du rayonnement qui n'est pas rediffusée par la particule. La partie complexe (k) de l'indice de réfraction symbolise la capacité d'absorption d'un élément. Ainsi, les poussières désertiques, dont k a été estimé entre 1,6 10^{-3} et 4.2 10^{-3} à une longueur d'onde de 550 nm (Petzold et al., 2009), n'absorbent quasiment pas la lumière au contraire du carbone suie dont k vaut entre 0,5 et 1,3, également à 550 nm, selon Adler et al. (2009). L'absorption, de la même façon que la diffusion, est dépendante de la longueur d'onde illuminant la particule ainsi que de son diamètre. La théorie sous-jacente à l'absorption est présentée dans la partie 3.2.2.2.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

2.1.4.2 Les coefficients d'extinction de la lumière

Des mesures de certaines grandeurs relatives aux propriétés optiques des particules d'aérosols seront présentées dans la suite de ces travaux (sections 3.2.2.2 et 3.2.2.3). C'est le cas des coefficients de diffusion et d'absorption de la lumière dont les étapes importantes du calcul sont décrites ci-dessous. Les équations 2.4, 2.5 et 2.6, présentées ci-dessous pour l'extinction, sont adaptables à la diffusion et à l'absorption.
Ainsi, il convient de définir les sections efficaces (en m^{-2}) de diffusion et d'absorption (respectivement C_{sca} et C_{abs}) dont la somme définie la section efficace d'extinction (C_{ext}). C_{ext} est l'aire dans laquelle le rayonnement et la particule interagissent et est dépendante de la longueur d'onde du rayonnement. A partir de cette section efficace, il est possible de définir une efficacité d'extinction (Q_{ext}, sans dimension) pour une particule selon la relation suivante :

$$Q_{ext} = \frac{C_{ext}}{A_p} \tag{2.4}$$

Où A_p représente la surface de la particule exposée au rayonnement, soit $A_p = \frac{\pi D_p}{4}$ pour une particule sphérique de diamètre D_p. Enfin, à partir de Q_{ext}, il est possible d'obtenir le coefficient d'extinction d'une particule ($\sigma_{ext,p}$, en m^{-1}) :

$$\sigma_{ext,p} = \frac{\pi D_p^2}{4} \cdot Q_{ext} \tag{2.5}$$

Dans le cas d'une population mono-dispersée de particules, le coefficient d'extinction correspond à celui d'une particule multiplié par le nombre de particules.

Si la population de particules est poly-dispersée (comme c'est toujours le cas en atmosphère réelle), le traitement se complexifie (Seinfeld and Pandis, 1998). Néanmoins, si la distance entre les particules est suffisamment grande par rapport à la taille des particules, il est possible de considérer que le coefficient d'extinction de la lumière des particules correspond à la somme des coefficients d'extinction de chaque particule. Pour une distribution en nombre présentée en $\frac{dN}{dlogD_p}$, le coefficient d'extinction sera donc :

$$\sigma_{ext} = \int_0^{+\infty} \frac{\pi D_p^2}{4} \cdot Q_{ext,p}(D_p) \cdot \frac{dN}{dlogD_p} dlogD_p \tag{2.6}$$

En Arctique

La brume arctique, composé de gaz et de particules de pollution transportées depuis les régions tempérées présente des propriétés optiques différentes de ce qui est habituellement mesuré en Arctique. Le carbone suie possède en effet un fort pouvoir

d'absorption (Adler et al., 2009), quand les sulfates et la matière organique sont connus pour diffuser abondamment. Ce n'est donc pas surprenant de voir que les coefficient d'absorption et de diffusion mesurés à Barrow, Alaska suivent le cycle saisonnier relatif à la présence de la brume arctique (Quinn et al., 2007). Par ailleurs, du fait de la forte inclinaison de la terre vis à vis des rayons du soleil aux latitudes arctiques, le trajet moyen des rayons lumineux à travers l'atmosphère est accru. En conséquence, les interactions entre rayons lumineux et particules sont plus nombreuses, la diffusion et/ou l'absorption étant bien entendu impactées relativement aux types de particules impliquées dans les interactions.

2.2 Les processus des aérosols

En général

La durée de vie des particules dans l'atmosphère peut varier de quelques jours dans la troposphère (définie comme la couche d'atmosphère qui va du sol à une altitude $\approx$ 11-12 km à nos latitudes et 7-8 km aux pôles) à quelques années dans la stratosphère (Seinfeld and Pandis, 1998; Jorgensen, 2003). Ainsi, si l'on se concentre sur la troposphère, la présence constante de particules d'aérosols en son sein, placées en regard de leurs courtes durées de vie conduit à penser à l'existence d'un cycle de vie des particules. Celui-ci est alimenté par différentes sources qui émettent des particules de façon régulière ou non, puis ces particules subissent des processus de vieillissement et finissent par être déposées ou lessivées.

2.2.1 Sources

Avant la révolution industrielle, l'origine des particules d'aérosols était presque uniquement naturelle. Ainsi, les poussières désertiques et les sels de mer soulevés par le vent tout comme l'érosion et de façon ponctuelle les feux de biomasse et les cendres volcaniques alimentent depuis toujours l'atmosphère en particules d'aérosols. Avec l'industrialisation massive, le développement des moyens de transport et la croissance exponentielle de la population mondiale, de nouvelles sources de particules ont fait leur apparition. Aux rejets des chauffages domestiques et des déchets, principales sources anthropiques de particules avant la révolution industrielle, sont venus s'ajouter ceux des moyens de transports (train, bateau, voiture puis avion), des industries et de l'agriculture pour atteindre aujourd'hui une part de la masse de particules globales émises estimée à 10% (IPCC, 2007) avec l'influence que l'on a pu voir dans le chapitre introductif.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Source	Estimation ($Tg.an^{-1}$)
NATURELLE	
Aérosols de type primaire	
Sels de mer	1000-6000
Poussières désertiques	1000-3000
Biomasse	16-72
Cendres volcaniques	30-33
Feux de biomasse (carbone suie)	3-14
Aérosols de type secondaire	
Sulfate produit par les gaz biogéniques	57-130
Sulfate produit par le SO_2 volcanique	12-21
Combustion de la biomasse	45-80
Carbone Organique Volatile (COV)	8-40
Oxydes nitreux (NO_x)	2-30
ANTHROPIQUE	
Aérosols de type primaire	
Poussières industrielles	40-130
Carbone Suie	3-13
Aérosols de type secondaire	
Sulfate produit par le SO_2	100-200
Nitrates produit par les NO_x	14-40
Carbone suie issu des combustibles fossiles	10-60

TABLEAU 2.2 – Estimation de l'intensité des principales sources de particules d'aérosols d'origine naturelle et anthropique, d'après IPCC (2007) et Delmas et al. (2005).

Au delà des origines anthropique ou naturelle, les émissions peuvent être qualifiées de primaires ou secondaires selon le processus dont elles sont issues. Ainsi, les sources primaires correspondent à une émission directe, sous forme liquide ou solide, des aérosols comme par exemple les cendres volcaniques, les sels de mer arrachés par le vent à la surface de l'océan, les poussières désertiques ou bien encore le carbone suie émis par les feux de biomasse. Par opposition, les émissions secondaires concernent les aérosols formés à la suite de réactions photo-chimiques complexes dans l'atmosphère conduisant à une conversion gaz-particule, processus aussi nommé nucléation. On parlera de nucléation homogène dans le cas d'agglomération de molécules de gaz dans une atmosphère sursaturée conduisant à un changement

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

de phase et à l'apparition d'une phase condensée (solide ou liquide). La nucléation hétérogène, quant à elle, requiert un support solide ou liquide de très petite taille ($D_p < 3\ nm$) appelé embryon sur lequel les gaz viennent condenser et ainsi faire croitre la taille de la particule (Delmas et al., 2005; Curtius, 2006). Les principaux gaz précurseurs de la nucléation (acide sulfurique, composés organiques volatiles entre autres) peuvent être d'origine naturelle (biomasse, volcan) ou anthropique (résidus de combustion, solvant). Un résumé des principales sources d'aérosols se trouve dans le tableau 2.2.

En Arctique

En Arctique, du fait du faible peuplement et du peu de transports, les émissions anthropiques sont très faibles. Ainsi, les principales sources de particules d'aérosols sont primaires, il s'agit de sels de mer et de sulfates (Seinfeld and Pandis, 1998). Une quantité non négligeable des particules mesurées en Arctique est transportée depuis les régions tempérées de l'hémisphère nord (Asie, Amérique du Nord et Europe). Dans ce cas précis, les sources sont majoritairement la combustion des combustibles fossiles et les feux de biomasses ainsi que des poussières désertiques.

2.2.2 Processus de vieillissement : coagulation et condensation

Après l'émission des particules d'aérosols, plusieurs processus dit de vieillissement peuvent entrer en action. En effet, les interactions avec les autres particules et la phase gaz contribuent à modifier les propriétés initiales des particules d'aérosol : taille, composition chimique et propriétés radiatives.

La coagulation est un processus dynamique qui voit l'adhésion d'une particule sur une (ou plusieurs) autre(s). Les processus à l'origine de ce phénomène sont thermiques (mouvement brownien) ou dynamiques (turbulence). Ces deux processus induisent un mouvement des particules qui y sont soumises et augmentent la probabilité de collision, condition indispensable à la coagulation. La conséquence directe de la coagulation sur une distribution de particules est l'augmentation du diamètre moyen couplé à une diminution du nombre total de particules ; en revanche, le volume total n'est pas modifié. L'importance du processus de coagulation est influencée par la concentration en particules qui peut être reliée à la distance moyenne entre les particules et par leurs diamètres. De plus, des particules de petites tailles coaguleront plus facilement avec de grosses particules qu'avec des particules de même taille. Enfin, notamment en raison de l'influence de la concentration, mais du fait également des propriétés de mobilité des particules, la coagulation est principalement efficace

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

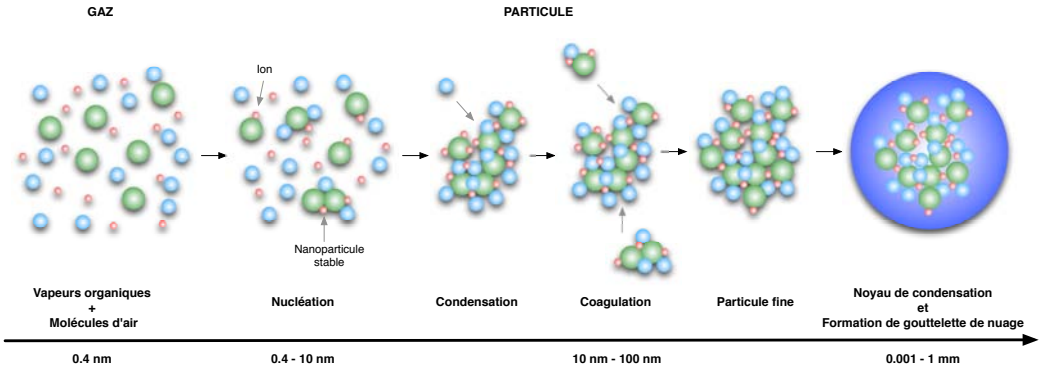


FIGURE *2.4 – Formation secondaire et évolution d'une particule d'aérosol suivant les processus de coagulation et de condensation (adapté de Delmas et al. (2005)). Le processus de condensation est ici présenté uniquement pour la phase de nucléation homogène mais il entre en jeu également dans la croissance des particules de diamètres* $D_p \geq 100$ *nm.*

pour les particules de petits diamètres (Seinfeld and Pandis, 1998).

Le processus de condensation peut être relié à celui entrant en jeu lors de la nucléation homogène (section 2.2.1). En effet, tout comme les gaz condensent sur les embryons, ils condensent ici sur les particules d'aérosols déjà formées. Pour une distribution de particules, ce processus, tout comme la coagulation, conduit à une augmentation du diamètre moyen des particules mais la concentration totale n'est pas modifiée et le volume total augmente. La figure 2.4, inspiré de Delmas et al. (2005), présente les processus de nucléation, coagulation et condensation à l'échelle d'une particule alors que la figure 2.5 met en avant l'impact de la coagulation et de la condensation sur une distribution monomodale de particules d'aérosols.

2.2.3 Dépôt

En général

Après avoir été émis dans l'atmosphère et y avoir évolué, le cycle de vie des particules d'aérosols dans l'atmosphère se termine par un dépôt à la surface de la Terre. Il convient de distinguer le dépôt sec du dépôt humide.

Le dépôt sec intervient en atmosphère non saturée, *i.e.*, à l'extérieur des nuages. Les particules d'aérosols dont la taille et la masse ne leur permettent pas de rester en suspension dans l'atmosphère sédimentent sous l'effet de la gravité ou du mouvement brownien. Les particules qui sont le plus sensible à la gravité ont un diamètre $D_p > 2$ μm alors que les particules de diamètre $D_p < 0.05$ μm sont

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

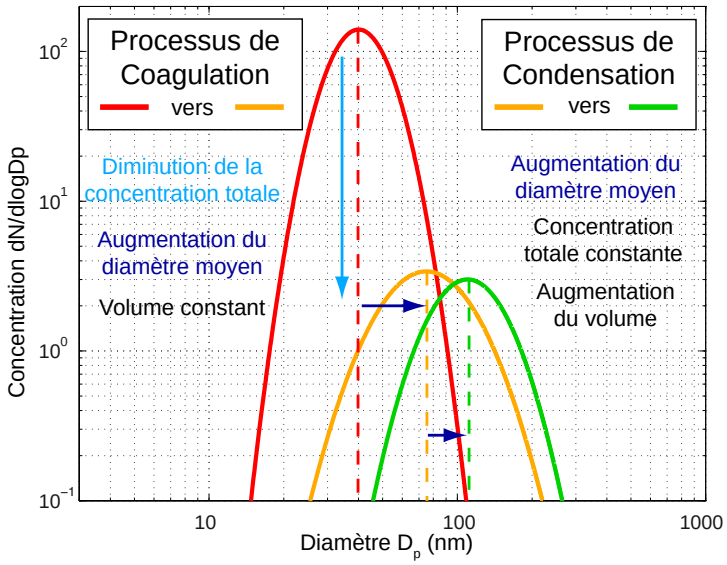


FIGURE *2.5 – Exemple de l'évolution d'une distribution en nombre de particules d'aérosols avec le temps. La distribution jaune est obtenue via coagulation des particules de la distribution rouge alors que la distribution verte est obtenue via condensation de gaz sur la distribution jaune.*

déposées par l'action du mouvement brownien. Les particules comprises entre 0.05 et 2 μm ne sont pas soumises à ces deux processus de dépôt et ont par conséquent une durée de vie dans l'atmosphère bien supérieure, pouvant atteindre une vingtaine de jours (Seinfeld and Pandis, 1998).

Le dépôt humide, aussi appelé lessivage, est relié aux précipitations. En effet, les particules d'aérosols sont, en tant que noyau de condensation (CCN) ou noyau glacogène (IN), indispensables à la formation des hydrométéores que sont les gouttelettes d'eau ou les cristaux de glace constituant les nuages (Pruppacher and Klett, 1997). Lorsque les hydrométéores précipitent à la surface de la planète, les CCN et/ou IN sont également précipités. Lors de leur présence dans le nuage, les hydrométéores ont une certaines capacité à capter les aérosols interstitiels et donc, après précipitation, à les faire quitter l'atmosphère. Enfin, les hydrométéores qui précipitent captent également une partie des particules d'aérosols qui se trouvent sous le nuage en les collectant durant leur chute, pour au final les déposer à la surface de la Terre (Seinfeld and Pandis, 1998).

En Arctique

En Arctique, le dépôt de particules d'aérosol, plus particulièrement lorsqu'il s'agit

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

de carbone suie, est un enjeu de première importance. En effet, la déposition du carbone suie sur la neige ou la glace réduit considérablement leur albedo et conduit à une augmentation de la quantité d'énergie absorb'ee à la surface, accélérant les processus de fonte de la glace et de la neige (Jacobson, 2004).

2.3 Observations des aérosols

Afin d'observer les propriétés des particules d'aérosols, diverses stratégies d'observations sont utilisées. Ainsi, il est possible d'observer les particules qui sont dans l'environnement direct des instruments, on parlera alors de mesures in-situ, celles-ci pouvant se faire, du point de vue de l'atmosphère, à partir de stations au sol ou de campagnes de mesure aéroportées. Il existe également des instruments capables de mesurer à distance certaines propriétés des particules d'aérosols, le terme de télédétection est alors approprié.

2.3.1 Mesures in-situ

Les mesures in-situ sont la base de la recherche atmosphérique. En effet, ces mesures sont indispensables pour la validation des mesures à distance et des modèles. En effet, seule une mesure directe, avec un instrument correctement calibré, permet de connaitre la réelle composition de l'atmosphère à des instants et localisations donnés.

2.3.1.1 Stations au sol

L'importante variabilité spatiale de l'atmosphère fait que de nombreuses stations mesurant ses propriétés ont été installées en diverses localisations de la planète. Ainsi, par exemple, les propriétés de l'atmosphère marine peuvent être analysées (O'Dowd et al., 2010), tout comme celles à moyenne altitude (Venzac et al., 2009), haute altitude (Boulon et al., 2010) et très haute altitude Venzac et al. (2008). Ces stations, souvent situées en des lieux remarquables et difficiles d'accès, regroupent de nombreux instruments qui mesurent les différentes phases composant l'atmosphère et plus particulièrement les gaz et les particules d'aérosols.
On retrouve ce type de station en Arctique et plus particulièrement à Alert et Eureka au Nunavut, Canada (Sirois and Barrie, 1999; Sharma et al., 2002; Farahani et al., 2007), Barrow en Alaska, États-Unis (Quinn et al., 2002), ou Zeppelin au Spitzberg, Norvège (Eleftheriadis et al., 2009). Ces stations, véritables bases avancées de la recherche atmosphérique (entre autre) en Arctique, fournissent des séries de données

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

sur le long terme et permettent de fournir les tendances des concentrations de fond en gaz et particules sur plusieurs décennies. Dans le cadre d'un changement climatique en Arctique, ces données sont particulièrement précieuses puisqu'elles sont les seules à être mesurées directement et de façon régulière.

2.3.1.2 Campagnes aéroportées

La localisation des stations de mesure en surface peut être inadaptée pour la mesure de phénomènes ayant lieu à plus haute altitude. L'utilisation de campagnes de mesures aéroportées devient alors primordiale pour mesurer les évolutions et caractéristiques de l'atmosphère arctique. La région Arctique étant particulièrement difficile d'accès, peu de campagnes de mesures y ont été réalisées . Ainsi dans les années 1970, Shaw (1975) a mesuré la distribution verticale des aérosols au dessus de la station de Barrow en Alaska ; dans les années 1980, Schnell (1984) visaient, dans le cadre de la campagne AGASP, à caractériser les propriétés de la brume arctique, suivis par Brock et al. (1990), Browell et al. (1992), et Dreiling and Friederich (1997) dans les années 1990. Enfin, dans les années 2000, les campagnes ASTAR 2000 (Yamanouchi et al., 2005) et 2004 (Engvall et al., 2008) ont également permis de contribuer aux connaissances de la brume arctique. Les campagnes aéroportées, au même titre que les stations au sol, sont indispensables à la recherche atmosphérique qui peut s'appuyer sur ces mesures directes pour valider et inter-comparer des résultats issus de la modélisation ou de la télédétection.

2.3.2 Télédétection

La télédétection consiste en une mesure indirecte et à distance des propriétés de certains constituants de l'atmosphère. La mesure est effectuée à l'aide d'une onde émise dans une direction donnée et dont l'interaction avec les constituants de l'atmosphère génère une onde rétrodiffusée. C'est l'intensité de cette rétrodiffusion qui va permettre de déterminer les propriétés des constituants atmosphériques rencontrés. En fonction de la longueur d'onde utilisée, les interactions ne seront pas les mêmes. Ainsi, le radar (radio detection and ranging), émettant des ondes de longueurs d'onde centimétriques, sera utilisé pour la détection des hydrométéores quand le lidar (light detection and ranging), dont la longueur d'onde est d'une centaine de nanomètre, verra son signal rétrodiffusé influencé par les aérosols.
Le DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy), à travers l'étude passive des spectres de diffusion d'une gamme de longueur d'onde pouvant aller de l'UV au proche infrarouge selon les modèles, permet la détection de diverses espèces chi-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

miques présentes en phase gaz dans l'atmosphère telles que BrO, ClO, le dioxyde d'azote (NO_2), O_3, le dioxyde de soufre (SO_2), le formaldéhyde ou encore l'eau (H_2O). La télédétection offre ainsi la possibilité de sonder l'atmosphère depuis un point au sol (Thrane and von Zahn, 1995; Tridon et al., 2011; Hervo et al., 2011) ou à bord d'un avion (Protat et al., 2004; De Villiers et al., 2010; Merlaud et al., 2011). Mais c'est depuis l'espace que la télédétection montre tout son intérêt. En effet, montés à bord de satellites dédiés à l'étude de l'environnement (comme par exemple la constellation de satellites lancée par la NASA, l'A-Train), ces outils permettent d'obtenir des mesures chaque jour sur l'ensemble du globe, contribuant ainsi à une meilleure connaissance de la répartition spatiale des propriétés de l'atmosphère. Néanmoins, ces mesures depuis l'espace, tout comme celles depuis le sol ou un avion, doivent être validées à l'aide de mesures in-situ. Pour exemples, on peut citer le satellite CloudSat, sur lequel est monté l'instrument « Cloud Profiling Radar » (Stephens et al., 2002), le satellite CALIPSO, qui est équipé du lidar CALIOP (Cloud Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization, Winker et al. (2003)) et le satellite ENVISAT, qui transporte l'instrument SCIAMACHY (Scanning, Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CartograpHY, Burrows et al. (1995)). Ces instruments ont d'ors et déjà permis de sonder les propriétés des régions arctiques, les travaux de de Boer et al. (2008), De Villiers et al. (2010) et von Savigny et al. (2009) pouvant être cités en exemples.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Chapitre 3

Le projet POLARCAT : mesures in-situ des aérosols arctiques et modélisation du transport

Sommaire

Introduction **29**
3.1 Le projet POLARCAT **30**
3.2 Les mesures à bord de l'ATR-42 . . . . . **31**
3.2.1 Les veines de prélèvement 31
3.2.2 Les instruments de mesures couplés aux veines CVI/CAI . . . 33
3.3 Modélisation Lagrangienne du transport de la pollution vers l'Arctique **40**

Introduction

Ce chapitre propose une description de la campagne POLARCAT dont sont issues les mesures utilisées lors de ce travail ainsi que des multiples instruments, constituants de la plateforme aéroportée du LaMP ou appartenant à d'autres laboratoires, qui ont servi à l'acquisition des données. Enfin, une présentation du modèle Lagrangien de transport FLEXPART, dont les résultats sont primordiaux en vue de déterminer les origines des masses d'air échantillonnées, est faite dans la dernière partie de ce chapitre.

3.1 Le projet POLARCAT



Les régions arctiques sont des lieux reculés où se sont développées des biodiversités très spécifiques subissant un climat qui leur est propre. C'est pourquoi, dès les années 1880, le monde scientifique s'y est intéressé au travers de la première année polaire internationale (API), lancée par une douzaine de pays et qui vit 13 expéditions s'avancer vers les régions arctiques. Près d'un siècle plus tard, la quatrième API était initiée avec pour objectifs, entre autres, de quantifier l'impact sur les régions arctiques des activités humaines et d'approcher une meilleur connaissance des différents compartiments de ces régions.



C'est dans ce cadre qu'a été lancé le projet POLARCAT (POLar study using Aircraft, Remote sensing, surface measurements and models, of Climate, chemistry, Aerosol and Transport), dont les objectifs étaient l'étude et l'amélioration des connaissances de la communauté scientifique dans le domaine du transport sur de longue distance de polluants à courte durée de vie (gaz et particules) vers les régions arctiques. Pour atteindre ces objectifs, 2 campagnes de mesures aéroportées ont été menées en avril et juillet 2008 respectivement autour de Kiruna en Suède et Kangerlussuaq au Groenland, sous le nom de POLARCAT-France printemps et POLARCAT-France été (voir figure 3.1).

Ce projet a été lancé conjointement à plusieurs autres, ainsi des vols ont été effectués avec le Falcon 20 Allemand dans le cadre de la campagne POLARCAT-GRACE (Roiger et al., 2011) en parallèle de la campagne POLARCAT-France été au Groenland. Les campagnes de mesures américaines ARCPAC (Brock et al., 2011) et ARCTAS (Jacob et al., 2010) ont sondé l'atmosphère arctique au printemps et en été 2008 à l'aide du DC8, du P3 et du B200 de la NASA et du WP-3D de la NOAA, chacune autour de Fairbanks, Alaska, pendant que la campagne maritime ICEALOT parcourait l'océan Arctique en mai 2008 à bord du navire de la NOAA. Enfin, la campagne de mesure YAK-AEROSIB, réalisée sur l'Antonov 30 de l'institut d'optique atmosphérique de Tomsk en collaboration avec le LSCE, visait à caractériser les propriétés des gaz et particules issus de feux de biomasse en Russie et transportés en Sibérie (Paris et al., 2008). À ces campagnes ponctuelles s'ajoutent des mesures continues, issues des stations multi-instrumentées installées en Arctique et déjà mentionnées précédemment (Barrow, Ny-Alesund, Alert) et des instruments montés sur des satellites comme MODIS, CALIPSO (De Villiers et al., 2010) et IASI (Pommier et al., 2010) qui passent plusieurs fois par jour au dessus des régions arctiques. La

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

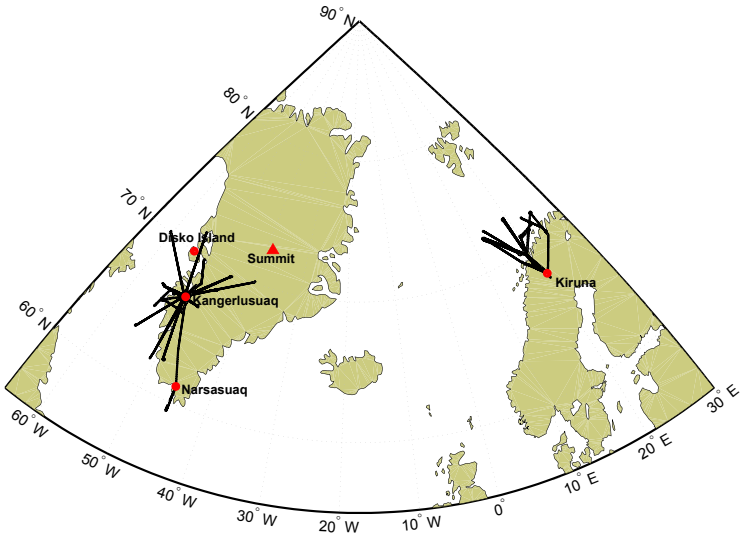


FIGURE *3.1 – Présentation des 24 vols réalisés dans le cadre de la campagne POLARCAT-France.*

figure 3.2 présente les zones des vols (et de navigation) des différentes campagnes de mesures effectuées dans le cadre de POLARCAT et des projets parallèles.

3.2 Les mesures à bord de l'ATR-42



L'avion de recherche français ATR-42 est géré par l'équipe de SAFIRE (Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement). Il peut embarquer à son bord 8 racks d'instruments et 8 scientifiques naviguant. Des instruments sont installés sous les ailes et sur la carlingue de l'avion tandis que des veines de prélèvement permettent de faire pénétrer une partie de l'air atmosphérique dans les instruments situés à l'intérieur de l'avion. Les instruments équipés sur l'ATR-42 venaient de la plateforme aéroportée du LaMP, du CNRM à Toulouse, du LATMOS à Paris et du MPI à Mayence.

3.2.1 Les veines de prélèvement

Afin d'alimenter en air atmosphérique les instruments à l'intérieur du fuselage, des veines de prélèvement sont installées à l'extérieur de l'avion, jouant ainsi le rôle

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012



FIGURE *3.2 – Localisation des zones géographiques dans lesquelles ont eu lieu les campagnes de mesures associées au projet POLARCAT. Sont également indiquées les 3 stations de mesures au sol (carte adaptée de K.S. Law).*

d'interface entre l'atmosphère et les instruments. La campagne de printemps avait pour objectif, entre autres, l'étude des nuages, des particules d'aérosols et de leurs interactions alors que la campagne d'été visait uniquement l'étude des propriétés atmosphériques en ciel clair. C'est pourquoi lors de ces deux campagnes, deux veines de prélèvement différentes ont été utilisées.

Au printemps, la veine CVI (Couterflow virtual impactor, impacteur virtuel à contreflux, décrite par Schwarzenboeck et al. (2000)) a été utilisée. En atmosphère nuageuse, un contreflux est activé afin de créer un impacteur virtuel par lequel les particules interstitielles sont exclues, permettant de n'échantillonner que les hydrométéores. En ciel clair, elle permet d'échantillonner les particules d'aérosols de façon isocinétique. Une photo de la veine CVI est présentée dans la figure 3.3(a).
Lors de la campagne d'été, la veine CAI (Community Aerosol Inlet, Veine aérosol communautaire, identique à celle décrite par McNaughton et al. (2007)) était montée sur l'ATR-42. Cette dernière permet un échantillonnage isocinétique des particules d'aérosols jusqu'à un diamètre d'environ 5 μm (Gomes, communication personnelle). Une photo de la veine CAI est montrée dans la figure 3.3(b).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012



(a) (b)

FIGURE *3.3 – Photos des veines de prélèvement CVI (a) et CAI (b) utilisées respectivement pour les campagnes POLARCAT de printemps et d'été (photos par A. Matsuki)*

3.2.2 Les instruments de mesures couplés aux veines CVI/CAI

La partie aérosol de la plateforme de mesure aéroportée du LaMP est composée d'instruments bénéficiant des derniers développements technologiques les concernant. Ils ont été conçus et/ou adaptés à la mesure des propriétés physiques et optiques des particules d'aérosols depuis l'avion, notamment en milieu arctique.

3.2.2.1 Mesure de la granulométrie

La première mesure à prendre en compte est la concentration totale en particules d'aérosols dans l'atmosphère traversée. Pour ce faire, des CPC (Condensation Particle Counter, compteur de particules de condensation, TSI, voir figure 3.4) sont utilisés. Le CPC 3010 de la plateforme aéroportée du LaMP permet de mesurer la concentration totale en particules de diamètres $D_p > 10\ nm$. Pour être comptées par le CPC 3010, les particules d'aérosols sont dirigées vers un volume sursaturé en butanol. De ce fait, les particules sont activées en gouttelettes de butanol qui peuvent ensuite être comptées à l'aide d'un laser dont le faisceau, s'il interagit avec une gouttelette, est partiellement dévié et collecté par une photodiode. Le CNRM (Centre National de Recherche en Météorologie, Toulouse, France) a monté sur l'ATR-42 un CPC 3025 qui fonctionne de la même manière que le CPC 3010 mais qui mesure la concentration totale en particules dont le diamètre est supérieur à 3 nm.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

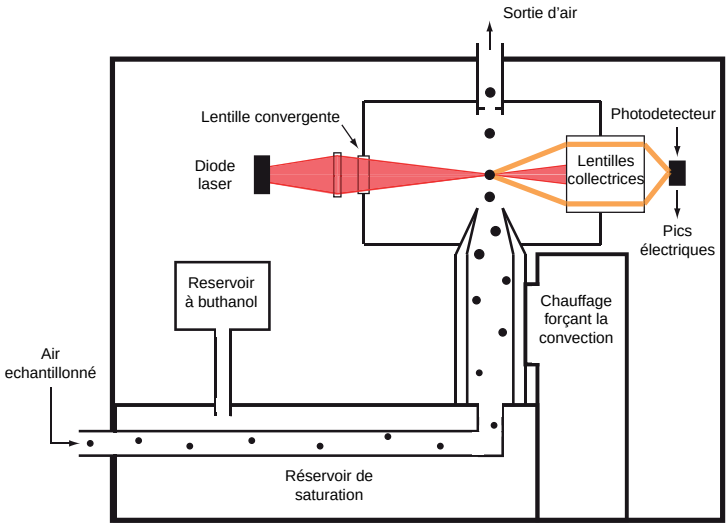


FIGURE *3.4 – Schéma de fonctionnement d'un CPC 3010 (adapté de Sem (2002)).*

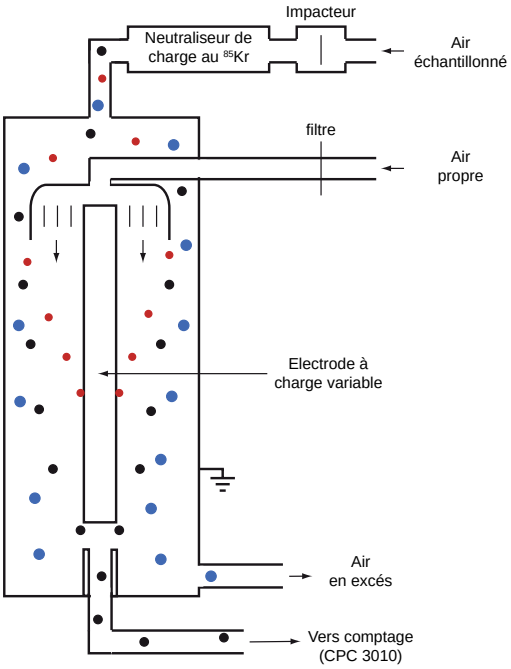


FIGURE *3.5 – schéma du fonctionnement d'une colonne DMA (adapté de Hinds (1999)).*

Afin de connaître les distributions en taille des particules d'aérosols, un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer, Granulomètre à mobilité de particules), composé d'un assécheur pour maintenir l'humidité relative en dessous de 15%, d'une colonne DMA (Diffential Mobility Analyser, Analyseur différentiel de mobilité,fabriqué au LaMP par Villani et al. (2008) et présenté dans la figure 3.5) et d'un CPC, mesure les particules de diamètre compris entre 20 et 467 nm sur 88 canaux. Le rôle de la colonne DMA est de sélectionner les particules en fonction de leur taille. Cette sélection s'effectue à l'aide de la mobilité électrique Z_p des particules qui dépend de leur charge et de leur diamètre D_p selon la relation suivante :

$$Z_p = \frac{neC_c}{3\pi\eta D_p}. \tag{3.1}$$

Dans l'équation 3.1, n correspond au nombre de charges élémentaires e sur la par-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

ticule, C_c est le facteur de correction de Cunningham qui prend en compte les effets de traînées sur les petites particules, enfin, η représente la viscosité de l'air (Willeke and Baron, 2001). Les particules qui pénètrent dans la colonne sont neutralisées puis rechargées avec une distribution de charges connues, à l'aide d'une source radioactive de Krypton 85 (^{85}Kr). Une fois les particules sélectionnées en fonction de leur taille, il ne reste plus au CPC qu'à les compter.

En ce qui concerne les particules d'aérosols de diamètre supérieur à 467 nm, elles sont mesurées à l'aide de deux OPC (Optical Particle Counter, Compteur optique de particules) :

- Le GRIMM (modèle 1.108, Grimm technologies) monté dans un rack à l'intérieur du fuselage de l'avion et qui mesure les particules dont les diamètres sont compris entre 0.1 et 2 μm sur 8 canaux,
- le PCASP (Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe, Sonde d'aérosol spectrométrique à cavité passive, DMT), situé sous l'aile de l'avion et qui compte les particules sur 30 canaux allant de 0.1 à 3 μm. Le principe de mesure du PCASP est présenté dans la figure 3.6.

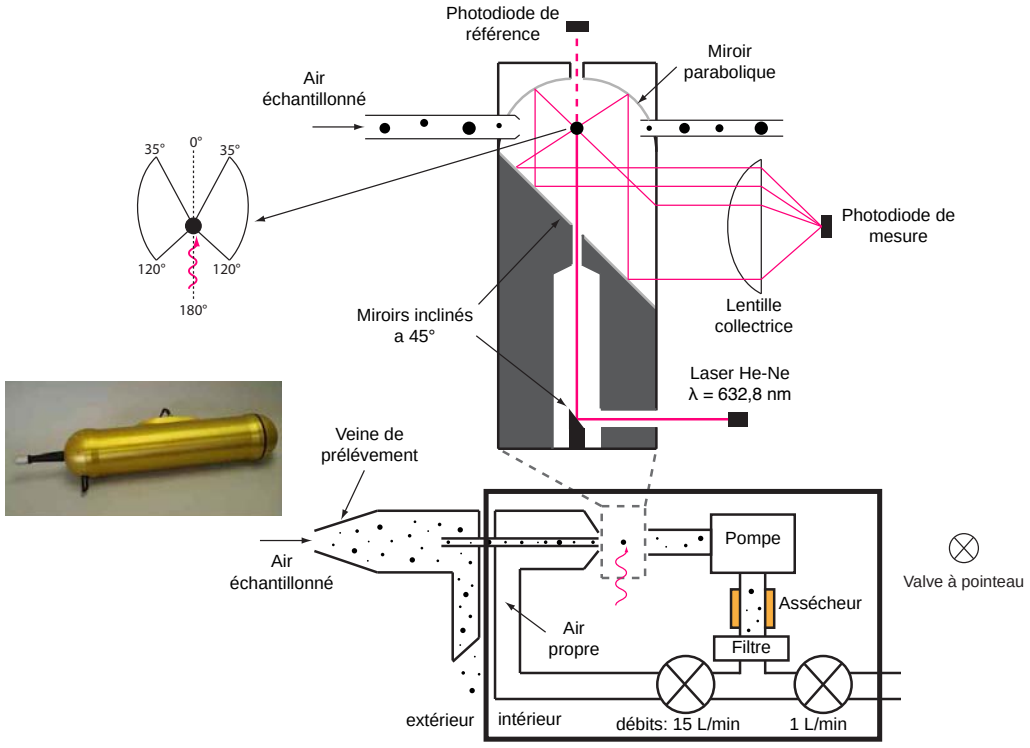


FIGURE *3.6 – Schéma de fonctionnement du PCASP 100-X (adapté de la documentation fournie avec l'instrument par DMT)*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Concrètement, le flux d'aérosols est dilué afin de permettre aux particules d'être isolées les unes des autres, puis chaque particule, lorsqu'elle passe dans la cavité de mesure, est illuminée par un rayonnement laser de 633 nm pour le PCASP et 780 nm pour le GRIMM. Comme expliqué dans la section 2.1.4, une particule irradiée par un rayonnement électromagnétique le réémet dans toutes les directions (la diffusion). C'est donc cette diffusion qui va être mesurée par l'OPC dans la gamme d'angle 35-120° pour le PCASP et 60-120° pour le GRIMM. Comme mentionné dans la section 2.1.4, la diffusion de la lumière est dépendante de la taille de la particule certes, mais également de sa composition chimique et de ses propriétés de diffusion et d'absorption, autrement dit, de son indice de réfraction. Les OPC sont calibrés à partir de billes de latex nano et micrométriques dont l'indice de réfraction est 1,59. Ainsi, à partir de la distribution mesurée par l'OPC et de la théorie de Mie (on est ici dans le cas où le paramètre de taille $x \approx \lambda$), il est possible de remonter aux propriétés de diffusion et d'absorption de la distribution. De plus, à l'aide des coefficients de diffusion et d'absorption de la lumière mesurés par des instruments indépendants (le nephélométre pour la diffusion, voir section 3.2.2.3 et le PSAP pour l'absorption, voir section 3.2.2.2) il est également possible de remonter à l'indice de réfraction moyen k de la distribution de particules mais aussi et surtout à leur diamètre géométrique. Un schéma de l'inversion qui a été mise en place dans le cadre de cette thèse et utilisée pour remonter aux diamètres géométriques est présenté dans la figure 3.7.

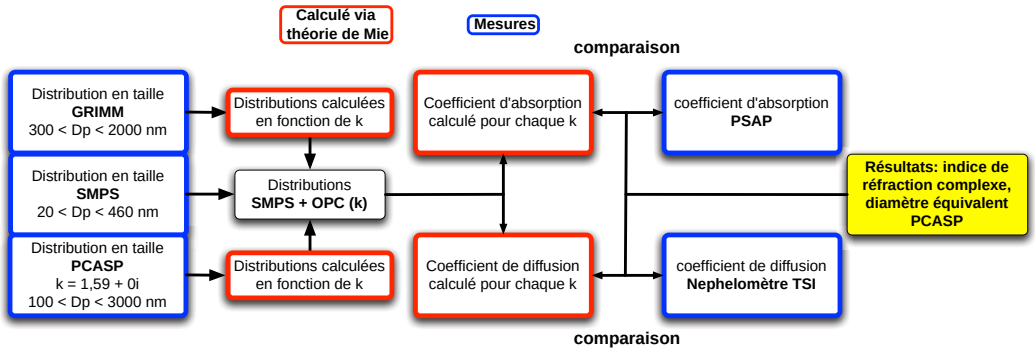


FIGURE *3.7 – Algorithme schématisé de la correction des mesures des OPCs à l'aide des coefficients de diffusion et d'absorption mesurés par le nephélométre et le PSAP.*

Afin d'étudier la volatilité des particules d'aérosols, deux instruments mesurant la granulométrie des particules d'aérosols (SMPS et OPC Grimm, appelé dans la suite de ces travaux NVSMPS et NVOPC) ont été placés sous le flux d'un four chauffant les particules échantillonnées à 280°C. Ce système permet de connaître la distribution en taille des particules réfractaires et ainsi d'en déduire l'état de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

mélange des particules tout en donnant des informations sur le recouvrement des particules réfractaires par de la matière volatile. Néanmoins, il est important de noter que, du fait de l'indépendance de ce système vis à vis du SMPS et de l'OPC mesurant les particules à température ambiante, il n'est pas possible de déterminer la volatilité d'une particule de diamètre donné. Afin de s'assurer que les deux systèmes mesurent bien les particules avec la même efficacité, des inter-comparaisons ont été régulièrement menées, avant les vols, à température ambiante pour les deux systèmes.

3.2.2.2 Mesures des propriétés optiques

L'absorption des particules d'aérosols prélevées est mesurée par le PSAP (Particle Soot Absorption Photometer, Photomètre de mesure de l'absorption des particules de suie, Radiance research, présenté par Bond et al. (1999), figure 3.8). Le PSAP est composé d'un laser émettant à 565 nm qui éclaire un filtre sur lequel viennent se déposer les particules mesurées. Selon la loi de Beer-Lambert, l'absorbance Ab à une longueur d'onde λ s'obtient selon la relation suivante :

$$Ab_\lambda = -\log\left(\frac{I}{I_0}\right) \tag{3.2}$$

Où I_0 et I correspondent respectivement aux intensités lumineuses incidente et transmise. Le calcul du coefficient d'absorption σ_{abs} est basé sur la décroissance de la transmittance du signal laser au fur et à mesure de l'accumulation de particules absorbantes sur le filtre. σ_{abs} est donc obtenu par la relation suivante :

$$\sigma_{abs} = \frac{A}{V} \cdot \log\left(\frac{I}{I_0}\right) \tag{3.3}$$

avec A l'aire du laser illuminant les particules déposées sur le filtre et V le volume d'air échantillonné.

Un nephélomètre (modèle 3563, TSI, figure 3.9) appartenant au CNRM et mesurant la diffusion de la lumière par les particules à 3 longueurs d'onde différentes (λ = 450, 550 et 700 nm) était également embarqué à bord de l'avion. Les particules qui pénètrent dans l'instrument sont illuminées par une lampe qui couvre l'ensemble du spectre visible. L'énergie rediffusée par les particules est ensuite collectée et mesurée par trois photomultiplicateurs. Cet instrument, disponible dans de nombreux laboratoires à travers le monde à fait l'objet de plusieurs intercomparaisons, citons par exemple la plus récente présentée par Heintzenberg et al. (2005).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

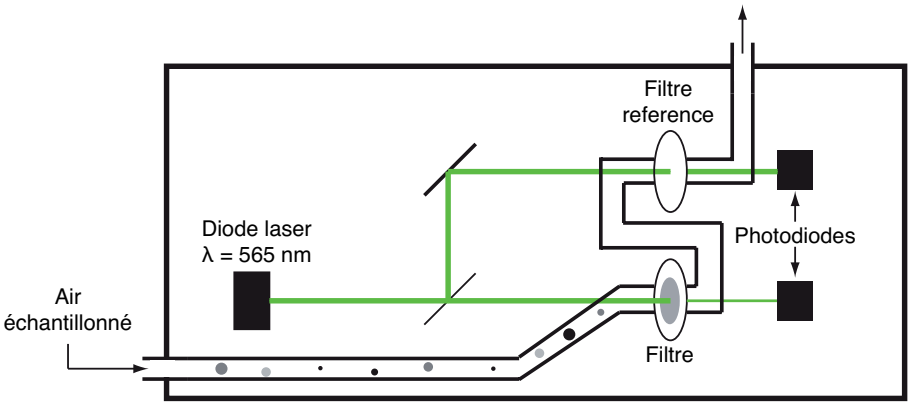


FIGURE *3.8 – Schéma de fonctionnement du PSAP.*

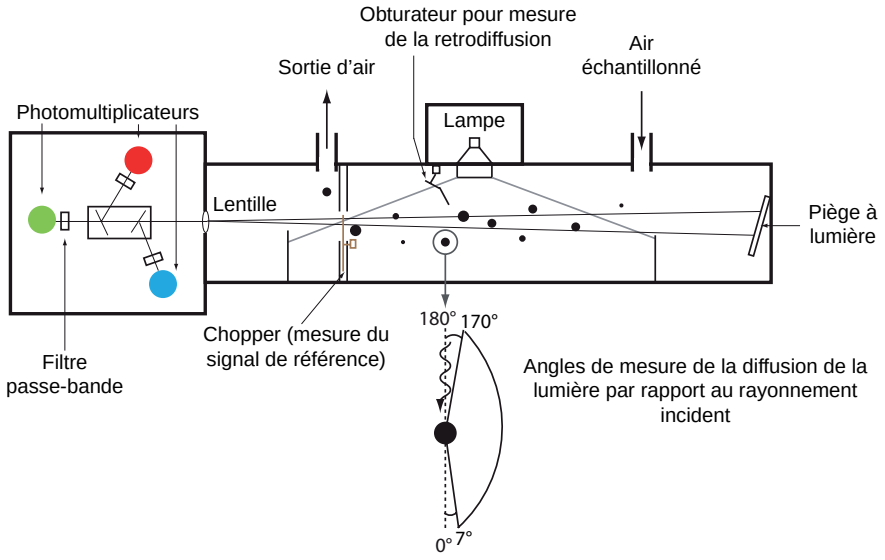


FIGURE *3.9 – Schéma de fonctionnement d'un nephélomètre 3563 (adapté de la documentation du fabricant TSI).*

Enfin, les propriétés optiques des particules d'aérosols on été mesurées, en plus des instruments déjà cités, à l'aide d'un Lidar (Light Detection And Ranging), via les mesures de rétrodiffusion, permettant de déterminer la présence de couches d'aérosols en dessous ou au dessus (selon la position du Lidar) de l'avion (De Villiers et al., 2010).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

3.2.2.3 Mesures chimiques : phase gaz et matière particulaire

Des mesures de monoxyde de carbone (CO) et d'ozone (O_3), deux gaz permettant de tracer la pollution, ont été effectuées durant les vols par l'instrument MOZART (Nédélec et al., 2003) du LATMOS (Laboratoire ATmosphère, Milieux, Observations Spatiales). La mesure du CO est basée sur l'absorption infrarouge de la bande fondamentale de rotation-vibration à 4,67 μm. Le dernier instrument présenté dans le cadre de cette étude est le C-ToF-AMS (Compact - Time of Flight - Aerosol Mass Spectrometer, Spectromètre de masse d'aérosol, Aerodyne Research, présenté par Canagaratna et al. (2007), Drewnick et al. (2005) et Schmale et al. (2010), figure 3.10) appelé par la suite AMS et qui appartient au Max Planck Institute de Mayence, Allemagne. L'AMS mesure la masse des particules d'aérosols rencontrées, à condition que celles-ci aient une température d'évaporation inférieure à 600° C. En effet, le principe de fonctionnement de l'AMS (voir figure 3.10) est basé sur l'évaluation, par un spectromètre de masse, de la composition chimique et de la masse des particules d'aérosols échantillonnées. Pour ce faire, les particules sont d'abord isolées grâce à un chopper, puis en fonction du temps nécessaire à la particule pour parcourir une distance donnée, la taille de la particule est estimée. Sa composition est déterminée selon le même processus après vaporisation de la particule.

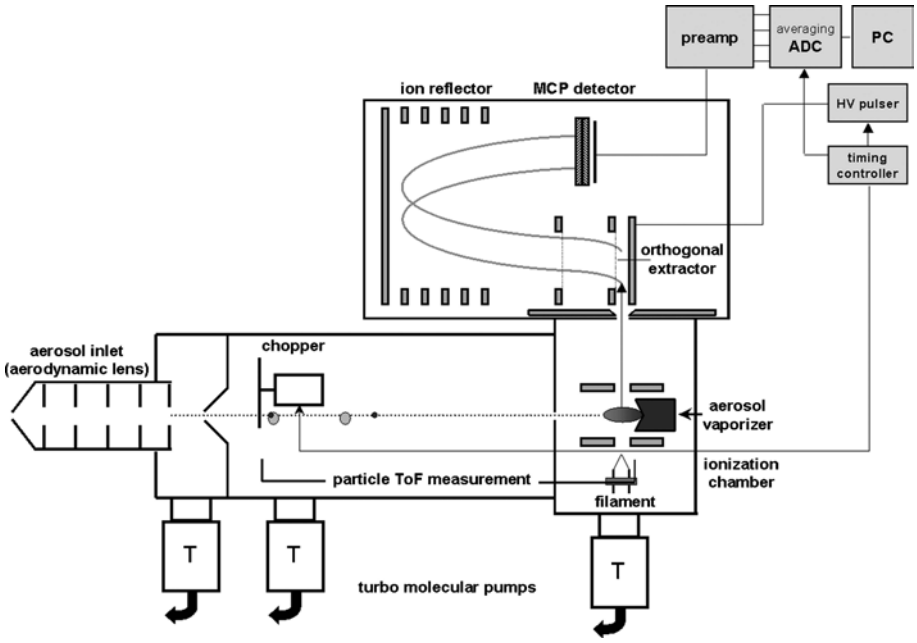


FIGURE *3.10 – Schéma de fonctionnement d'un C-ToF-AMS (Drewnick et al., 2005).*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

3.3 Modélisation Lagrangienne du transport de la pollution vers l'Arctique

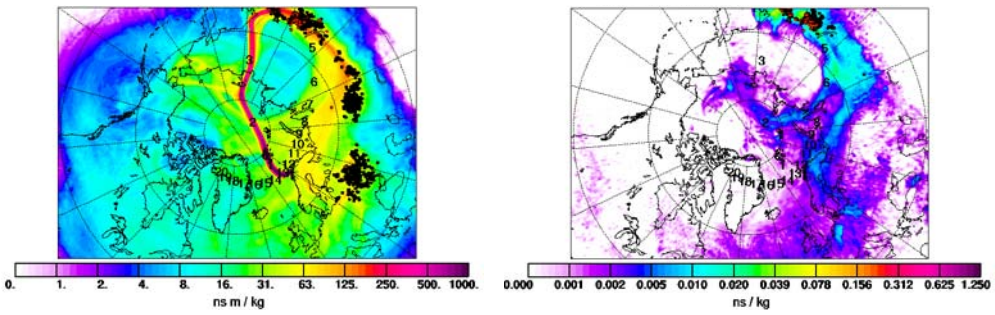
Afin de déterminer les différentes origines des particules d'aérosols mesurées en Arctique pendant les vols, des sorties du modèle de transport Lagrangien FLEXPART (Stohl et al., 1998, 2003, 2005) ont été utilisées. Ces sorties sont disponibles pour les deux campagnes POLARCAT (entre autres) sur internet [1] et sont distribuées à travers une interface accessible librement et créée dans le but d'inciter les expérimentateurs à utiliser des modèles lagrangien (le modèle HYSPLIT (Draxler and Rolph, 2010) peut également être donné comme exemple) pour leurs analyses [2].
Le modèle FLEXPART peut modéliser le comportement d'un nombre important (40 000 dans notre cas) de particules lagrangiennes au cours d'un intervalle de temps qui peut être positif (dans le cas de prévisions par exemple), ou négatif si l'on cherche à déterminer la ou les origines des particules lagrangiennes. Ainsi, pour chaque vol de l'ATR-42 durant les campagnes de mesures POLARCAT, des simulations ont été initialisées à chaque fois que la position de l'avion évoluait de plus de 150 m verticalement ou de 0.2° horizontalement (soit un peu plus que 20 km). Une description de la théorie utilisée par le modèle FLEXPART pour les calculs à rebours du temps (pour obtenir une rétro-trajectoire donc) est faite par Seibert and Frank (2004) alors qu'une description des équations résolues et des paramètres initiaux utilisés est donnée par Stohl et al. (1998, 2005). Les données météorologiques utilisées pour initialiser le modèle sont issues du ECMWF (European Center for Medium-range Weather Forcasts, Centre Européen de prévision météorologique à moyenne échelle, White (2002)). La résolution des données étant de 1° x 1°horizontalement sur 60 à 91 niveaux verticaux selon la disponibilité des données ECMWF. Les dépôts sec et humide ne sont pas pris en compte par le modèle.
Dans notre cas d'étude, le modèle FLEXPART simule l'évolution dans le temps de 40 000 particules lagrangiennes à durée de vie illimitée, lâchées dans l'atmosphère dans un volume autour du point de mesure (par exemple la position de l'avion lors d'un vol). Ainsi, à intervalles de temps réguliers, les positions de chaque particule jusqu'à 20 jours avant la mesure sont simulées.
Afin de compléter les informations déjà présentes sur les sorties du modèle FLEX-

1. http ://transport.nilu.no/flexpart-projects ?cmp=POLARCAT_FRANCE
2. l'ensemble des produits disponibles ainsi que leur descriptions sont explicités dans le document :« An integrated-based system for analyzing the influence of emission sources and atmospheric transport on measured concentrations of trace gases and aerosols », A. Stohl, J. F. Burkhart, S. Eckhardt, D. Hirdman and H. Sodemann, disponible à l'adresse internet http ://zardoz.nilu.no/ãndreas/publications/web_based_tool.pdf

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

PART, les données des Spectro-radiomètres MODIS (MOderate Resolution Imaging Spectroradiometer, Giglio et al. (2003)) sont recoupées avec les sorties. Les instruments MODIS sont montés sur deux satellites de la constellation A-Train, Aqua et Terra, qui survolent l'équateur du nord vers le sud respectivement le matin et l'après-midi. Les mesures de MODIS qui nous intéressent ici sont celles concernant les anomalies de températures, indiquant les positions de feux de biomasse. Dans le but de déterminer la nature des feux (de forêt ou de terres agricoles), une carte haute résolution présentée par Hansen et al. (2000) est utilisée pour classifier les feux par catégorie. Ainsi, sur les sorties FLEXPART seront indiqués en rouge les feux de forêt et en noir les feux de terres agricoles.
Les différentes sorties FLEXPART utilisées lors de ces travaux sont listées ci-dessous :

- Les sensibilités d'émissions potentielles intégrées sur la colonne d'atmosphère (PES) sont les sorties qui s'apparentent le plus à une retro-trajectoire « classique ». Il est important de bien prendre en considération que ces valeurs constituent des bornes supèrieures car les processus de dépôt ne sont pas pris en compte. Ces valeurs potentielles (en s kg^{-1}) dans une colonne d'atmosphère sont proportionnelles au temps de résidence des particules dans celle-ci et traduisent les voies principales de transport vers le point de mesure (figure 3.11(a)).



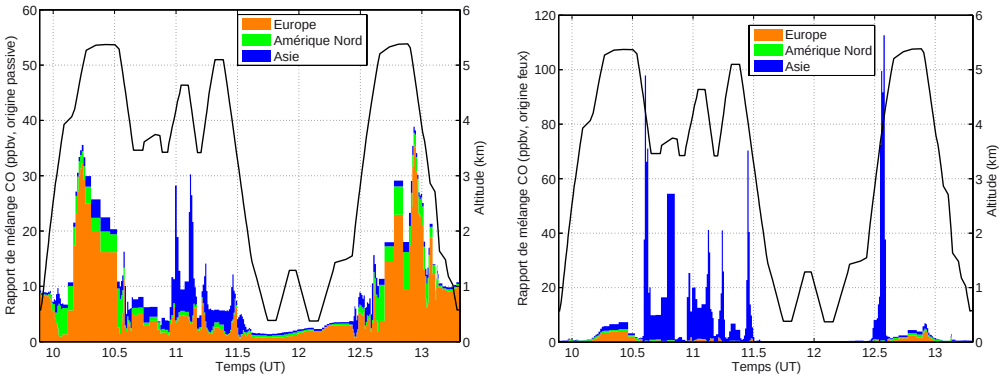
(a) (b)

FIGURE *3.11 – Exemples (a) de sensibilité d'émission potentielle et (b) d'empreinte PES. Les exemples correspondent à un passage du vol du 11 avril entre 10h 35min 49sec et 10h 36min 24sec. L'altitude initiale des particules relachées est comprise entre 4146 et 4301 m.*

- L'empreinte PES (FPES) est un outil qui permet de remonter aux lieux potentiels d'émissions des particules échantillonnées au point de mesure. Les FPES correspondent aux PES non intégrées sur la colonne et uniquement dans la couche inférieure du modèle (0-100 m). Cet outil est particulièrement utile pour carac-

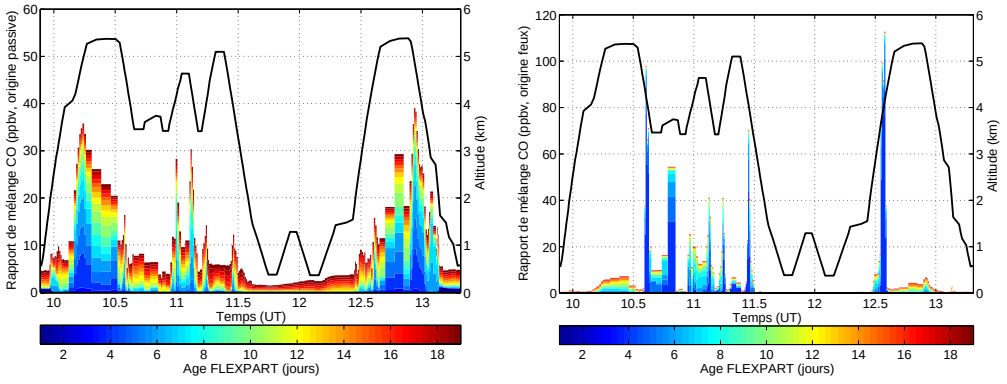
tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tériser les sources anthropiques de particules. Du fait des incertitudes sur les altitudes auxquelles sont rejetées les particules dans le cas de feux de biomasse, il est dans ce cas préférable d'intercomparer les PES et les FPES (figure 3.11(b)).



(a) (b)

FIGURE *3.12 – Exemple de séries temporelles FLEXPART des rapports de mélange du CO d'origine passive (a) et de feux de biomasse (b) en fonction de leur continent d'origine pour le vol du 11 avril 2008. L'altitude de l'avion est représentée par la ligne noire (figures inspirées de celles disponibles en ligne).*



(a) (b)

FIGURE *3.13 – Exemple de séries temporelles FLEXPART des rapports de mélange du CO d'origine passive (a) et de feux de biomasse (b) pour le vol du 11 avril 2008. L'âge de particules mesurées estimé par FLEXPART est quantifié par l'échelle de couleur et l'altitude de l'avion est représentée par la ligne noire (figures inspirées de celles disponibles en ligne).*

- La contribution potentielle des sources (PSC) est une estimation des émissions

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

anthropiques du monoxyde carbone (CO), des oxydes nitreux (NO_x), et du dioxyde de soufre (SO_2). Ces valeurs sont obtenues en multipliant les FPES par des densités de flux d'émissions répertoriées dans les tables EDGAR (Olivier and Berdowski, 2001) pour le monde entier, celle publiée par Frost et al. (2006) pour l'Amérique du nord et celle de la commission européenne pour l'Europe (Vestreng et al., 2005). Dans les PSC, les émissions dues à la combustion de biomasse sont estimées (Stohl et al., 2007), principalement au travers de la télédétection des feux par satellites.

- Les séries temporelles du CO transporté jusqu'au lieu de mesure en fonction de son origine passive ou de feux (figure 3.12) ainsi que celles de l'âge des particules mesurées font également parti des sorties du modèle FLEXPART. Ces valeurs sont obtenues par intégration des PSC pour le CO, alors que pour déterminer l'âge des particules, il est possible d'utiliser le temps écoulé dans le modèle entre l'émission et le transport jusqu'au lieu de mesure (figure 3.13).

L'ensemble de ces produits est un apport important pour la compréhension des mesures des propriétés des aérosols puisqu'ils vont nous permettre dans la suite de ces travaux d'établir une classification des données en fonction de l'origine géographique des masses d'air échantillonnées, mais également en fonction des sources anthropiques ou naturelles.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Chapitre 4

Étude de la partie réfractaire [1] et du vieillissement des aérosols pollués transportés en Arctique

Sommaire

Introduction **45**

4.1 Présentation de la campagne **46**

4.2 Identification des panaches de pollution **46**

4.2.1 Étude des séries temporelles de ΔCO 47

4.2.2 Identification des panaches 48

4.3 Étude des panaches transportés vers l'Arctique **53**

4.3.1 Feux russes et panaches anthropiques européens 54

4.3.2 Pollution asiatique 58

4.3.3 Analyse des échantillons prélevés in-situ 61

4.4 Étude de cas : vieillissement d'un aérosol anthropique européen **65**

4.4.1 Évolution des propriétés du panache 65

4.4.2 Modélisation du vieillissement par coagulation 70

4.5 Conclusions **79**

Introduction

L'ensemble de ce chapitre aura pour cadre la campagne POLARCAT printemps qui est brièvement présentée dans la section suivante. L'identification des différents panaches de pollution ainsi que leur classification seront détaillées ensuite avant de laisser la place à une section dans laquelle seront décrits et analysés les panaches

1. Est ici appelée « partie réfractaire » la partie des particules d'aérosols qui résiste à un chauffage à 280°C, donnant une indication sur l'état de mélange de l'aérosol.

rencontrés, de façon générale d'abord puis plus en détail pour les panaches issues de feux russes et d'Asie. Enfin, le vieillissement d'un panache de pollution anthropique d'origine européenne sera étudié dans la dernière section de ce chapitre.

4.1 Présentation de la campagne

La partie printemps de la campagne POLARCAT a eu lieu du 30 mars au 11 avril 2008. L'équipe scientifique, basée à Kiruna au nord de la Suède, a réalisé douze vols (voir figure 4.1). Quatre vols ont ainsi été dirigés vers le nord-ouest (31 mars et 1, 9 et 10 avril), trois vers le nord (30 mars, 6 et 11 avril) et trois vers le nord-est (3, 7 (matin) et 8 (matin) avril), l'ensemble de ces vols ayant survolé l'océan Arctique. Les deux vols matinaux des 7 et 8 avril ont atterri à l'aéroport du Cap Nord avant de redécoller dans l'après-midi en direction de Kiruna en volant au dessus du continent. Si les premiers vols de la campagne ont été effectués en nuage, la deuxième partie de la campagne a permis des vols « mixtes » au cours desquels des passages nuageux succédaient aux passages en ciel clair, cette étude se focalisant sur les mesures effectuées hors nuage.

Comme évoqué plus haut, une partie de la campagne POLARCAT printemps était dédiée à l'étude des nuages et des interactions entre les aérosols et les nuages, alors que l'autre partie visait l'étude des particules d'aérosol. De ce fait, l'instrumentation montée à bord de l'ATR-42 visait à caractériser ces différents aspects avec, en plus des granulométres nanométriques dédiés à l'étude des particules d'aérosol, des sondes microphysiques permettant de caractériser la granulométrie des gouttelettes et cristaux de glace nuageux. La liste des instruments présents à bord de l'ATR-42 durant la campagne POLARCAT printemps est donnée dans le tableau 4.1. A ces instruments s'ajoutent ceux fixés sur l'avion et permettant de mesurer des paramètres plus conventionnels comme par exemple la pression, la température, l'altitude et la position GPS.

4.2 Identification des panaches de pollution

Le processus d'identification de l'origine des panaches de pollution se fait en deux étapes. Dans un premier temps, les pics dans le rapport de mélange de CO sont identifiés avant que les origines de ces pics soient déterminées à l'aide du modèle lagrangien de retro-trajectoires FLEXPART.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

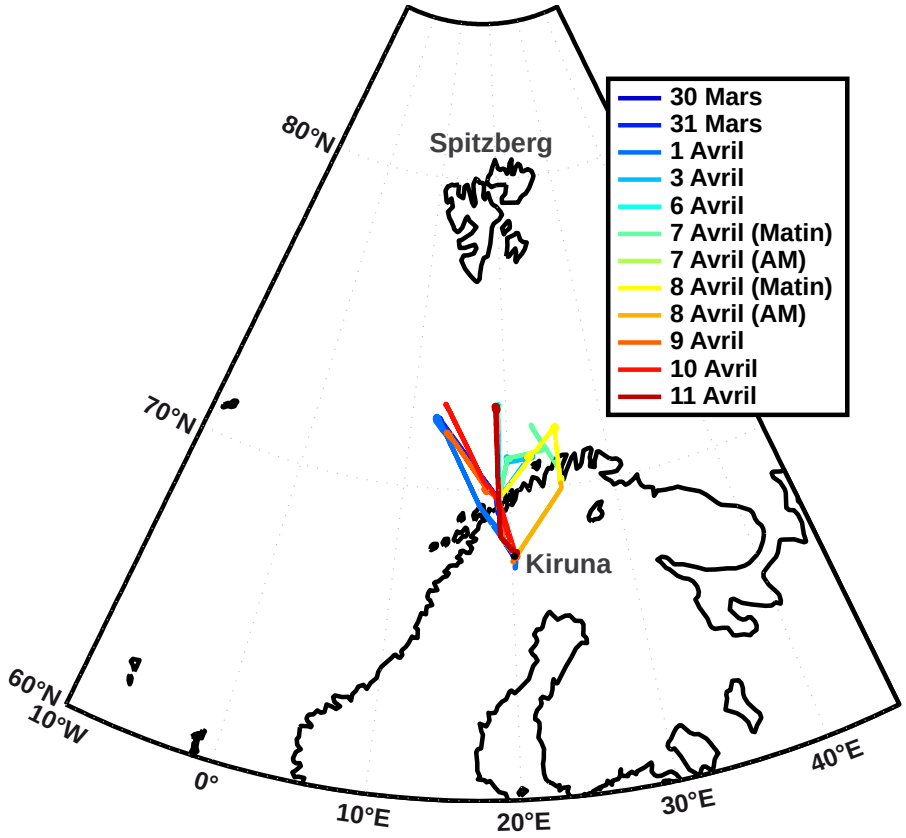


FIGURE *4.1 – Carte représentative des vols de la campagne POLARCAT printemps.*

4.2.1 Étude des séries temporelles de ΔCO

Les séries temporelles du rapport de mélange de ΔCO, relatives aux douze vols de la campagne, sont présentées dans la figure 4.2. ΔCO correspond à l'excès par rapport à la concentration de fond (ici fixée à 120 ppbv) dans la concentration mesurée. A ces séries temporelles sont associées celles de l'altitude de l'avion, de l'humidité relative et des concentrations totales mesurées par le FSSP-100 et le 2DC qui indiquent respectivement, de par leur gamme de mesure, la présence de gouttelettes d'eau nuageuses et de cristaux de glace. Lors des huit premiers vols (du 30 mars au matin du 8 avril), aucun pic de ΔCO n'a été identifié hors nuage. En effet, lors des passages en nuage, la veine CVI n'échantillonnait que les noyaux glacogénes ou de condensation, les particules d'aérosols interstitielles étant rejetées. A partir du 8 avril (après-midi), seize pics de ΔCO ont été isolés sur les quatre derniers vols et surlignés en orange sur la figure 4.2. Une liste des panaches de pollution sélectionnés est faite dans le tableau 4.2 avec les heures de début et de fin d'échantillonnage, la durée de la traversée du panache et les valeurs de ΔCO en excès mesurées et

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Instrument	Paramètre mesuré	Propriétaire de l'instrument
CPC 3010	conc. totale $D_p > 0.01$ μm	LaMP
SMPS (x2)	distribution $0.02 < D_p < 0.46$ μm	LaMP
GRIMM 1.108 (x2)	distribution $0.3 < D_p < 2$ μm	LaMP
PCASP 100-X	distribution $0.1 < D_p < 3$ μm	SAFIRE
CPI	images des cristaux de glace	LaMP
FSSP 100	distribution $3 < D_p < 47$ μm	SAFIRE
2DC	distribution $25 < D_p < 750$ μm	SAFIRE
2DP	distribution $100 < D_p < 6400$ μm	LaMP
Néphélomètre polaire	fonction de phase en nuage	LaMP
PSAP	absorption de la lumière	LaMP
Mozart	concentration en CO et O_3	SAFIRE
Impacteurs	collecte de particules sub et supermicroniques	FSO-LaMP

TABLEAU 4.1 – Liste des instruments présents à bord de l'ATR-42 lors de la campagne POLARCAT printemps. LaMP : Laboratoire de Météorologie Physique ; SAFIRE : Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement ; FSO : Frontier Science Organisation, Kanazawa, Japon.

calculées par le modèle FLEXPART.

4.2.2 Identification des panaches

Après leur sélection, les panaches se voient attribuer une origine principale à l'aide des séries temporelles des origines continentales (Europe, Amérique du Nord ou Asie, anthropique ou feux) déterminées par le modèle FLEXPART. Il est possible ainsi de distinguer l'origine par continent mais aussi d'avoir une idée de la nature (anthropique ou naturelle) des panaches sélectionnés. La figure 4.3, où les pics de ΔCO ont été à nouveau surlignés mais avec des couleurs différentes en fonction de l'origine majoritaire, illustre l'étude de ces séries temporelles. On note ainsi que la pollution transportée au nord de la Suède est largement influencée par l'Europe qui, sur les seize panaches, en « fourni » treize dont neuf sont dominés par les émissions anthropiques et deux par les feux de forêts ou d'agriculture alors que deux sont d'origine mixte (anthropique et feux). Les trois panaches restant étant attribués aux feux asiatiques dans un premier temps. Dans un second temps, l'étude de De Villiers et al. (2010) a permis de mettre en avant que ces masses d'air asiatiques étaient influencées à des degrés différents par deux origines séparées : les feux sibériens et les émissions anthropiques de la côte est de l'Asie. Ainsi, toujours à l'aide de De Villiers et al. (2010) la masse d'air numéro 13 est identifiée comme

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

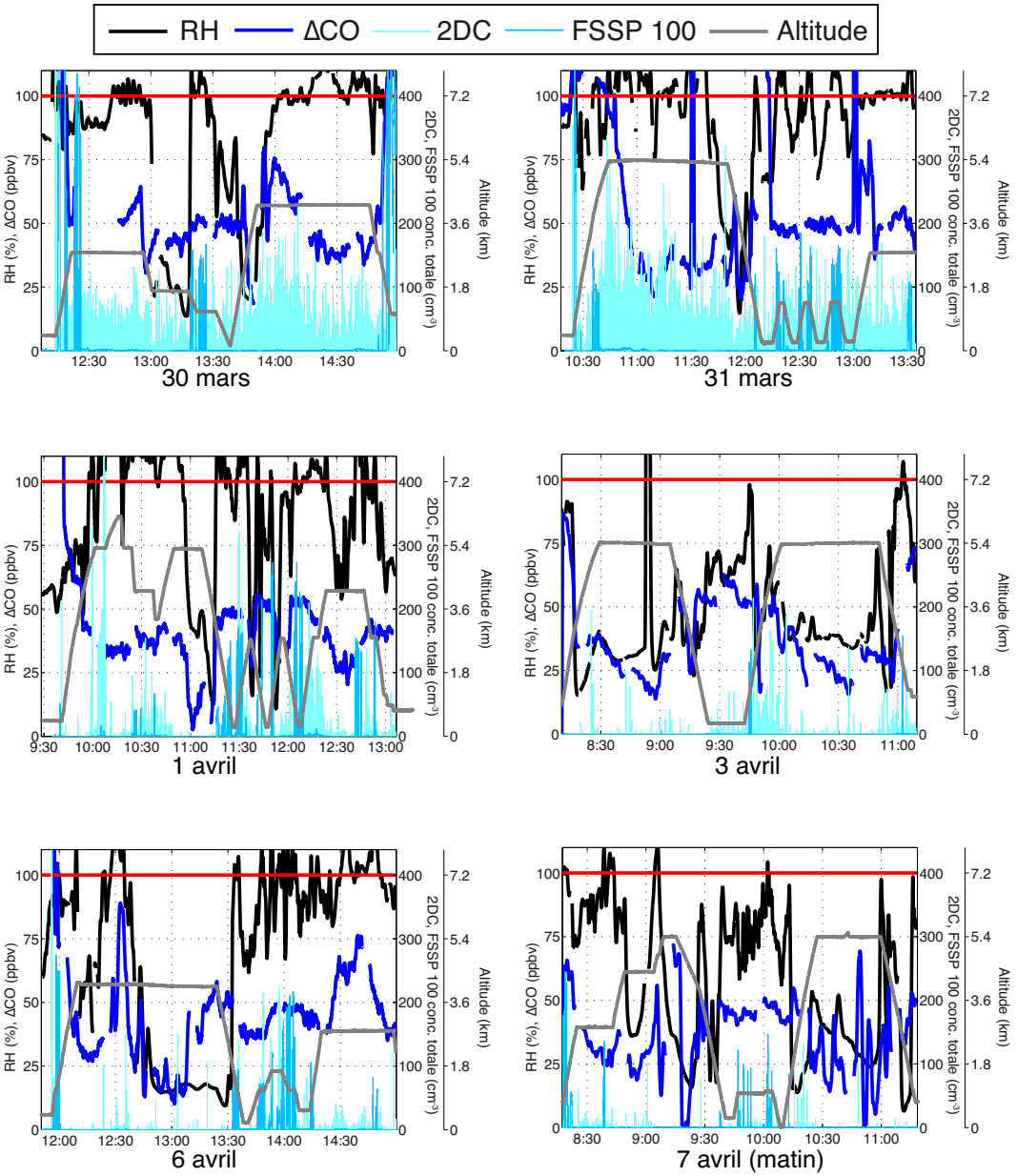


FIGURE *4.2 – Séries temporelles du ΔCO, de l'humidité relative, de l'altitude et des concentrations mesurées par le FSSP-100 et le 2DC pour l'ensemble des vols de la campagne POLARCAT printemps. Les pics de CO non associés à des précipitations ou à une humidité relative supérieure à 100% sont surlignés en orange.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

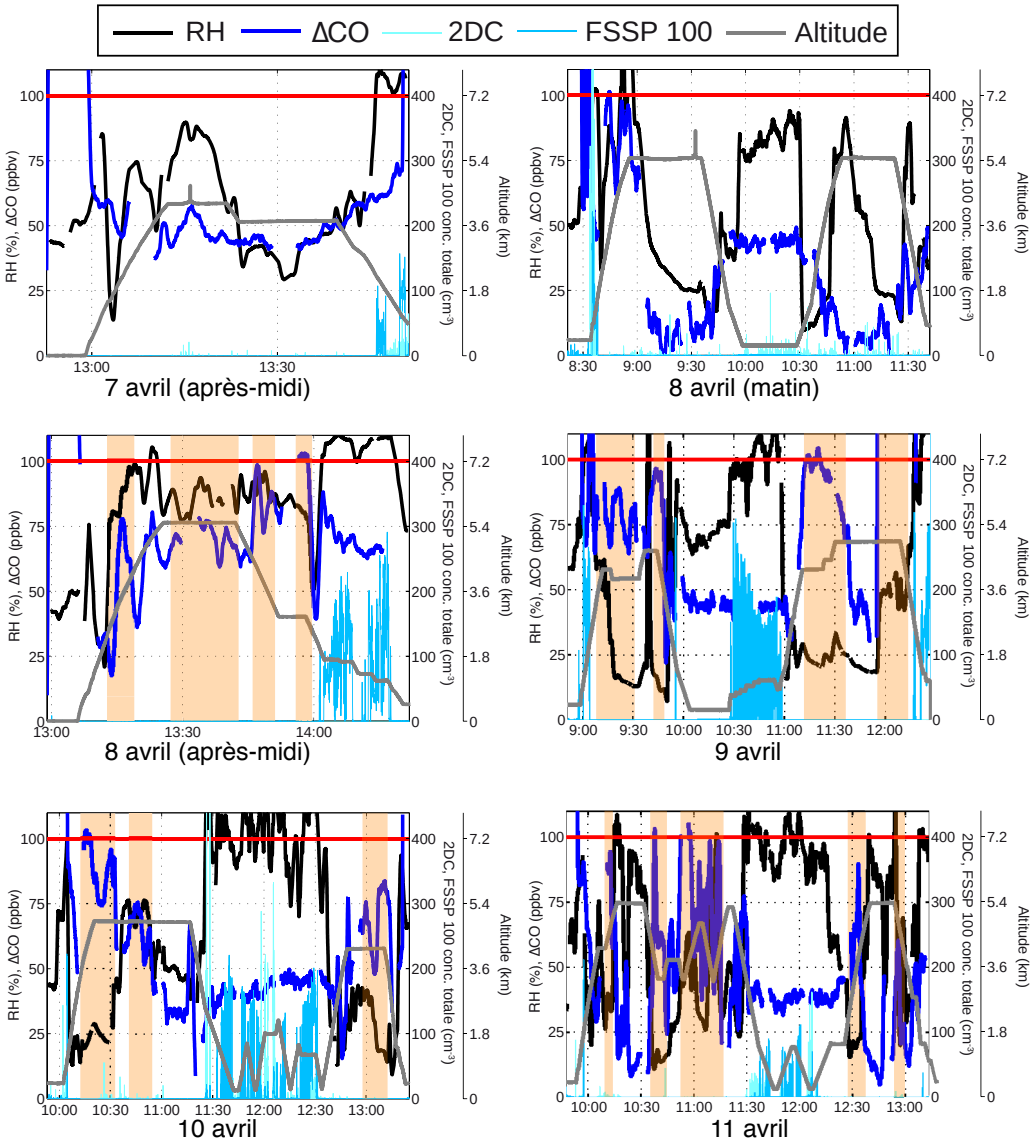


FIGURE *4.2 – (suite)*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

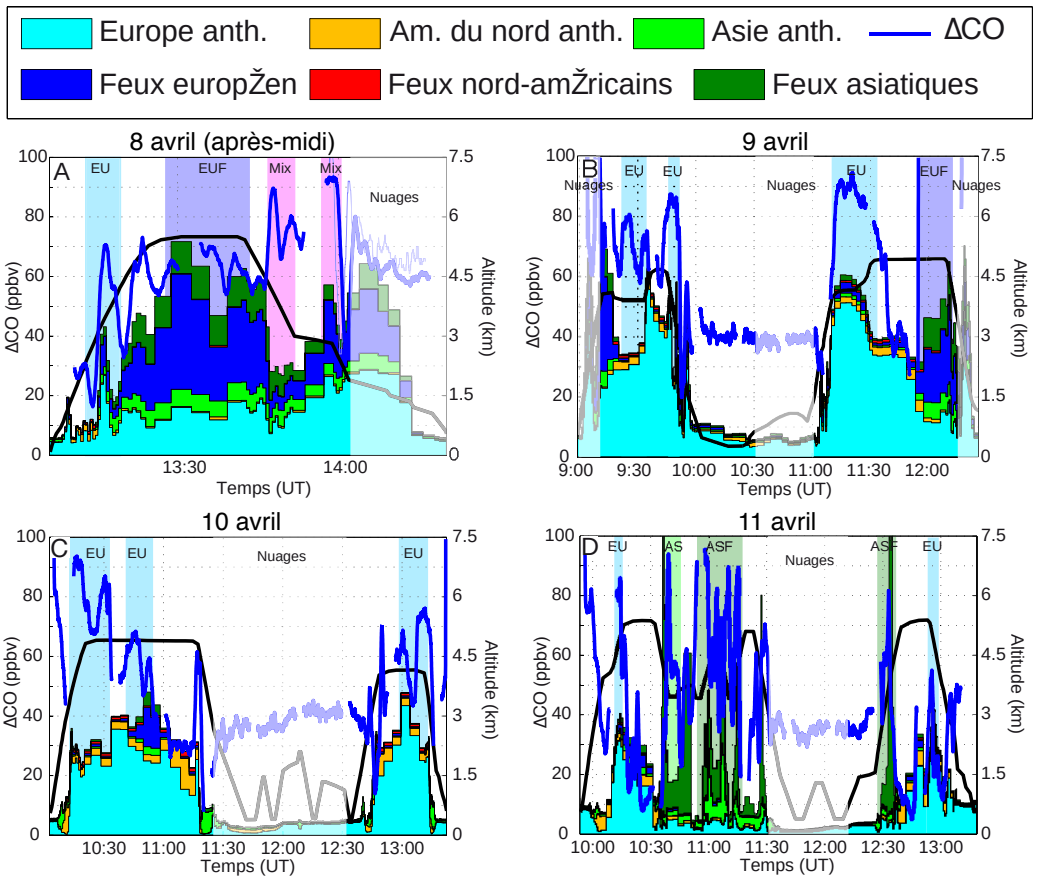


FIGURE *4.3 – Séries temporelles du ΔCO et des contributions continentales (anthropiques ou de feux) simulées par FLEXPART pour les vols (A) du 8 (après midi), (B) 9, (C) 10 et (D) 11 avril de la campagne POLARCAT printemps. Les pics de CO surlignés dans la figure 4.2 et répertoriés dans la table 4.2 ont été colorés en fonction de leur origine : bleu clair pour une origine anthropique européenne, bleu foncé pour les feux européens, et vert clair et foncé pour des origines d'émissions anthropiques et de feux asiatiques. Les passages durant lesquels l'avion traversait des nuages ont été blanchis, les pics de ΔCO relatifs à ces périodes n'ayant pas été considérés.*

majoritairement influencée par des émissions anthropiques asiatiques quand les deux autres (numéro 14 et 15) restent sous l'influence des feux. La figure 4.4 résume les concentrations de CO en excès mesurées et simulées par FLEXPART pour chaque panache. Les barres relatives aux simulations de FLEXPART se décomposent en plusieurs parties qui correspondent aux différentes origines continentales et à la nature de la pollution déterminées par FLEXPART. Afin de faciliter la compréhension de l'analyse, l'artice de (De Villiers et al., 2010) a été ajouté dans l'annexe C.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

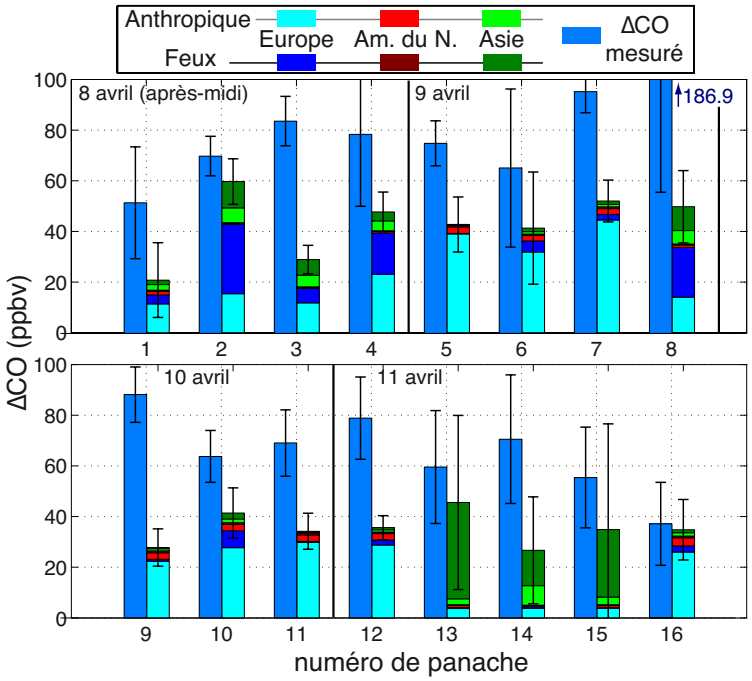


FIGURE *4.4 – Excès dans les concentrations en CO, par rapport à la concentration de fond, mesuré et simulé par FLEXPART. Les valeurs dépassant 100 ppbv sont indiquées numériquement.*

Afin de localiser plus précisément l'origine des panaches sélectionnés, les sensibilités d'émissions potentielles (PES) et de l'empreinte PES (FPES) ont été utilisées. Ainsi, la masse d'air anthropique asiatique voit sa composition influencée par les émissions chinoises sur la côte est. Concernant les panaches reliés aux feux, les européens correspondent à des événements ayant eu lieu en Russie au nord de la mer Noire alors que les asiatiques sont plutôt localisés dans le sud de la Sibérie, à l'est du lac Baïkal. Enfin, les panaches qualifiés de mixtes sont composés d'émissions anthropiques issues des régions de Moscou en Russie et de Minsk en Biélorussie et d'émissions issues de feux en Russie au nord de la mer Noire. Pour chaque origine, la FPES correspondante est présentée dans la figure 4.5(A à E). L'ensemble de ces panaches est étudié dans la section suivante.

Comme le montre la figure 4.5(A) et (B), différentes origines peuvent être distinguées pour les masses d'air identifiées plus haut comme européennes anthropiques. Sur les neuf panaches considérés, trois sont reliés à des secteurs variés comme la Russie, l'Italie du nord, la Suisse, l'Autriche et l'Angleterre alors que les six autres sont tous issues d'émissions polonaises, principalement concentrées au dessus des

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

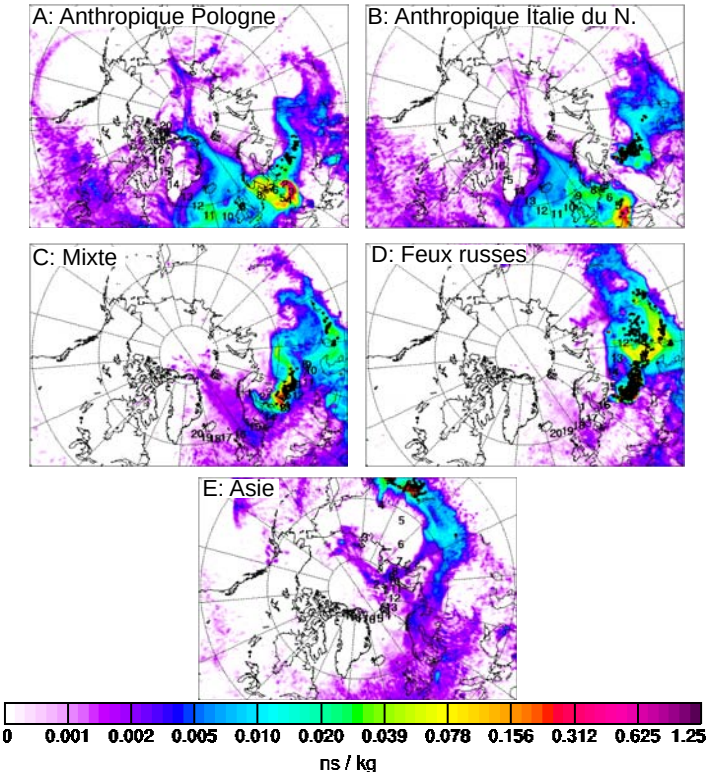


FIGURE *4.5 – Empreintes PES calculées par FLEXPART correspondant aux différentes origines déterminées pour les panaches échantillonnés.*

grandes agglomérations que sont Cracovie et Varsovie. Ces six panaches ont été échantillonnés au cours des trois derniers vols (9, 10 et 11 avril). Il est probable que ces panaches ne soit en fait qu'une seule et même masse d'air qui aurait été traversée à deux reprises au cours de chacun des trois vols. Les positions auxquelles ont été mesurés ces panaches rendent cette hypothèse encore plus crédible. Une étude détaillée de cette masse d'air sera faite dans la section 4.4. L'origine précise de chaque panache est donnée dans le tableau 4.2.

4.3 Étude des panaches transportés vers l'Arctique

Cette partie se focalise sur les propriétés physiques des différents panaches identifiés dans la section précédente (à l'exception de la masse d'air anthropique polonaise qui est étudiée en détail dans la section suivante) en se concentrant sur l'étude des distributions en nombre de particules à température ambiante et à 280°C.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	N° panache	début (HH :MM)	fin (HH :MM)	durée (min)	ΔCO (ppbv)	ΔCO FP (ppbv)	origine attribuée
8 avril	1	13 :13	13 :19	6	51,5±22,1	20,8±14,8	EU anth - Russie
	2	13 :28	13 :44	16	69,9±7,8	59,7±9,0	EU feux - Russie
	3	13 :47	13 :52	5	83,7±9,7	28,9±5,6	EU mixte - Russie
	4	13 :57	14 :01	4	78,5±28,4	47,7±7,9	EU mixte - Russie
9 avril	5	9 :22	9 :35	13	75,0±8,9	42,8±10,9	EU anth - Ita. du N., GB, Aut.
	6	9 :45	9 :51	6	65,2±31,2	41,3±22,1	EU anth - Pologne
	7	11 :10	11 :33	23	95,4±8,3	52,0±8,3	EU anth - Pologne
	8	11 :53	12 :12	19	186,9±131,2	49,8±14,3	EU feux - Russie
10 avril	9	10 :12	10 :33	29	88,1±10,9	27,8±7,4	EU anth - Pologne
	10	10 :42	10 :55	13	63,7±10,2	41,4±9,9	EU anth - Ita. du N.
	11	12 :58	13 :13	15	69,0±13,1	34,2±7,1	EU anth - Pologne
11 avril	12	10 :11	10 :15	4	78,8±16,3	35,6±4,7	EU anth - Pologne
	13	10 :36	10 :45	9	59,5±22,3	45,6±34,4	AS anth - côtes chinoises
	14	10 :54	11 :18	24	70,5±25,4	26,7±21,1	AS feux - Sibérie du S.
	15	12 :27	12 :37	10	55,4±19,9	34,8±41,7	AS feux - Sibérie du S.
	16	12 :53	12 :59	6	37,1±16,4	34,8±12,0	EU anth - Pologne

TABLEAU 4.2 – Liste des panaches sélectionnés à partir des pics de ΔCO observés durant les vols de la campagne POLARCAT printemps. Sont renseignés les heures de début et fin d'échantillonnage ainsi que les valeurs d'excès de CO mesurées et calculées par le modèle FLEXPART et l'origine attribuée.

4.3.1 Feux russes et panaches anthropiques européens

Les deux panaches reliés aux feux russes semblent issus des mêmes événements ayant eu lieu au nord de la mer Noire. Les propriétés des panaches étant assez proches, seules les valeurs moyennes seront présentées par la suite. Ainsi, les distributions moyennes en taille des particules d'aérosols mesurées à température ambiante et à 280°C ainsi que leur représentation par la somme de trois lois log-normales sont présentées dans la figure 4.6. Il apparait clairement que la distribution à température ambiante est dominée par un mode centré à 127 nm. Ce mode est désorbé presque uniformément vers un mode réfractaire centré à 74 nm, reflétant la volatilité des particules qui ont donc été recouvertes durant leur transport vers l'Arctique. Cette volatilité se retrouve également dans la valeur de la fraction volatile volumique ($F_{volatile}$, dfinie ci-dessous) : 0,65±0,07. Le coefficient d'absorption mesuré lors de l'échantillonnage de ces deux panaches issus des feux russes à une valeur moyenne de 0,84±0,32 Mm^{-1}, ce qui est comparable aux valeurs mesurées à Barrow en Alaska (Quinn et al., 2007). L'évolution du mode principal après chauffage permet

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

de conclure sur un mélange interne des particules d'aérosols de feux russes, la partie réfractaire étant composée de matière émise lors de la combustion de la végétation, une partie de cette matière pouvant être considérée comme du carbone suie, du fait de la forte valeur mesurée du coefficient d'absorption. La fraction volatile volumique est définie selon la relation suivante :

$$F_{volatile} = \frac{V_{Tambiante} - V_{280C}}{V_{Tambiante}}, \tag{4.1}$$

où $V_{Tambiante}$ et V_{280C} sont les volumes de particules mesurés à température ambiante et à 280°C, respectivement.

Comme décrit précédemment, les panaches européens d'origine anthropique (à l'exception de la masse d'air polonaise) sont d'origines géographiques assez différentes (Russie, nord de l'Italie, Suisse et Angleterre). Les distributions en taille des particules à température ambiante et à 280°C sont donc présentées indépendamment les unes des autres sur la figure 4.7. On constate que ces distributions présentent effectivement des disparités relatives à leur origine, notamment sur les diamètres moyens et les concentrations des modes (ambiants ou réfractaires) déterminées à l'aide de la modélisation d'une somme de trois lois log-normales. Les caractéristiques de ces 3 modes à température ambiante et à 280°C sont respectivement répertoriées dans les tableaux 4.3 et 4.4 (à la fin de la section).

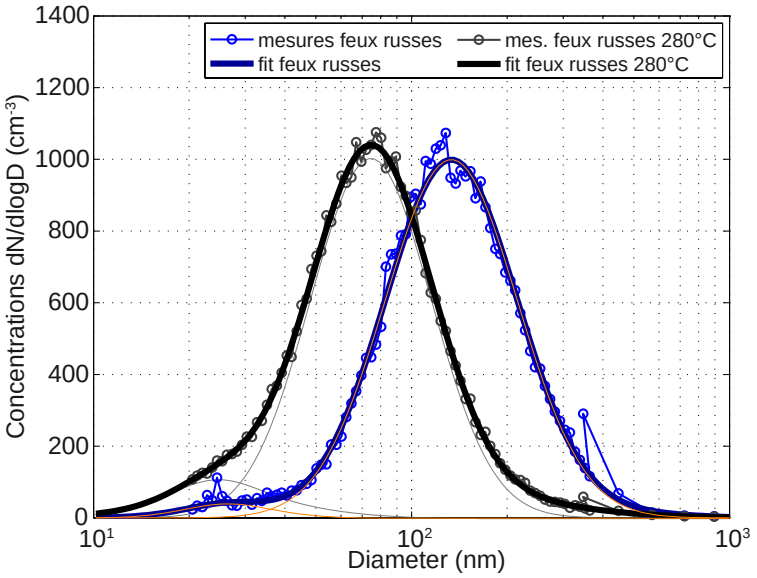


FIGURE *4.6 – Distributions moyennes en taille des particules d'aérosols à température ambiante et à 280°C pour les masses d'air issues des feux russes.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

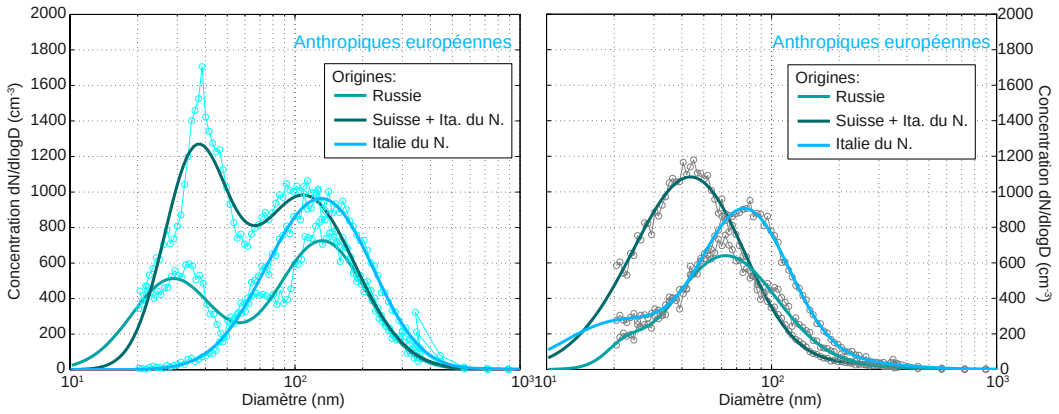


FIGURE *4.7 – Distributions en taille des particules d'aérosols à température ambiante (à gauche) et à 280°C (à droite) pour les masses d'air européennes d'origines anthropiques.*

Ces panaches sont qualifiés d'anthropiques car, comme on peut le voir sur la figure 4.4 (présentée dans la section précédente), c'est l'origine majoritaire donnée par le modèle FLEXPART. Néanmoins, il est important de noter que dans le cas des masses d'air numéros 1 (Russie) et 10 (nord de l'Italie), les feux européens (Russie) ont une influence non négligeable et contribuent sûrement aux panaches. On voit par exemple que, de la même façon que pour les distributions relatives aux feux russes, le mode accumulation du panache 10 de diamètre moyen 143,3 nm est désorbé vers un mode avec un diamètre moyen de 76,4 nm pour des concentrations modales presque identiques soit un comportement similaire à celui observé pour les feux russes. Cette évolution laisse penser que les feux russes ont influencé de façon plus importante ces deux masses d'air que ce qu'avait prédit le modèle FLEXPART. Par ailleurs, les coefficients d'absorption de la lumière (σ_{abs}) et les fractions volatiles volumiques ($F_{volatile}$) relatifs à ces trois panaches tendent à confirmer cette hypothèse. En effet, pour les panaches supposés influencés partiellement par les feux (numéros 1 et 10), les σ_{abs} atteignent respectivement des valeurs de 0,87±0,34 et 0,47±0,10 Mm^{-1} pour des $F_{volatile}$ de 0,73±0,04 et 0,63±0,04. En revanche, le panache numéro 5 supposé purement anthropique (mais à sources multiples) a un σ_{abs} en dessous du seuil de détection de l'instrument (<0,17 Mm^{-1}) et une $F_{volatile}$ de 0.80±0,03. Ces résultats sont en accord avec la littérature dans laquelle il est décrit que les émissions anthropiques sont constituées de fines particules (parfois d'origine secondaire) et d'importantes quantités de gaz (par exemple des sulfates) qui condensent sur les particules (Wehner and Wiedensohler, 2003; Zhang et al., 2004), créant ainsi des particules hautement volatiles mais dans lesquelles peu de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

place est réservée à la matière absorbante. Par opposition, les particules émises par les feux sont plus larges et composées en partie de carbone suie absorbant (Reid et al., 1998; Guyon et al., 2005; Reid et al., 2005) qui tend à diminuer les propriétés de volatilité des particules. Ces particularités se retrouvent dans l'analyse des échantillons prélevés in-situ et présentés dans la section 4.3.3.
Il convient toutefois de considérer ces résultats avec précaution car, comme le montrent les contributions des sources en CO déterminées par FLEXPART et présentées dans la figure 4.8, de nombreuses sources influencent ces 3 panaches et ce rapprochement avec les feux russes reste donc une simple hypothèse qu'il n'est pas possible de vérifier à partir des données à notre disposition.

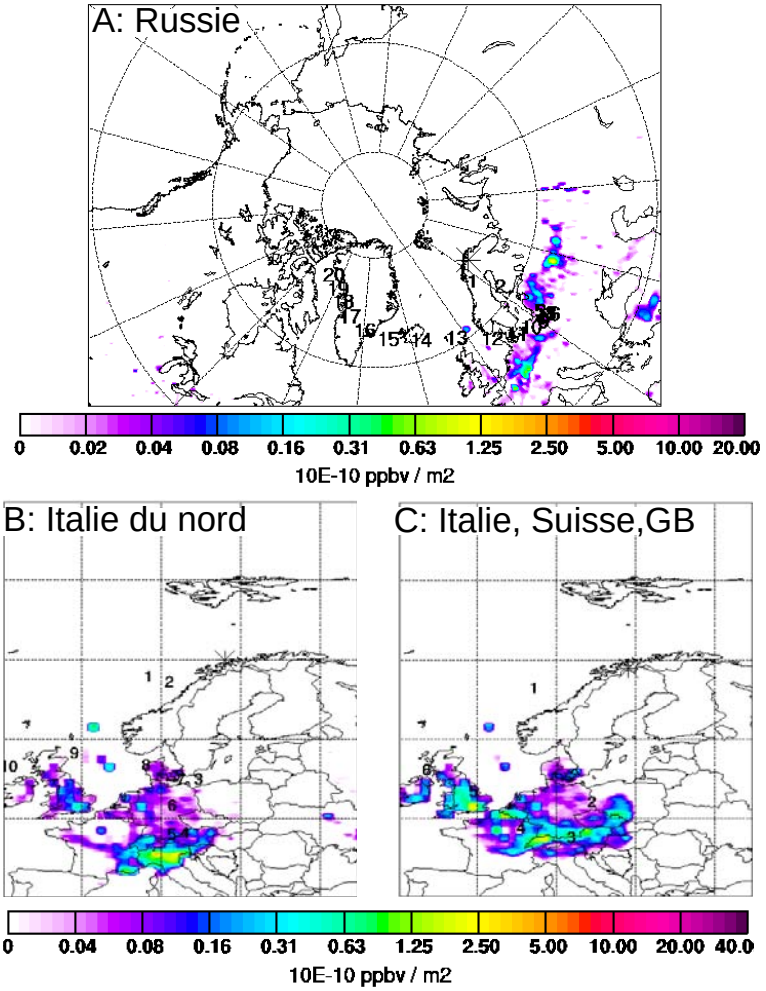


FIGURE *4.8 – Cartes des contributions en CO, calculées par FLEXPART, relatives aux 3 panaches anthropiques européens.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

4.3.2 Pollution asiatique

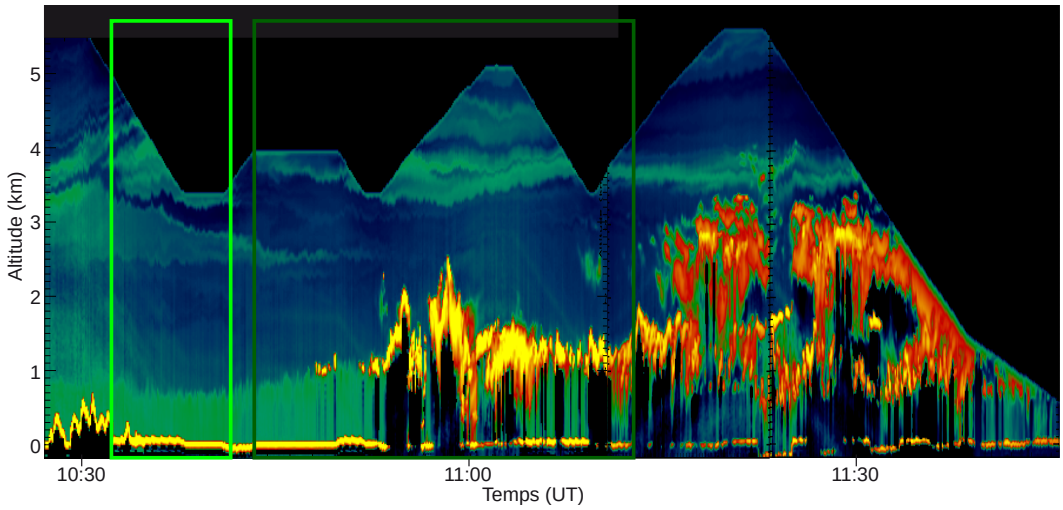


FIGURE *4.9 – Rétrodiffusion lidar mesurée à bord de l'ATR-42 par le lidar LNG au cours du vol du 11 avril (Image inspirée de De Villiers et al. (2010)). La couleur représente l'intensité de la rétrodiffusion entre 10^{-4} (noir) et 5.10^{-2} (jaune) km^{-1} sr^{-1} avec une échelle logarithmique.*

Concernant les panaches issus de l'Asie, De Villiers et al. (2010) ont décrit ces masses d'air comme complexes et influencées par deux contributions distinctes qui sont des feux de forêt en Sibérie et des émissions anthropiques sur la côte est du continent. Une conclusion de l'article de De Villiers et al. (2010) met en avant que la différence entre le panache dit anthropique et celui dit issu des feux se trouvait dans l'intensité de ces contributions. Afin de caractériser cette double contribution, les distributions en taille des particules ont été représentées à l'aide de la somme de quatre lois log-normales. Cette analyse a permis de faire ressortir la particularité de ces panaches, à savoir la double contribution, à travers deux modes que l'on retrouve centrés autour de 150 et 240 nm, soit dans la gamme de taille du mode accumulation. La figure 4.9 présentée dans les travaux de De Villiers et al. (2010) correspond à la rétrodiffusion lidar, c'est à dire l'énergie qui est renvoyée à 1064 nm par les particules d'aérosols vers le téléscope de l'instrument. fait apparaitre clairement les couches de pollution observées par le lidar Léandre Nouvelle Génération (LNG), visibles par leur coloration verte à une altitude d'environ 4 km. Les fortes rétrodiffusion mesurées entre 1 et 2 km correspondent à des nuages.

La figure 4.10 présente les distributions en taille mesurées dans les panaches

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

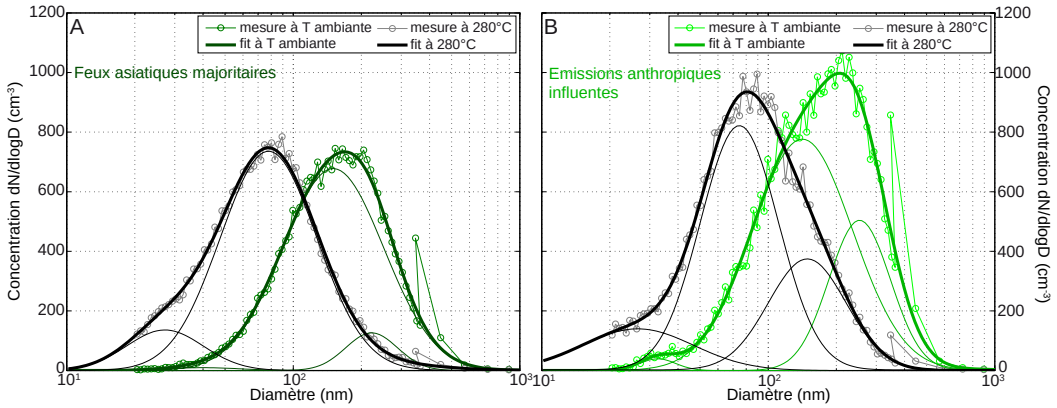


FIGURE *4.10 – Distributions observées et modélisées à température ambiante et à 280˚C des panaches transportés depuis l'Asie vers l'Arctique. Les modes modélisés pour chaque distribution sont également représentés.*

asiatiques à température ambiante et à 280˚C. Les modes déterminés par le modèle sont également tracés afin de faire apparaitre les deux modes issus des deux contributions citées précédemment sur les distributions à température ambiante. Les caractéristiques de ces modes (concentrations N, écart-type σ et diamètre moyen d) sont consignées dans le tableau 4.3.
La distribution moyenne relative au panache influencé principalement par les feux sibériens (figure 4.10(A)) est composée d'un important mode centré à 154 nm (N = 380 cm^{-3}) auquel s'additionne un second mode, centré à 222 nm mais bien moins concentré (N = 36 cm^{-3}). Après chauffage à 280˚C, ces deux modes évoluent vers deux modes réfractaires centrés sur 27 et 78 nm pour des concentrations respectives de 58 et 393 cm^{-3}.
Les distributions relatives au panache influencé conjointement par les feux sibériens et les émissions anthropiques de la côte orientale de l'Asie sont présentées sur la figure 4.10(B). On y retrouve les modes qui caractérisaient la distribution d'origine majoritaire de feux (et décrite précédemment) avec un mode centré à 141 nm à température ambiante et deux modes réfractaires centrés à 27 et 75 nm. Les concentrations de ces modes semblent correspondre puisque le mode à température ambiante présente une concentration modélisée de 433 cm^{-3} qui correspond quasiment à la somme des deux modes réfractaires dont les concentrations sont 86 et 354 cm^{-3} (soit 440 cm^{-3}).

A température ambiante, la distribution se distingue de celle du panache issu majoritairement des feux par un second mode très concentré dans la gamme de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Origine globale	Origine précise	N° panache	Mode Aitken			Mode intermédiaire		
			$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$
EU anth.	Russie	1	120	1,28	35,4	-	-	-
	Sui., Ita. N, GB	5	411	1,38	36,3	-	-	-
	Ita. du N.	10	63	1,69	80,0	-	-	-
EU feux	Russie	2	3,9	1,47	26,5	-	-	-
	Russie	8	382,5	1,80	10,8	-	-	-
Asie anth.	Sib. et côte est	13	7,8	1,20	32,5	433	1,67	141,4
Asie feux	Sibérie	14	3,8	1,45	39,9	379	1,67	150,2
Origine globale	Origine précise	N° panache	Mode accumulation			Mode grossier		
			$n_3(cm^{-3})$	σ_3	$d_{m3}(nm)$	$n_4(cm^{-3})$	σ_4	$d_{m4}(nm)$
EU anth.	Russie	1	450	1,61	129,8	0,23	1,44	850
	Sui., Ita. N, GB	5	554	1,68	110,8	0,40	1,71	500
	Ita. du N.	10	515	1,63	136,3	1,13	1,38	800
EU feux	Russie	2	524	1,61	133,7	4,2	1,49	500
	Russie	8	525	1,67	140,4	0,45	1,48	1096
Asie anth.	Sib. et côte est	13	171	1,37	253,3	0,88	1,30	852
Asie feux	Sibérie	14	36	1,30	221,8	0,33	1,51	1278

TABLEAU 4.3 – Paramètres des modes utilisés pour modéliser les distributions à température ambiante.

diamètre du mode accumulation. Celui-ci est centré sur un diamètre moyen de 253 nm pour une concentration de 171 cm^{-3}. Après chauffage, ce mode semble se désorber uniformément vers un mode réfractaire centré à 150 nm et de concentration très similaire (160 cm^{-3}). Ce dernier mode décrit doit donc correspondre à la contribution anthropique dans la distribution. Si le diamètre moyen du mode à température ambiante n'est pas surprenant, on peut en revanche s'étonner de voir que le mode réfractaire correspondant ait un diamètre moyen aussi élevé. En effet, comme évoqué ci-avant lors de l'étude des panaches anthropiques, la pollution anthropique est généralement associée aux émissions de particules de petits diamètres et de volume conséquent de gaz qui par la suite contribuent grandement au recouvrement des particules. Néanmoins, l'étude menée par Pratt and Prather (2009) dans la banlieue de Los Angeles aux États-Unis montre que, dans le cas de particules d'aérosols organiques vieillis, il est possible de retrouver des particules anthropiques réfractaires dans ces gammes de diamètres. Pratt and Prather (2009) observent également des valeurs de diamètres moyens de 242 et 177 nm pour les particules organiques vieillies à température ambiante et à 230°C,

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

respectivement. Ces deux valeurs étant très proches de celles observées dans notre cas, il est possible de conclure quant à la nature anthropique de ce mode.

Origine globale	Origine précise	N° panache	Mode refractaire 1			Mode refractaire 2		
			$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$
EU anth.	Russie	1	28	1,30	21,5	406	1,64	61,8
	Suisse, Ita. N, GB	5	488	1,30	15,6	717	1,74	45,6
	Ita. du N.	10	153	1,80	21,1	448	1,58	78,2
EU feux	Russie	2	27	1,31	23,8	491	1,53	71,9
	Russie	8	154	1,80	29,3	366	1,47	76,3
Asie anth.	Sib. et côte est	13	86	1,76	26,6	353	1,49	75,3
Asie feux	Sibérie	14	58	1,48	27,1	393	1,63	77,8
Origine globale	Origine précise	N° panache	Mode refractaire 3					
			$n_3(cm^{-3})$	σ_3	$d_{m3}(nm)$			
EU anth.	Russie	1	42	1,75	130,0			
	Sui., Ita. N, GB	5	56	1,76	130,0			
	Ita. du N.	10	26	1,89	200,9			
EU feux	Russie	2	51	1,90	144,8			
	Russie	8	97	1,69	130,0			
Asie anth.	Sib. et côte est	13	160	1,48	150,1			
Asie feux	Sibérie	14	18	1,90	203,1			

TABLEAU 4.4 – Paramètres des modes utilisés pour modéliser les distributions à 280°C.

4.3.3 Analyse des échantillons prélevés in-situ

Au cours des vols mentionnés dans le tableau 4.5, des échantillons de particules d'aérosols ont été prélevés à l'aide d'un impacteur à deux étages permettant d'isoler les particules submicroniques de celles supermicroniques. L'impacteur était inséré, par un système de valves contrôlé par le logiciel Labview, dans un flux d'air pour une durée arbitraire en fonction des conditions de vols et des différents événements nuageux ou de pollution rencontrés. Une présentation plus approfondie de cet impacteur est faite par Matsuki et al. (2005a,b). Les diamètres de coupures à 50% sont 1.6 et 0.2 μm pour des particules de densité égale à un et pour chaque échantillonnage, deux substrats (décrits par Matsuki et al. (2010)) sont disposés à chaque étage de l'impacteur afin de recueillir les particules. Les échantillons in-situ ont ensuite été analysés au Laboratoire de Physico-Chimie

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

de l'Atmosphère à Dunkerque à l'aide de plusieurs instruments. Les particules submicroniques analysées ont d'abord été mises sous un microscope électronique à transmission (Transmission electron microscope, TEM, JEM-2010 FEF, JEOL) afin de produire des images à haute résolution. Elles ont ensuite été soumise à un spectromètre à rayons X (Energy Dispersion X-Ray spectrometer, EDX, JED2003, JEOL) dont le principe est de bombarder les particules avec des électrons accélérés par l'application d'une tension de 200 kV pour les faire passer dans un état « excité ». Pour quitter l'état d'excitation, les particules émettent des rayons X dont l'analyse des spectres permet ensuite l'identification des constituants des particules. Les particules supermicroniques sont elles aussi imagées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (Scanning Electron Microscope SEM, S-3000N, Hitachi) avant qu'un second EDX (EMAX-500, Horiba), accélérant les électrons à 20 kV, analyse leur composition élémentaire.

Origine	date	N°panache correspondant	début (UTC)	fin (UTC)	analyse submicro.	analyse supermicro.
Euro. anth	9 Avril	6	9 :39	9 :47	analysé	(a)
Feux Russes	9 avril	8	12 :04	12 :17	analysé	analysé
Mixte	8 avril	3 et 4	13 :52	13 :59	analysé	(a)
Asie anth.	11 avril	13	10 :42	10 :52	analysé	analysé
Asie feux	11 avril	14	10 :53	11 :30	(b)	analysé
Air polaire	11 avril		12 :16	12 :27	analysé	(a)

TABLEAU 4.5 – Liste des échantillons prélevés lors de certains vols de la campagne de printemps. Les heures de début et de fin d'échantillonnage sont indiquées tout comme les origines auxquelles ces échantillons sont reliés. (a) indique que les particules supermicroniques sont en trop faible nombre pour être analysées et (b) indique que les analyses ne sont pas disponibles.

Pour chaque substrat de particules submicroniques, trente particules choisies aléatoirement ont été analysées, cette méthode permettant de connaître qualitativement la composition relative des particules mais pas de la quantifier. En revanche, chaque particule supermicronique a été analysée, le nombre total de particules par substrat pouvant varier de seize à plus de cinquante en fonction de la durée d'échantillonnage et de la nature des masses d'air rencontrées. Néanmoins, il est important de noter que ces nombres de particules supermicroniques sont assez faibles du fait de la courte durée d'échantillonnage et des masses d'air dont les concentrations en particules supermicroniques sont faibles.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

L'échantillonnage des particules par cet impacteur visait dans un premier temps l'étude des noyaux de condensations et glacogènes (dont l'étude ne fait pas partie des objectifs de cette thèse). Ainsi, si sur la campagne 68 échantillonnages ont été effectués, seuls cinq ont concerné des panaches de pollution en ciel clair décrits jusqu'ici auxquels s'ajoute un sixième échantillonnage obtenu dans de l'air polaire (et donc supposé propre). Les caractéristiques de ces 6 échantillons sont décrites dans le tableau 4.5.

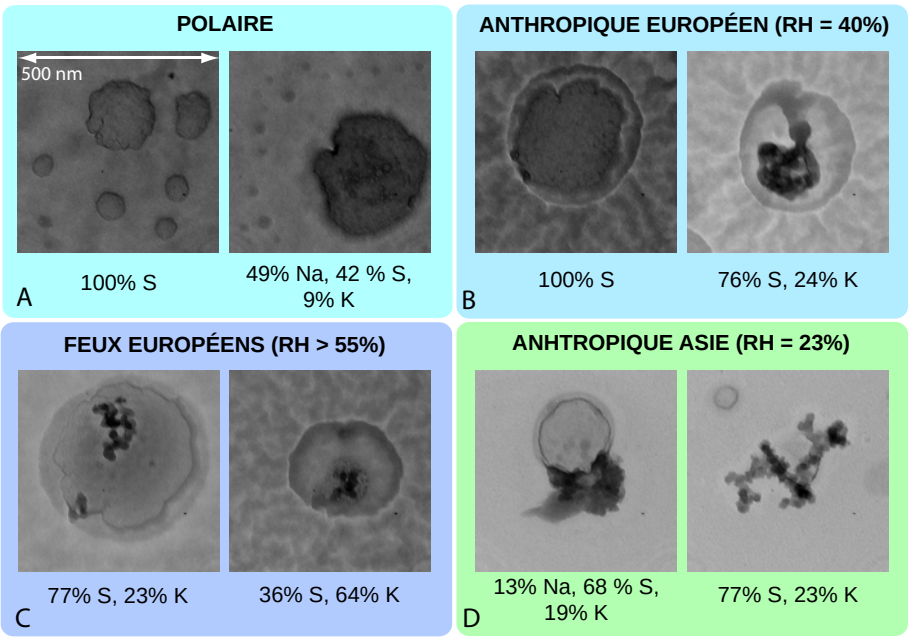


FIGURE *4.11 – Images prisent en microscopie électronique à transmission de particules échantillonnées durant les vols POLARCAT printemps. Les origines relatives aux images sont indiquées sur la figure, tout comme les compositions chimiques majoritaires des particules présentées. L'échelle est identique pour chaque image, chaque côté correspondant à 500 nm.*

L'analyse des images, présentées sur la figure 4.11, permet d'ors et déjà de constater que des différences apparaissent entre les origines. Ainsi, les particules submicroniques polaires (figure 4.11(A)) apparaissent sous forme « satellitaire » avec une grosse goutte entourée de gouttelettes qui sont une signature typique des sulfates que l'on trouve dans les particules vieillies. Entre les particules originaires des feux (figure 4.11(C)) et des émissions anthropiques (figures 4.11(B) et (D)), peu de différences apparaissent visuellement avec des particules qui comportent quasiment toutes des inclusions de suie très visibles. En revanche,

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

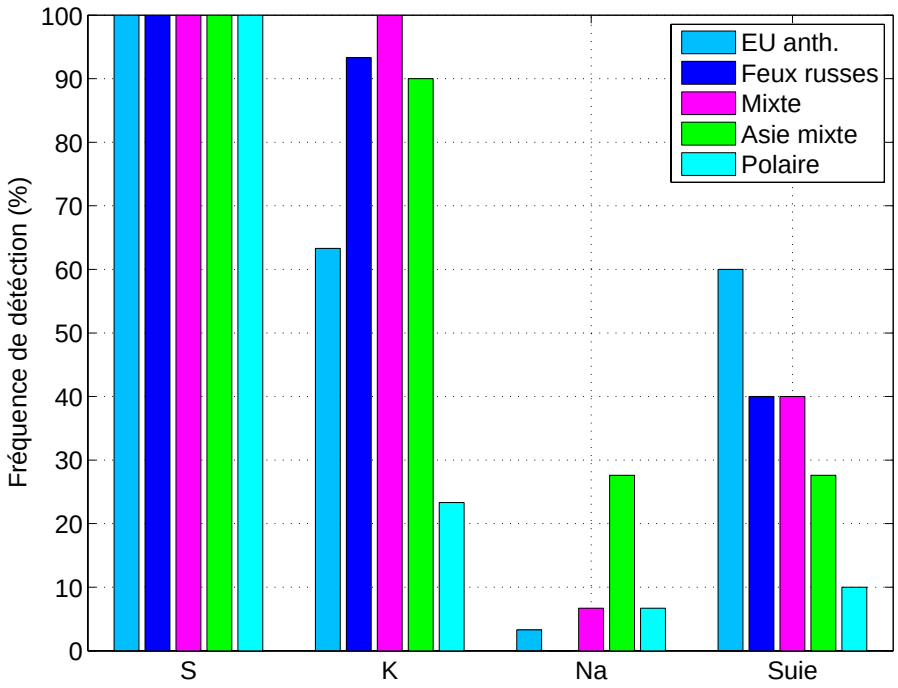


FIGURE *4.12 – Fréquence de détection des trois éléments les plus abondants (Soufre (S), Potassium (P) et Sodium (Na)) dans les échantillons prélevés pendant les vols et correspondants à des panaches de pollution identifiés au cours de cette étude.*

l'humidité relative semble influencer la visibilité d'une couche recouvrant la particule comme on peut le voir sur les images (D)(RH = 23%) et (B) et (C)(RH > 40%).

Comme expliqué précédemment, il est possible de déterminer la nature de certains composants des particules mais pas de quantifier leur présence au sein de celles-ci. Pour un échantillon de trente particules submicroniques nous introduisons donc le terme de fréquence de détection (FD) qui renseigne la fréquence suivant laquelle un composé est trouvé parmi les trente particules. Une FD de 100% signifiant donc que le composé a été identifié dans chacune des trente particules. Le soufre (S) est systématiquement mesuré avec une FD de 100% du fait qu'il entre dans la composition de l'acide sulfurique mais également des sulfates, deux composés largement présents dans les particules d'aérosols notamment lorsque celles-ci ont été soumises à un transport sur de longues distances. Le potassium (K) est considéré comme un marqueur de feux de biomasse (Andreae, 1983) bien qu'il puisse être mesuré, en plus faible quantité toutefois, dans les émissions anthropiques (Guazzotti et al.,

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

2003). Il apparaît sur la figure 4.12 que presque l'intégralité des particules issues des feux de forêts contiennent du K alors que cette valeur descend à 60% pour les particules d'origine anthropique et 20% pour les particules polaires. Les panaches dits mixtes semblent également très influencés par les feux de forêt puisque celui originaire d'Europe voit chacune de ses particules contenir du K alors que celui issu de l'Asie à une DF du K très élevée également (90%). Enfin, il est important de noter la présence fréquente d'inclusions de suie dans de nombreuses particules issues des feux ou d'émissions anthropiques.
Les résultats des analyses de particules supermicroniques sont plus délicats. En effet, il ne semble pas qu'une corrélation avec l'origine supposée des particules se dégage. Ceci peut s'expliquer par les très faibles concentrations mesurées pour les particules de diamètre supérieur à 1 μm mais aussi par la possibilité que ces particules ne soient pas issues des sources déterminées précédemment mais proviennent de sources plus locales. Les particules supermicroniques issues des feux ou des émissions anthropiques auraient, dans cette hypothèse, sédimenté durant le transport.

4.4 Étude de cas : vieillissement d'un aérosol anthropique européen

Dans la deuxième partie de ce chapitre, une masse d'air anthropique émise par des villes polonaises et échantillonnée pendant trois vols consécutifs les 9, 10 et 11 avril est étudiée ainsi à l'aide des paramètres qui y sont reliés.

4.4.1 Évolution des propriétés du panache

La caractérisation de l'évolution du panache de pollution se fera dans un premier temps à travers l'étude des propriétés physiques et notamment des distributions en nombre des particules de l'aérosol anthropique à température ambiante et à 280°C avant que dans un second temps, les évolutions du coefficient d'absorption et du CO en excès ne soient présentées.

4.4.1.1 Les distributions ambiantes et réfractaires

Pour chacun des trois vols concernés, il apparait que la masse d'air anthropique polonaise a été échantillonnée deux fois, du fait notamment des trajectoires des vols qui, ces jours-ci, étaient strictement linéaires, l'avion passant toujours à une altitude comprise entre 4 et 5 km dans la zone contaminée par le panache de pollution anthropique. La figure 4.13 présente les distributions moyennes mesurées et paramétrées

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

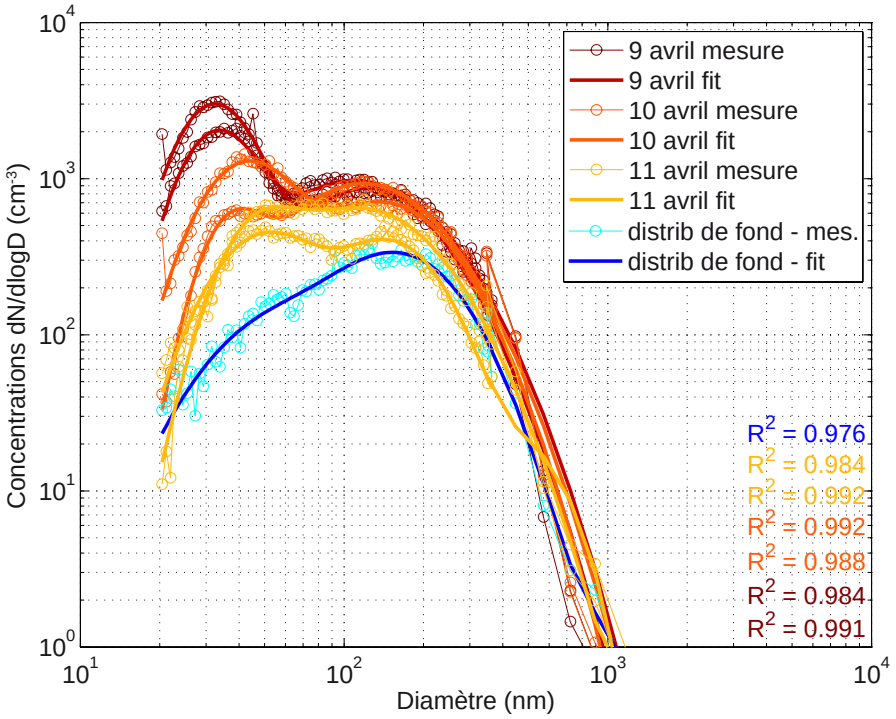


FIGURE *4.13 – Distributions observées et modélisées à température ambiante du panache anthropique transporté depuis la Pologne vers l'Arctique. Une distribution de fond est également tracée à titre indicatif.*

relatives aux six périodes de mesures identifiées comme polonaises dans le tableau 4.2. Une distribution typique de masse d'air polaire non polluée est également tracée sur la figure 4.13 pour mettre en avant l'augmentation de la concentration dans les modes Aitken et accumulation.

On distingue clairement sur la figure 4.13 l'évolution du mode Aitken dont la concentration décroit parallèlement à une augmentation du diamètre moyen du mode du 9 au 11 avril. Le mode accumulation suit la même évolution, bien que cela soit moins visible sur la figure 4.13. En effet, le diamètre moyen du mode accumulation passe de 104 à 133 nm alors que la concentration du mode chutait de 588 à 285 particules par cm^{-3}. Les paramètres des modes calculés par un modèle basé sur la somme de trois lois log-normales sont renseignés dans le tableau 4.6, les distributions ainsi modélisées étant également représentées sur la figure 4.13. Du tableau 4.6 ressort que la concentration du mode Aitken décroit de 860 à 165 particules par cm^{-3} du 9 au 11 avril alors que le diamètre moyen passe de 33 à 51 nm. La figure 4.14 montre l'évolution du diamètre moyen du mode Aitken au cours des six périodes de mesure en fonction de l'âge du panache estimé par FLEXPART. Les points suivent

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	Age FLEXPART (jour)	N° panache	Mode Aitken			Mode accumulation		
			$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$
9 avril	4,7	6	621	1,35	33,1	621	1,80	108,8
	5,3	7	981	1,36	32,2	556	1,80	124,9
10 avril	6,7	11	132	1,29	38,2	595	1,80	118,5
	7,1	9	495	1,44	42,7	402	1,69	139,4
11 avril	7,6	12	139	1,36	48,4	407	1,79	116,5
	7,8	16	203	1,53	51,1	172	1,50	149,4
Air polaire			85	1,80	61,2	158	1,62	165,6

TABLEAU 4.6 – Paramètres des modes Aitken et accumulation relatifs aux distributions de la masse d'air polonaise mesurée à température ambiante lors des trois derniers vols de la campagne. Les paramètres de la distribution d'air polaire sont également indiqués.

clairement une croissance exponentielle sur la gamme de diamètre considérée ici (30-55 nm) avec un coefficient de corrélation élevé ($R^2 = 0.91$).

Selon la paramétrisation exponentielle relative à l'évolution du diamètre moyen du mode Aitken, et en supposant que l'évolution suit une loi exponentielle du diamètre d'émission jusqu'aux diamètres considérés ici ($\sim$ 50 nm), les particules émises seraient caractérisées par un diamètre moyen de 14,4 nm. Ce résultat est en accord avec plusieurs études au travers desquelles sont observés des modes de nucléation en environnement urbain (Whitby, 1978; Wehner and Wiedensohler, 2003; Zhang et al., 2004; Hussein et al., 2005; Costabile et al., 2009). L'évolution du mode Aitken semble dominée par un processus de coagulation auquel doit s'ajouter une part de croissance par condensation comme présenté par Tunved et al. (2004). Une simulation de l'évolution de la distribution soumise au processus de coagulation au cours du temps est présentée dans la section 4.4.2.

Les distributions réfractaires relatives au panache anthropique polonais sont représentées dans la figure 4.15(B) afin d'être comparées aux distributions mesurées à température ambiante (figure 4.15(A)). Les caractéristiques des modes réfractaires sont données dans le tableau 4.7. Il semble que les particules constituant le mode Aitken disparaissent après chauffage de la gamme de mesure du SMPS tandis que le mode accumulation semble évoluer de façon similaire à température ambiante et à 280°C. En effet, on a vu qu'à température ambiante, le mode accumulation voit son diamètre moyen croître de 104 à 133 nm (Δdiamètre = 29 nm), soit une augmentation de 29% de son diamètre moyen, toujours entre le 9 et le 11 avril. Après désorption, le mode réfractaire associé au mode accumulation voit son diamètre

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

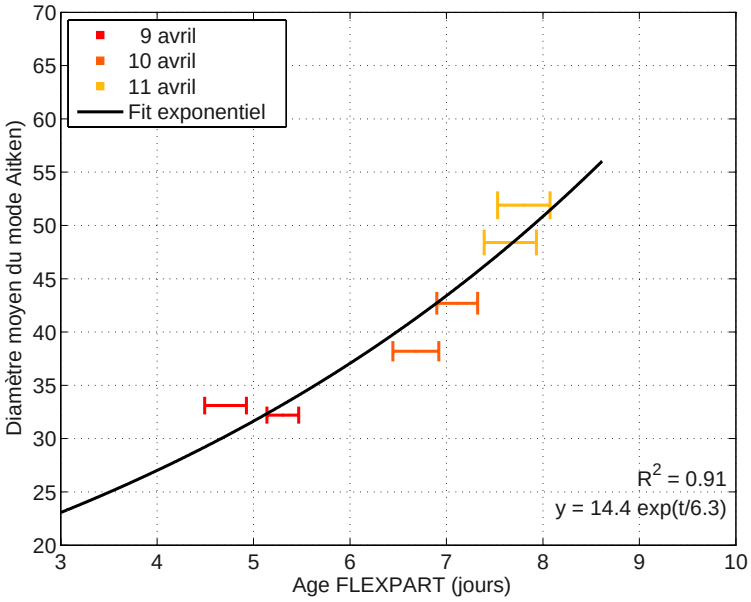


FIGURE *4.14 – Évolution du diamètre moyen du mode Aitken modélisé en fonction de l'âge du panache estimé par FLEXPART.*

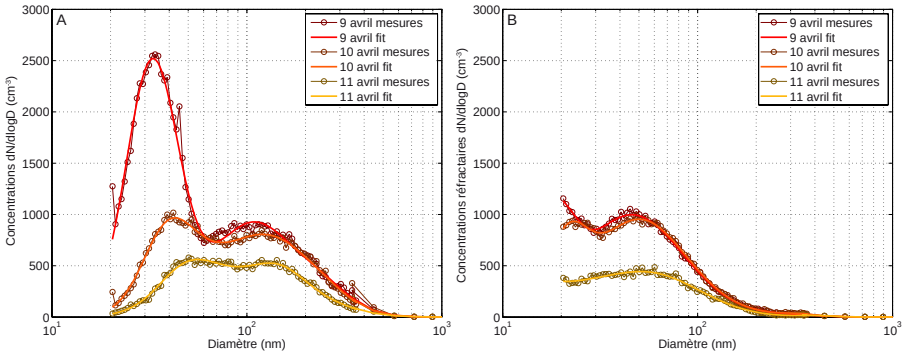


FIGURE *4.15 – Distributions (A) à température ambiante et (B) à 280°C, mesurées et modélisées, relatives au panache polonais.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	Age FLEXPART (jour)	N° panache	Mode Aitken			Mode accumulation		
			$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$
9 avril	4,7	6	131	1,30	20,1	634	1,75	45,2
	5.3	7	1999	1,48	10,7	607	1,80	50,4
10 avril	6,7	11	136	1,33	18,0	601	1,69	50,4
	7,1	9	261	1,31	21,5	539	1,79	52,7
11 avril	7,6	12	91	1,49	23,7	324	1,78	59,0
	7,8	16	218	1,80	15,6	196	1,80	59,1

TABLEAU 4.7 – Paramètres des modes Aitken et accumulation relatifs aux distributions de la masse d'air polonaise mesurée à 280°C lors des trois derniers vols de la campagne.

moyen augmenter de 43,4 à 58,9 nm (Δdiamètre = 15.5 nm) soit une augmentation de 33%. Cette augmentation du diamètre moyen du mode réfractaire pourrait avoir une influence directe sur la volatilité mais, du fait de la probable implication du processus de condensation dans le vieillissement des particules, la variation de la volatilité sera discutée plus loin.

4.4.1.2 Rapport de mélange ΔCO et coefficient d'absorption

Les autres paramètres mesurés, le rapport de mélange en excès ΔCO et le coefficient d'absorption σ_{abs} ainsi que leurs évolutions en fonction de l'âge des masses d'air sont présentés respectivement dans les figures 4.16 et 4.17. Ainsi, il apparait que ces deux paramètres décroissent exponentiellement au cours du temps. Le ΔCO décroit avec une période τ de 8,9 jours et, si l'on considère que cette décroissance est effective tout au long du transport, ceci correspondrait à une émission au niveau des sources de 171 ppbv. Ce résultat peut être comparé aux mesures présentées par Nédélec et al. (2003) qui estiment la concentration en CO dans la couche limite de l'Europe centrale entre 150 et 270 ppbv. Il est important de noter néanmoins que le coefficient de corrélation est assez faible, ceci pouvant s'expliquer par l'hétérogénéité supposée du panache.

σ_{abs} décroit de façon plus rapide en fonction du temps comme le montre sa période estimée à 2,9 jours. Cette différence entre les deux paramètres peut s'expliquer par le dépôt sec (sédimentation par gravitation) qui peut affecter les particules dans lesquelles se trouve la matière absorbante au contraire du CO qui, en tant que gaz plutôt inerte, n'est pas touché par ce processus. Cette paramétrisation conduit à une estimation, pour le coefficient d'absorption de la lumière, de 2.85 Mm^{-1} au

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

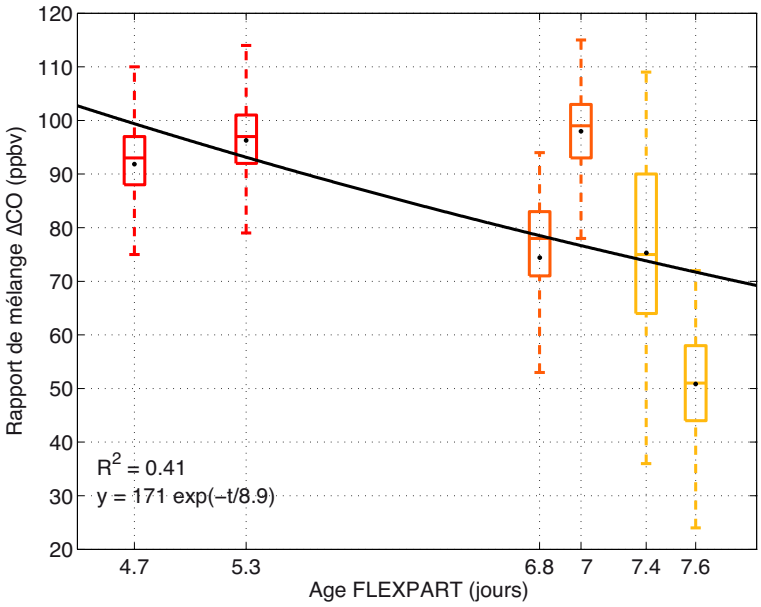


FIGURE *4.16 – Boxplots représentatives de la concentration de CO en excès pour les six périodes relatives au panache anthropique polonais. Les boxplots symbolisent les 25e, 50e et 75e percentiles par les traits pleins constituant les boîtes alors que les pointillés s'étendent jusqu'au 5e et 95e percentiles. Un fit exponentiel est également tracé.*

niveau de la source, soit 246 ng m^{-3} de carbone suie (si on considère le carbone suie comme composé unique de la matière absorbante). Cette masse de carbone suie est en accord avec les mesures effectuées par McMeeking et al. (2010) à proximité de zones urbaines européennes.

4.4.2 Modélisation du vieillissement par coagulation

La coagulation a été mise en avant comme étant le processus influençant le plus l'évolution de la distribution en taille des particules. Afin de vérifier cette hypothèse, la modélisation de ce processus a été effectuée et est présentée dans cette section. Pour modéliser l'évolution de la distribution en taille de particules du panache de pollution anthropique polonais, un modèle simple de coagulation brownienne, disponible dans le livre de Jacobson (2005) a été implémenté. Dans un premier temps, ce modèle sera donc brièvement décrit avant que les résultats ne soient présentés.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

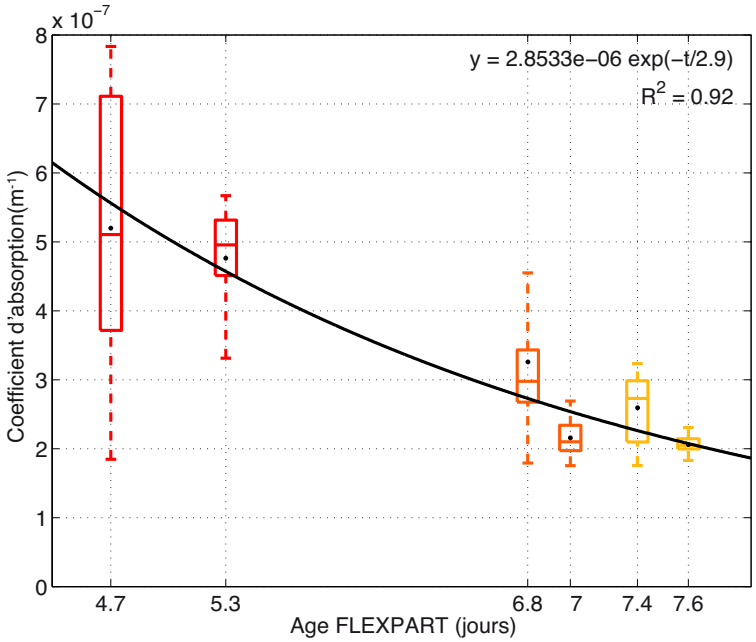


FIGURE *4.17 – Boxplots représentatives du coefficient d'absorption pour les six périodes relatives au panache anthropique Polonais. Les boxplots symbolisent les 25^e, 50^e et 75^e percentiles par les traits pleins constituant les boîtes alors que les pointillés s'étendent jusqu'au 5^e et 95^e percentiles. Un fit exponentiel est également tracé.*

4.4.2.1 Présentation du modèle

Le modèle de Jacobson (2005) utilise plusieurs paramètres à commencer par le coefficient de coagulation $K_{i,j}$ qui est propre à deux particules de diamètre i et j. $K_{i,j}$ s'exprime en cm^3s^{-1} et est obtenu à partir de plusieurs propriétés du milieu dans lequel a lieu la coagulation mais également à partir des propriétés des particules concernées. Une démarche détaillée du calcul de ce coefficient est donnée dans Jacobson (2005) et ne sera donc pas reproduite ici. Néanmoins, l'équation conduisant au calcul de $K_{i,j}$ est donnée ci dessous (Fuchs, 1964) :

$$K_{i,j} = \frac{4\pi(r_i + r_j)(D_i + D_j)}{\frac{r_i+r_j}{r_i+r_j+\sqrt{\delta_i+\delta_j}} \frac{4(D_i+D_j)}{\sqrt{\bar{v}_{pi}^2+\bar{v}_{pj}^2}(r_i+r_j)}} \tag{4.2}$$

avec r le rayon, D le coefficient de diffusion, $\bar{v}_p$ la vitesse thermique et δ la distance moyenne parcourue par une particule.
L'évolution de la concentration d'un canal k centré sur un diamètre précis s'obtient par calcul récursif, la distribution calculée pour un pas de temps donnée étant utilisée comme point de départ pour calculer la distribution au temps t+dt. Pour modéliser

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

la coagulation, on considérera deux termes principaux symbolisant la production et la disparition de particules dans le canal k. Ainsi, les particules produites dans un canal k suite à la coagulation entre des particules issues des canaux k-j et j et contribuant à une concentration en nombre à un temps t, $n_{k,t}$, s'obtiendra grâce à la relation suivante :

$$n_{prod(k,t)} = \frac{1}{2} dt \sum_{j=1}^{k} K_{k-j,j} n_{k-j,t} n_{j,t-dt} \tag{4.3}$$

où k symbolise le canal considéré, dt le pas de temps choisi pour le modèle, $n_{k-j,t}$ et $n_{j,t-dt}$ les concentrations respectivement dans le canal k-j au temps t et dans le canal j au pas de temps précédent (t-dt). Le terme de production est divisé par deux puisque deux particules qui coagulent forment une seule nouvelle particule.
Le terme de disparition s'exprime selon la relation suivante :

$$n_{dispa(k,t)} = -dt \sum_{j=1}^{\infty} K_{k,j} n_{k,t} n_{j,t-dt} \tag{4.4}$$

Il apparaît que le terme de disparition est fonction de la concentration du canal k,$n_{k,t}$, autrement dit le paramètre recherché. En assemblant les différentes parties de l'équation, la concentration n d'un canal k au temps t sera donc :

$$n_{k,t} = n_{k,t-dt} + n_{prod(k,t)} - n_{dispa(k,t)} \tag{4.5}$$

En regroupant les $n_{k,t}$ on obtient donc l'équation suivante :

$$n_{k,t} = \frac{n_{k,t-dt} + \frac{1}{2} dt \sum_{j=1}^{k} K_{k-j,j} n_{k-j,t} n_{j,t-dt}}{1 + dt \sum_{j=1}^{\infty} K_{k,j} n_{j,t-dt}} \tag{4.6}$$

On peut ainsi déterminer la concentration d'un canal k à un temps donné. Néanmoins, cette relation ne respecte pas la conservation du volume qui est pourtant une caractéristique physique du processus de coagulation. En effet, l'équation (4.6) fait coaguler deux particules de diamètres i et j entre elles et la production correspond au canal relatif au diamètre i+j. Ce qui, si on se rapporte au volume n'est pas correct. L'équation (4.6) peut donc être réécrite en termes de concentrations volumiques (Jacobson, 2005) :

$$v_{k,t} = \frac{v_{k,t-dt} + \sum_{j=1}^{k} K_{k-j,j} v_{k-j,t} n_{j,t-dt}}{1 + dt \sum_{j=1}^{\infty} K_{k,j} n_{j,t-dt}} \tag{4.7}$$

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

où $v_{k,t}$ correspond au produit de la concentration en nombre du canal k, $n_{k,t}$, et du volume v_k d'une particule de diamètre k. Le terme de production n'est plus divisé par deux puisqu'on parle désormais de volume et non plus de particules.
Pour la coagulation en nombre, il est assez simple d'attribuer un canal à la nouvelle particule créée. En effet, en attribuant aux canaux des diamètres proportionnels au plus petit canal, la particule formée se verra forcément attribuer un canal déjà existant. Pour la coagulation sur les volumes, la nouvelle particule créée a de grandes chances de se retrouver entre deux canaux. C'est pourquoi un nouveau paramètre $f_{i,j,k}$ est introduit (Jacobson, 2005) :

$$f_{i,j,k} = \begin{cases} \left(\frac{v_{k+1}-V_{i,j}}{v_{k+1}-v_k}\right) \cdot \frac{v_k}{V_{i,j}} & v_k \leq V_{i,j} < v_{k+1} \quad k < N_B \\ 1 - f_{i,j,k-1} & v_{k-1} < V_{i,j} < v_k \quad k > 1 \\ 1 & v_k \leq V_{i,j} \quad k = N_B \\ 0 & \text{tout autre cas} \end{cases} \tag{4.8}$$

$f_{i,j,k}$ permet de partager le volume de la particule nouvellement créée entre les deux canaux voisins. La valeur de $f_{i,j,k}$ est donc comprise entre zéro et un. Pour savoir à quels canaux attribuer la nouvelle particule, il faut rajouter une itération dans la relation calculant $v_{k,t}$. Ainsi, la relation finale utilisée pour calculer l'évolution de la distribution anthropique polonaise soumise au processus de coagulation est la suivante :

$$v_{k,t} = \frac{v_{k,t-dt} + \sum_{j=1}^{k} \left(\sum_{i=1}^{k-1} f_{i,j,k} K_{i,j} v_{i,t} n_{j,t-dt} \right)}{1 + dt \sum_{j=1}^{N_B} f_{k,j,k} K_{k,j} n_{j,t-dt}} \tag{4.9}$$

Pour résumer, l'équation (4.9) se résout en trois temps. A chaque itération sur k sont déterminées les particules produites dans ce canal lorsque les particules de diamètres j rencontrent celles de diamètres i (numérateur de l'équation (4.9)) ainsi que les particules qui vont disparaitre de ce canal en coagulant avec d'autres de diamètres j (dénominateur de l'équation (4.9)). A l'exception des particules créées dont le volume dépasse celui du dernier canal, le volume total de matière est donc conservé.

4.4.2.2 Résultats de la modélisation

Afin d'initialiser le modèle, la moyenne des deux distributions mesurées lors du premier vol (9 avril) a été prise en compte et un pas de temps de cent secondes a été utilisé. Les distributions moyennes relatives aux deuxième et troisième vols (10

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

et 11 avril) mesurées et calculées sont présentées sur la figure 4.18. Les paramètres des modes Aitken et accumulation relatifs aux distributions observées et modélisées sont renseignés dans le tableau 4.8. L'évolution du diamètre moyen du mode Aitken est bien reproduite malgré une sous-estimation du modèle puisque après 45 et 65 h, les diamètres moyens du mode mesurés étaient 40,4 et 50,1 nm alors que le modèle a déterminé des diamètres moyens de 38,8 et 41,1 nm, respectivement. Concernant le mode accumulation, même constat, à savoir que l'évolution du diamètre moyen du mode est bien représentée mais sous-estimée. Ainsi, les diamètres moyens mesurés du mode accumulation sont de 128,9 et 134,0 nm après 45 et 65 h alors que la simulation calcule des diamètres moyens de 115,0 et 118,1 nm. Le processus de coagulation permet donc d'expliquer 48,6% des 17,5 nm d'augmentation du diamètre moyen du mode Aitken et 9,7% des 17,6 nm d'augmentation du mode accumulation.

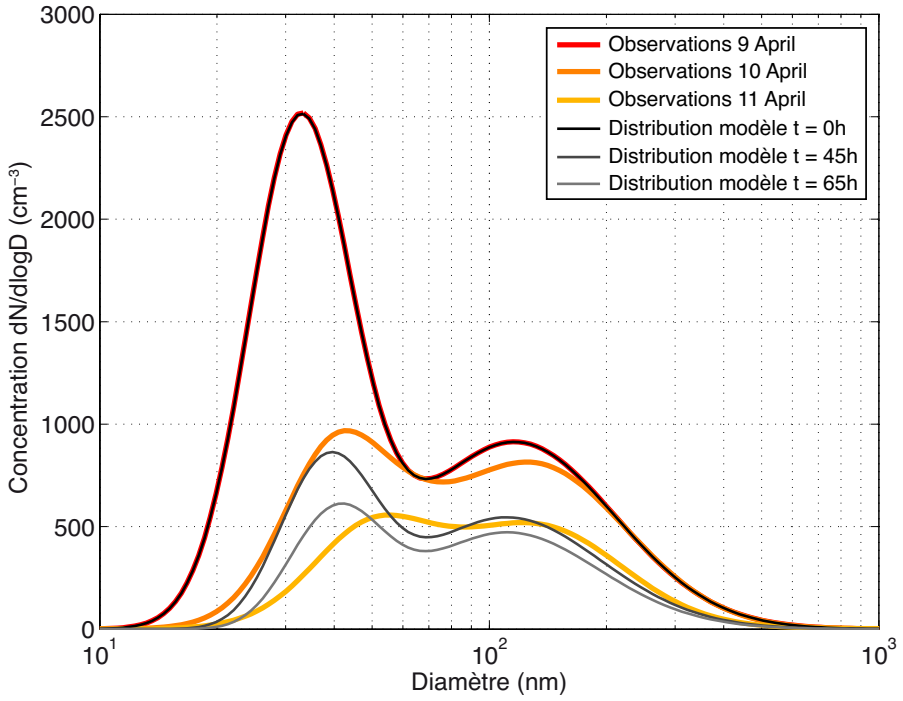


FIGURE *4.18 – Distributions relatives au panache anthropique polonais observées et modélisées à l'aide du modèle de coagulation décrit dans la section précédente.*

La figure 4.19 présente l'évolution des diamètres moyens des modes (A) Aitken et (B) accumulation observés et simulés (en ne prenant en compte que la coagulation) au cours du temps. La sous-estimation du grossissement des diamètres moyens des deux modes apparait clairement. Il semblerait donc qu'en plus de ce processus de coagulation, le vieillissement des particules de pollution soit influencé par un

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date		mode Aitken			mode accumulation		
		$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$
10 April	Obs.	313	1,36	40,4	493	1,75	128,9
	Sim.	237	1,30	38,8	321	1,70	115,0
11 April	Obs.	174	1,45	50,1	285	1,63	134,0
	Sim.	166	1,30	41,1	263	1,65	118,1

TABLEAU 4.8 – Comparaison entre les paramétrisations des modes Aitken et accumulation relatifs aux distributions mesurées et simulées.

processus de condensation. La condensation de matière volatile sur les particules devrait être associée à une augmentation de $F_{volatile}$, du fait de la significative augmentation de volume apportée. Pourtant, il a été constaté (figure 4.20) que $F_{volatile}$ était constante durant les deux premiers jours de mesure et qu'elle a même chuté le 11 avril. Si l'on regarde les volumes de particules à température ambiante et à 280°C reportés dans le tableau 4.9, on constate que le volume réfractaire reste constant alors que le volume à température ambiante diminue d'environ 30%, principalement lors du dernier jour. Ce comportement peut être expliqué par la dispersion du panache qui se trouve dilué dans l'atmosphère arctique. La constance du volume réfractaire pourrait, elle, correspondre à une compensation de la dilution par le vieillissement de la matière organique qui devient donc réfractaire avec le temps.

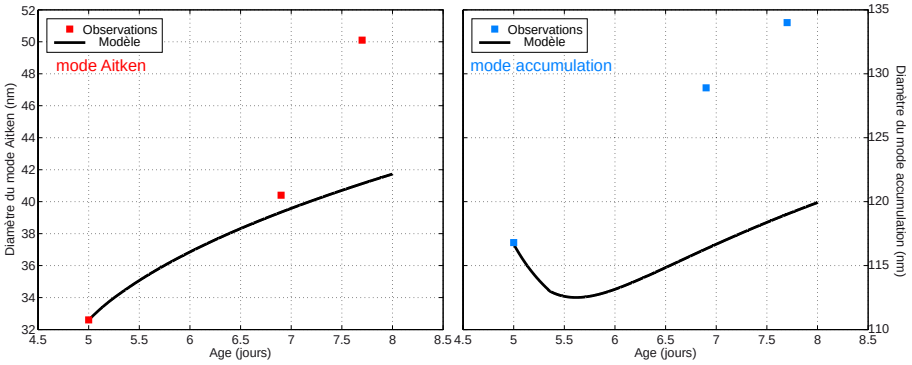


FIGURE *4.19 – Evolution en fonction du temps des diamètres moyens des modes Aitken (à gauche) et accumulation (à droite) observés (points colorés) et simulés (ligne noire) en ne prenant en compte que la coagulation.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

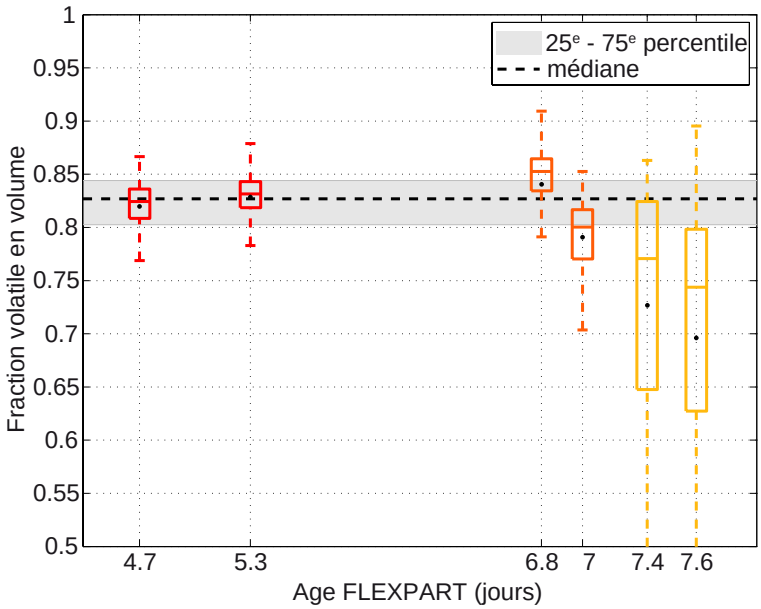


FIGURE *4.20 – Boxplots représentatives de la fraction du volume volatile pour les six périodes relatives à la masse d'air anthropique polonaise. Les boxplots symbolisent les 25e, 50e et 75e percentiles par les traits pleins constituant les boîtes alors que les pointillés s'étendent jusqu'au 5e et 95e percentiles. En gris clair sont symbolisés les percentiles entre le 25e et le 75e pour l'ensemble des données alors que la médiane est symbolisée en pointillés noirs.*

Du fait de l'absence de données sur les concentrations en gaz condensables qui pourraient avoir été présentes lors des mesures, il n'est pas possible de modéliser ce processus. Néanmoins, l'évolution du diamètre D_p d'une particule soumise à un processus de condensation est donnée par l'équation suivante (Seinfeld and Pandis, 1998) :

$$\frac{dD_p}{dt} = \frac{4D_i M_i}{RTD_p\rho_p} f(Kn,\alpha)(p_i - p_{eq}) \tag{4.10}$$

où D_i et M_i sont le coefficient de diffusion et le poids moléculaire du gaz pouvant condenser sur les particules, R la constante des gaz parfaits, T la température du milieu dans lequel évolue la particule, ρ_p sa masse volumique, $f(Kn,\alpha)$ un coefficient de correction prenant en compte les effets de discontinuité. Enfin, p_i correspond à la pression partielle de l'espèce condensable loin de la particule alors que p_{eq} représente la pression totale de gaz à l'équilibre.

Il ressort de l'équation (4.10) que l'évolution du diamètre D_p d'une particule soumise à un processus de coagulation est inversement proportionnelle à la valeur de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date	Volume à T ambiante (μm^3 cm^{-3})	Volume à 280°C (μm^3 cm^{-3})
9 April	1,07 ± 0,15	0,19 ± 0,04
	1,22 ± 0,14	0,21 ± 0,04
10 April	1,17 ± 0,26	0,24 ± 0,04
	1,19 ± 0,20	0,18 ± 0,05
11 April	0,90 ± 0,18	0,25 ± 0,13
	0,80 ± 0,25	0,23 ± 0,10

TABLEAU 4.9 – Volumes moyens de particules à température ambiante et à 280°C relatifs aux six passages dans le panache anthropique européen.

D_p. Ainsi, l'augmentation des diamètres (ΔD_p) relative aux deux modes n'est pas en accord avec la théorie puisqu'il a été postulé que la condensation était responsable de ΔD_p de 9 et 15,9 nm pour les modes Aitken et accumulation respectivement. Ce raisonnement part néanmoins du principe que la condensation n'a lieu qu'après la coagulation, ce qui n'est pas le cas dans la nature bien entendu. Une deuxième simulation a été effectuée pour évaluer l'impact du découplage des deux processus. Ainsi cette deuxième simulation a été initiée avec des diamètres modaux moyens correspondant à la somme des diamètres initiaux observés le 9 avril et des ΔD_p dûs à la condensation estimée lors de la première simulation. La différence entre les deux simulations correspondant donc à l'ordre dans lequel les deux processus ont été pris en compte. Les résultats de la seconde simulation montrent une surestimation des deux diamètres modaux moyens. En effet, les diamètres moyens des modes Aitken et accumulation sont simulés à 51,4 et 142,7 nm, pour des diamètres observés de 50,1 et 134,0 nm. Il est donc possible d'imaginer que si les deux processus avaient été modélisés simultanément, les ΔD_p relatives aux deux processus auraient été différentes et augmenteraient l'impact de la coagulation.
En revanche, puisque la coagulation est le seul processus qui l'influence, l'évolution de la concentration des modes est bien représentée. En effet, le mode Aitken mesuré voit sa concentration chuter de 801 cm^{-3} à 313 puis 174 cm^{-3} après 45 et 65 h respectivement. La simulation de la coagulation donne, elle, des concentrations assez similaires de 237 et 166 cm^{-3}. Pour le mode accumulation, les mesures décroissent de 588 vers 493 et 285 cm^{-3} alors que la simulation donne des concentrations de 321 et 263 cm^{-3}. On constate que pour les deux modes, la concentration est sous-estimée après 45h alors qu'elle se rapproche des mesures après 65h. La figure 4.21 représente l'évolution de la concentration des modes Aitken et accumulation en fonction du

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

temps, qu'ils soient observés ou simulés.

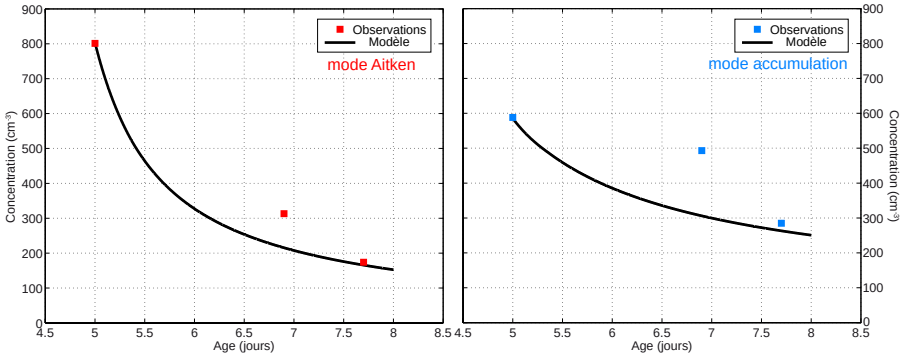


FIGURE *4.21 – Evolution en fonction du temps de la concentration des modes Aitken (à gauche) et accumulation (à droite), observés et simulés en ne prenant en compte que la coagulation.*

Pour conclure sur ce phénomène de vieillissement observé sur trois jours consécutifs, il apparait, au vue des résultats de la modélisation du phénomène et des paramètres liés, que la coagulation a joué un rôle dans la croissance des particules au cours de ces 3 jours. Néanmoins, une partie non négligeable de cette croissance ne pouvant être expliquée par la coagulation, elle a été reliée au processus de condensation qui laisse à penser que ces particules d'aérosols de pollution anthropique transportées vers l'Arctique étaient associées à d'importantes quantités de gaz condensables. Merlaud et al. (2011) ont montré que lors de la première mesure du panache le 9 avril, une concentration significative de dioxyde d'azote (NO_2) était présente et probablement issue des mêmes sources que les particules. En régissant avant l'Ozone (O_2) lorsque le rayonnement solaire n'intervient pas, NO_2 peut s'oxyder en nitrate (NO_3) qui, en réagissant avec du NO_2 peut se transformer en N_2O_5 (Mentel et al., 1996). N_2O_5 et NO_3 sont capables d'interagir ensuite avec les particules d'aérosols en se condensant à leur surface (Mentel et al., 1996; Hallquist et al., 2000; Benton et al., 2010). Ces concentrations mesurées de NO_2 peuvent donc confirmer la probable condensation de matière sur les particules présentes et ainsi expliquer l'augmentation des diamètres moyens des modes particulaires plus importante que ce que la coagulation pouvait expliquer. Par ailleurs, bien qu'on ne puisse que le supposer du fait de l'absence de mesure, la présence d'autres espèces chimiques telles que les sulfates, connus pour être émis par des sources anthropiques (Heald et al., 2006; Singh et al., 2010; Schmale et al., 2011) et leurs interactions avec les particules d'aérosols (Kerminen et al., 2000; Wehner and Wiedensohler, 2003; Zhang et al., 2004), est fortement supposée.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

4.5 Conclusions

Au cours de cette étude seize cas de pollution transportée à l'extrême nord de la Suède ont été recensés en se basant sur des concentrations anormalement élevées en CO. Les origines géographiques de ces panaches de pollution ont ensuite été identifiées à l'aide du modèle lagrangien de retro-trajectoire FLEXPART comme étant (i) l'Europe, à travers de la pollution anthropique émise de plusieurs sources (Pologne, Italie, Grande Bretagne) et des feux de forêts en Russie au nord de la mer Noire, et (ii) l'Asie où d'importantes émissions anthropiques sur la côte est du continent et d'intenses feux de forêt en Sibérie ont influencé nos mesures.
Les distributions à température ambiante et à 280°C des deux panaches de pollution issus de feux de forêts en Russie ont été étudiées. Sur les deux cas traités, les distributions ambiantes apparaissent monomodales et centrées à un diamètre moyen de 127 nm. Ces panaches sont associés à une faible fraction volatile moyenne de 0,66±0,07 et un coefficient d'absorption de la lumière élevé de 0,84±0,32 en accord avec la littérature.
Les panaches de pollution anthropique originaires d'Europe (hormis la Pologne, cas traité séparément) ont ensuite été analysés. Contrairement aux feux russes, les trois panaches anthropiques européens n'ont pas une origine identique et ont donc été traités séparément. Il apparait que deux des trois panaches pourraient avoir été influencés en partie par les feux russes traités précédemment, des similitudes apparaissant notamment dans les diamètres moyens des modes à température ambiante et à 280°C avec ceux des distributions reliées aux feux russes. S'ajoute à cela la valeur moyenne pour les deux panaches de la fraction volatile égale à 0,65±0,06 et de σ_{abs} qui s'élève à 0,53±0,21 Mm^{-1}. En comparaison, la troisième masse d'air anthropique, qui est originaire d'un mélange de masses d'air de plusieurs pays, est beaucoup plus volatile ($F_{volatile}$ = 0,80±0,03) et beaucoup moins absorbante puisque les mesures sont toutes en dessous de la limite de détection du PSAP (0,17 Mm^{-1}). Ces derniers résultats correspondent à la littérature en ce qui concerne les panaches de pollution anthropique.
Si on s'attarde désormais sur les panaches asiatiques, les trois panaches sélectionnés étaient désignés par FLEXPART comme originaires des feux sibériens principalement. Les travaux de De Villiers et al. (2010) nous ont permis de distinguer deux différents cas : un panache principalement influencé par les feux sibériens et un second qui voit se mélanger la contribution des feux sibériens avec celle des émissions anthropiques de la côte est de l'Asie (le troisième n'étant pas traité du fait de la présence d'artefacts dans les données SMPS/VSMPS). De façon similaire aux feux russes mentionnés plus haut, la distribution en nombre des particules

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

d'aérosols relative au panache subissant principalement l'influence des feux sibériens peut être décrite de façon quasiment monomodale avec un mode centré à 154 nm qui se désorbe vers deux modes réfractaires centrés à 27 et 78 nm. Lorsque l'on se concentre sur les distributions (à température ambiante et à 280°C) relatives au panache influencé par les feux sibériens et par les émissions anthropiques, on s'aperçoit que le mode très concentré observé pour les feux sibériens dans le panache précédent est également présent et centré sur des diamètres identiques, tout comme les modes réfractaires (141 nm à température ambiante et 27 et 75 nm à 280°C). A ces modes associés aux feux sibériens s'ajoutent un mode à température ambiante centré à 253 nm et un mode réfractaire centré à 150 nm dont les concentrations sont très proches. Ces particules, très certainement issues d'émissions anthropiques, pourraient être composées de matière organique vieillie (qui aurait donc acquis des propriétés réfractaires), c'est en tout cas ce qui ressort de la littérature où des évolutions similaires ont été identifiées.

Des échantillons de particules ont été prélevés à l'aide d'un impacteur au cours de certains vols, permettant de séparer les particules submicroniques des supermicroniques. Ainsi, quatre échantillons correspondaient à des panaches identifiés (un pour les feux russes, un pour le panache asiatique influencé par les feux, un pour le panache asiatique aux deux influences et un pour un panache mixte) alors qu'un cinquième correspondant à de l'air polaire était également étudié à titre de comparaison. L'étude des particules impactées (faite à posteriori), d'abord à l'aide d'un microscope électronique à transmission pour imager les particules, puis avec un spectromètre à rayon-X pour connaitre la composition élémentaire, a mis en avant des particularités pour chaque échantillon. Ceux prélevés dans l'air polaire se distinguaient grandement des autres par leur morphologie en forme de « satellites » et par leurs compositions. Les images microscopiques n'ont en revanche pas permis de différencier les panaches de pollution entre eux mais laissaient néanmoins apparaitre des inclusions de type suie. La différence entre les échantillons de particules de pollution s'est donc faite sur les compositions chimiques et plus particulièrement la fréquence de détection du potassium (K) dans les particules analysées. Ce marqueur des feux de forêt se retrouve dans quasiment toutes ($> 90\%$) les particules correspondantes aux panaches de feux alors que la fréquence de détection descend à 60% pour le panache influencé par les émissions anthropiques. Enfin, seules 20% des particules prélevées (et analysées) dans la masse d'air polaire contenaient du K.

Une étude de cas nous a permis de nous focaliser sur un panache de pollution issu d'émissions anthropiques en Pologne et qui a été traversé durant trois vols consécu-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tifs les 9, 10 et 11 avril 2008. Le CO en excès relatif à ce panache et mesuré deux fois par vol décroit exponentiellement avec le temps, tout comme σ_{abs} alors que l'évolution du diamètre moyen du mode accumulation augmente de façon exponentielle sur la gamme de diamètres observée (30-50 nm). La fraction volatile quant à elle reste constante lors des deux premiers jours avant de chuter lors du dernier jour, en raison du volume de particules à température ambiante qui diminue alors que le volume de particules réfractaires reste constant. Les distributions en nombre de particules font apparaitre une diminution très significative de la concentration du mode Aitken alors que son diamètre moyen augmente avec l'âge du panache. De façon similaire mais moins marquée, le mode accumulation voit sa concentration faiblir et son diamètre moyen augmenter. Les distributions réfractaires correspondantes voient disparaitre complètement le mode Aitken désorbé quelque soit la date de mesure du panache alors que le mode accumulation, après désorption, reste dans la gamme de mesure du SMPS et montre une diminution de sa concentration et une croissance de son diamètre moyen, trahissant le vieillissement des particules réfractaires le composant. Afin de déterminer l'importance du processus de coagulation dans l'évolution des distributions en nombre des particules au cours du temps, une modélisation de ce processus a été effectuée. Il s'avère qu'après les 65h qui séparent la première distribution de la dernière, des écarts de 51,4 et 90,3% apparaissent dans la simulation de l'augmentation du diamètre moyen des modes Aitken et accumulation et les observations, alors que les concentrations sont similaires. Il semble donc qu'un autre processus, nommément la condensation, ait pris part de façon importante à l'évolution des diamètres moyens des modes. Des concentrations élevées de NO_2 ont été mesurées par Merlaud et al. (2011) durant l'échantillonnage de ce panache le 9 avril, qui probablement accompagnées de dioxyde de soufre, ont pu jouer le rôle de vapeur condensable. Ce résultat soulève néanmoins une contradiction puisque la condensation de gaz sur les particules devrait entrainer une augmentation de la fraction volatile en volume du panache et on a vu que c'est l'inverse qui se produisait. Une partie de l'augmentation de volume réfractaire peut être expliqué par le vieillissement de la matière organique puisque ce processus déjà été observé par de précédentes études (Pratt and Prather, 2009; Ehn et al., 2007). Le processus de dispersion semble être responsable de la diminution du volume de particules à température ambiante. La dispersion a surement impacté également le volume de matière réfractaire mais cette perte a pu être compensé par le vieillissement d'une partie de la matière organique qui serait ainsi devenue réfractaire.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Chapitre 5

Étude des aérosols pollués transportés vers le Groenland, impact du dépôt humide.

Sommaire

Introduction **83**

5.1 Présentation de la campagne **84**

5.2 Identification des panaches de pollution **85**

5.2.1 Étude des séries temporelles de CO 85

5.2.2 Origine géographique des sources de pollution 86

5.3 Propriétés des panaches de pollution d'Amérique du nord . **93**

5.3.1 Propriétés chimiques 94

5.3.2 Propriétés physiques 94

5.3.3 Propriétés optiques 107

5.4 Etude du processus de dépôt humide **110**

5.4.1 Outils d'analyse 110

5.4.2 Le dépôt humide 110

5.5 Conclusions **112**

Introduction

Ce chapitre traite des mesures effectuées durant la campagne POLARCAT été. Dans un premier temps, cette dernière sera brièvement présentée, puis les panaches de pollution échantillonnés seront isolés à l'aide des mesures de CO, avant que leurs origines soient identifiées à l'aide du modèle lagrangien de rétro-trajectoire FLEXPART dans un second temps. L'analyse des propriétés chimiques et physiques des particules constituant ces aérosols de pollution sera ensuite présentée avec pour but de caractériser les masses d'air polluées qui sont transportées vers le Groenland.

Enfin, le processus de déposition humide qui a eu lieu durant le transport de ces aérosols vers l'Arctique sera détaillé.

5.1 Présentation de la campagne

La partie été de la campagne POLARCAT s'est déroulée du 30 juin au 14 juillet 2008. Basée à Kangerlussuaq au Groenland, l'équipe scientifique a réalisé 12 vols de mesures (voir la figure 5.1). La durée moyenne d'un vol est de 3h30 et, hormis les vols des 8 juillet et 10 juillet entre lesquels l'avion a fait une halte à Narsarsuaq, l'ensemble des vols a décollé et atterri à Kangerlussuaq. La première partie de la campagne visait plutôt à mesurer le transport de pollution depuis le continent américain alors que la deuxième partie était, elle, majoritairement dédiée à l'étude des masses d'air d'origines asiatiques.

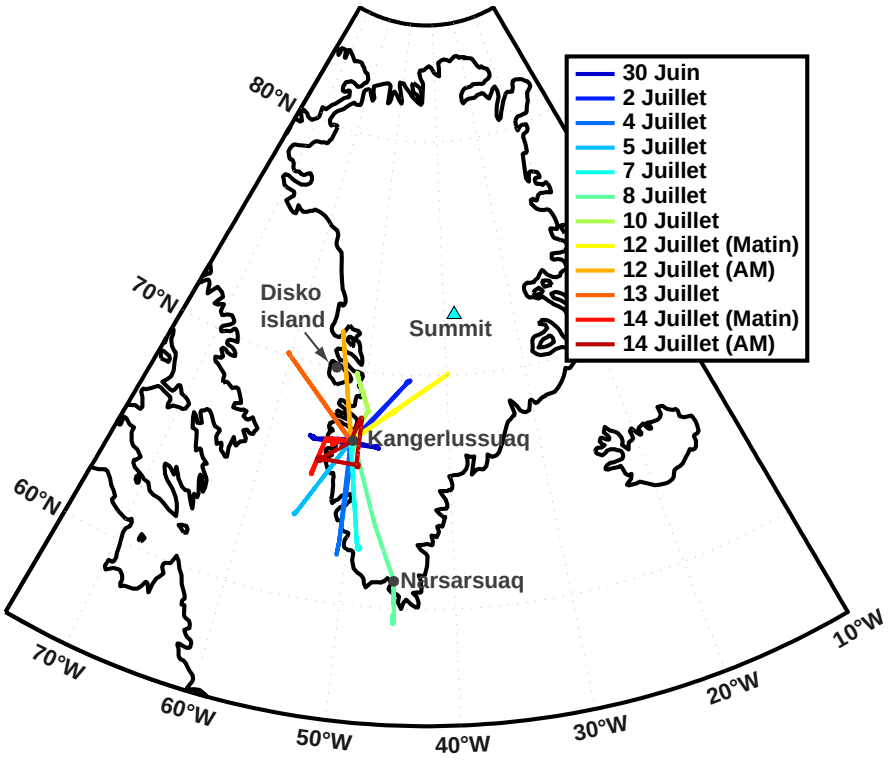


FIGURE *5.1 – Carte représentative des vols de la campagne POLARCAT été.*

Comme cela a été précisé dans le chapitre précédent, la campagne POLARCAT printemps avait pour objectif, en plus de l'observation des masses d'air polluées vers l'Arctique, l'étude des interactions entre les aérosols et les nuages. La campagne PO-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

LARCAT été ne visait, quant à elle, que l'étude des masses d'air polluées, certaines sondes microphysiques (nephélomètre polaire, CPI, 2DP) laissant leur place sur/à bord de l'avion à des instruments supplémentaires (CPC3025, FSSP-300, nephélomètre et AMS) pour caractériser les propriétés chimiques et optiques des particules d'aérosols. La liste des instruments présents lors de la campagne été est dressée dans le tableau 5.1. A ces instruments s'ajoutent quelques instruments fixés sur l'avion et permettant de mesurer des paramètres plus conventionnels comme par exemple la pression, la température, l'altitude et la position GPS.

Instrument	Paramètre mesuré	Propriétaire de l'instrument
CPC 3010	conc. totale $D_p > 0.01$ μm	LaMP
CPC 3025	conc. totale $D_p > 0.003$ μm	CNRM
SMPS (x2)	distribution $0.02 < D_p < 0.46$ μm	LaMP
GRIMM 1.108 (x2)	distribution $0.3 < D_p < 2$ μm	LaMP
PCASP 100-X	distribution $0.1 < D_p < 3$ μm	SAFIRE
FSSP 300	distribution $0.3 < D_p < 20$ μm	SAFIRE
FSSP 100	distribution $3 < D_p < 47$ μm	SAFIRE
2DC	distribution $25 < D_p < 750$ μm	SAFIRE
Nephelometre	diffusion de la lumière	CNRM
PSAP	absorption de la lumière	LaMP
AMS	composition chimique	MPI Mainz
Mozart	concentration en CO et O_3	SAFIRE

TABLEAU 5.1 – Liste des instruments présents à bord de l'ATR-42 lors de la campagne POLARCAT été. En rouge apparaissent les instruments qui n'étaient pas montés sur/à bord de l'avion lors de la campagne de printemps. LaMP : Laboratoire de Météorologie Physique ; CNRM : Centre National de Recherches Météorologiques ; SAFIRE : Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement ; MPI : Max Planck Institute for Chemistry, Mainz, Allemagne.

5.2 Identification des panaches de pollution

5.2.1 Étude des séries temporelles de CO

De la même façon que pour la campagne de printemps, les séries temporelles du rapport de mélange de CO ont été analysées. Les pics de CO au delà de la valeur de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

fond de 90 ppbv (Real et al., 2007) permettant de signaler un épisode de pollution transporté vers l'Arctique et échantillonné par les instruments à bord de l'avion. Lors des premiers vols de la campagne (du 30 juin au 7 juillet), 14 pics de CO ont été identifiés. Néanmoins, en mettant à part un pic présentant un ΔCO de 50 ppbv, aucun des autres n'atteint plus de 20 ppbv, laissant penser que les masses d'air rencontrées étaient issues de sources de faibles émissions ou que la pollution échantillonnée avait été émise depuis de nombreux jours. La figure 5.2 présente les séries temporelles pour tous les vols de la campagne du ΔCO, de l'humidité relative, de l'altitude et des concentrations totales mesurées par les sondes FSSP-100 pour détecter les nuages d'eau liquide et 2DC pour détecter les nuages de glace. Les pics de concentration du CO sélectionnés ont été surlignés en orange. Une liste des différents panaches identifiés ainsi que les heures d'échantillonnage et leur concentration en CO au dessus de la valeur de fond sont indiquées dans le tableau 5.2. La grande variabilité de la concentration en CO dans les parties d'atmosphère traversées nous permet d'ors et déjà de constater, de la même façon que pour la campagne de printemps, l'aspect très filamenteux de l'atmosphère autour du Groenland. Il semble en effet que les panaches de pollution transportés vers les régions arctiques soient soumis à des processus (dynamique et physique) qui les fragmentent et conduisent à cette grande variabilité dans les mesures.

5.2.2 Origine géographique des sources de pollution

Afin de déterminer l'origine géographique, mais aussi la nature, des pics de CO, les résultats des simulations du modèle Lagrangien de retro-trajectoires FLEXPART ont été utilisés. Ainsi, à l'échelle continentale, les séries temporelles des contributions par continent (présentées en détail dans la chapitre 3, figure 3.12) ont permis d'établir une première étape dans la localisation des émissions. La figure 5.3 présente les séries temporelles des contributions continentales pour les sources anthropiques et de feux de forêts. Les simulations tendent à montrer que 3 continents contribuent principalement à la pollution transportée au Groenland. Fort logiquement, les deux continents les plus proches, l'Amérique du nord et l'Europe, envoient de nombreux panaches vers le Groenland. Par ailleurs, plusieurs panaches sont transportés depuis l'Asie, et ce, en passant par de très hautes latitudes. Ainsi, cinq pics sont associés aux émissions anthropiques européennes (en bleu ciel sur la figure 5.3), cinq aux feux asiatiques (en vert foncé) et sept et vingt aux émissions anthropiques (en jaune/orangé) et aux feux d'Amérique du Nord (en rouge), respectivement.

Enfin, 2 masses d'air dont les pics de CO sont influencés par plusieurs continents ont été isolées. La première correspond à une association d'aérosols de pollution

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

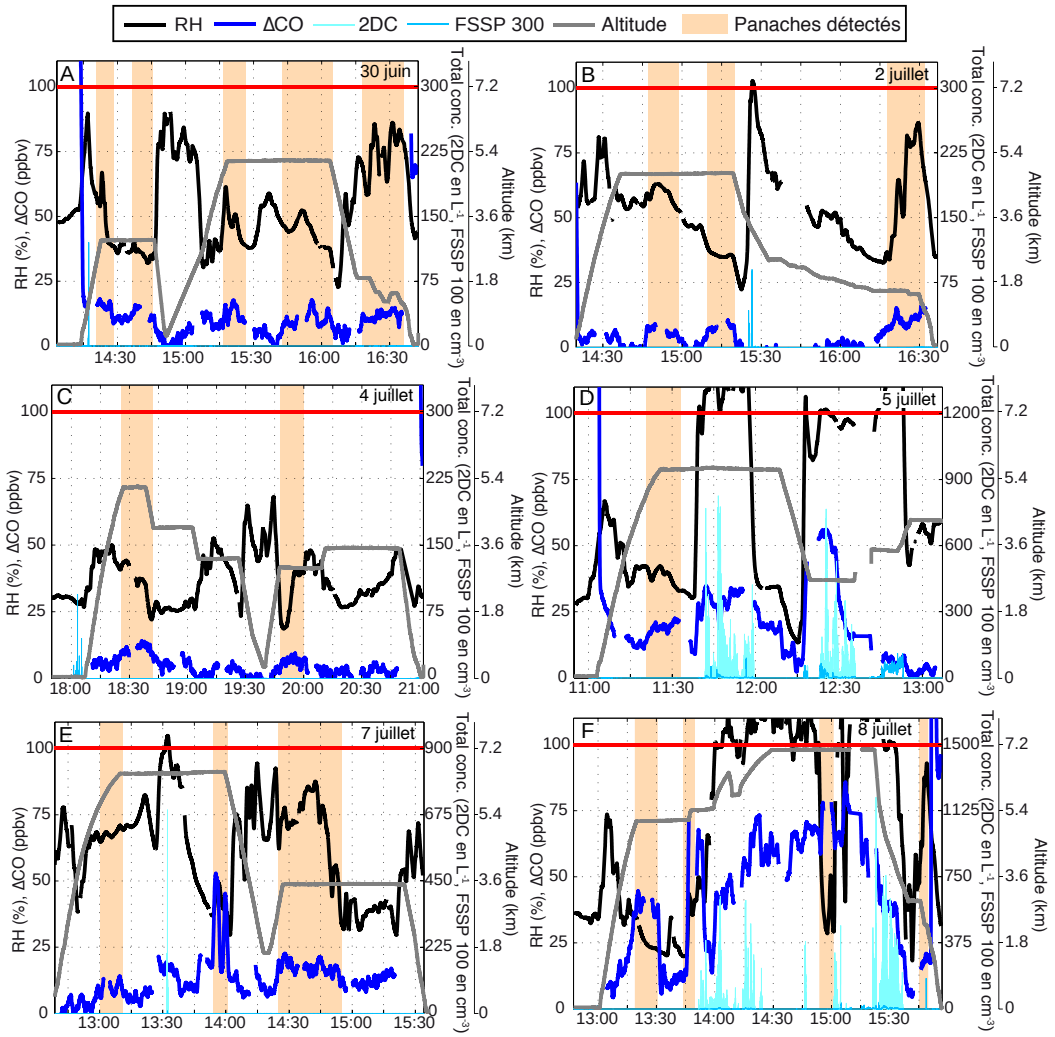


FIGURE *5.2 – Séries temporelles du ΔCO, de l'humidité relative et des concentrations mesurées par les sondes FSSP-100 et 2DC pour les vols de la campagne POLARCAT été. Les panaches détectés à l'aide des pics de ΔCO sont surlignés en orange.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

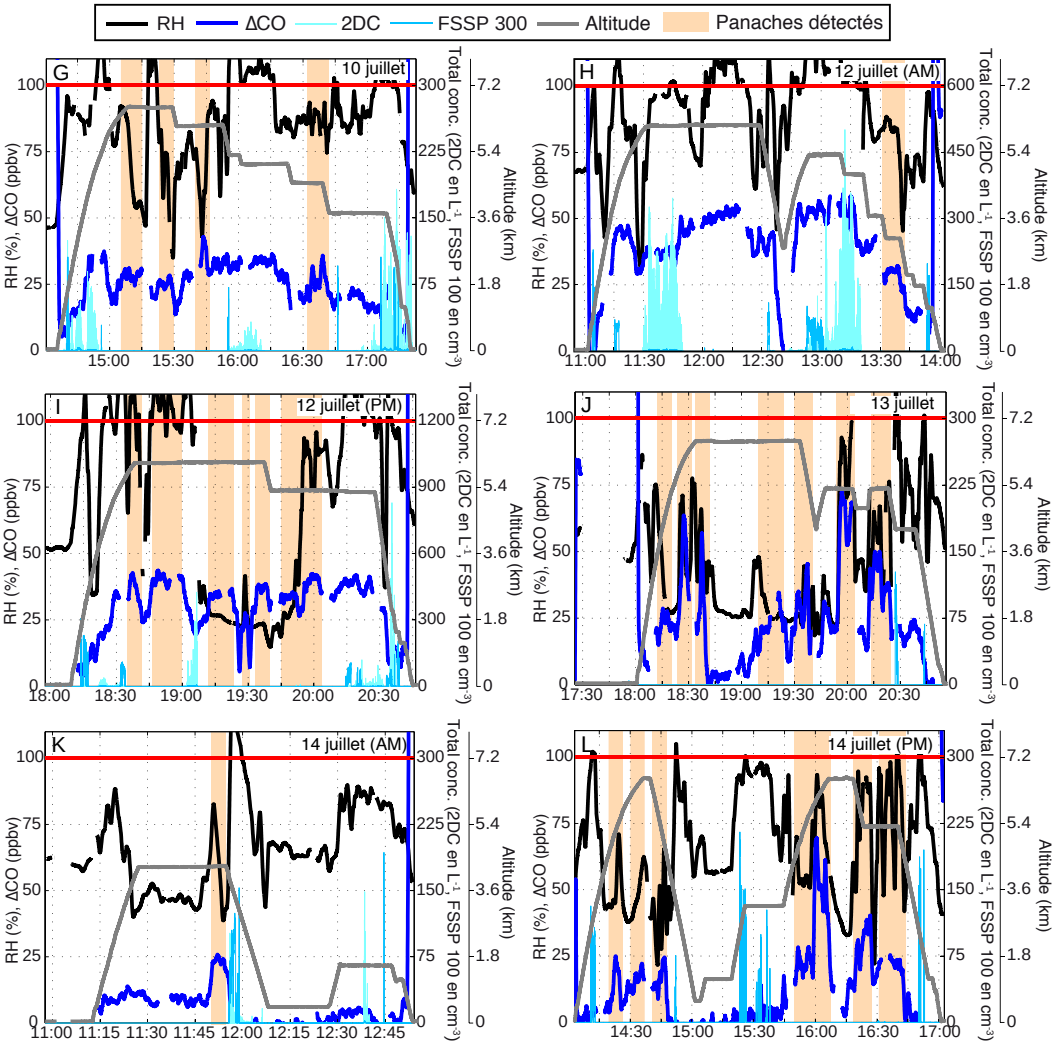


FIGURE 5.2 – *(suite)*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	N° panache	début (HH :MM)	fin (HH :MM)	durée (min)	ΔCO mesuré (ppbv)	ΔCO FLEXPART (ppbv)
30 juin	1	14 :21	14 :28	7	15,3 ± 4,5	2.8 ± 0,7
	2	14 :37	14 :45	8	13,5 ± 4,2	3.7 ± 0,5
	3	15 :17	15 :26	9	13,0 ± 5,8	5.4 ± 1,7
	4	15 :43	16 :05	22	10,5 ± 5,0	3.2 ± 2,9
	5	16 :18	16 :36	18	11,7 ± 4,6	2.9 ± 0,8
2 juillet	6	14 :47	14 :59	12	6,0 ± 4,5	8.0 ± 0,8
	7	15 :10	15 :20	10	7,0 ± 4,5	8.8 ± 1,7
	8	16 :18	16 :33	15	11,7 ± 9,9	1.4 ± 0,2
4 juillet	9	18 :26	18 :43	17	10,8 ± 4,6	10.4 ± 3,9
	10	19 :48	20 :00	12	6,6 ± 4,7	8.0 ± 1,1
5 juillet	11	11 :21	11 :33	12	19,3 ± 4,5	9.6 ± 1,1
7 juillet	12	13 :00	13 :11	11	9,5 ± 6,2	2.5 ± 0,6
	13	13 :53	14 :01	8	33,4 ± 15,0	6.4 ± 0,1
	14	14 :25	14 :50	25	17,7 ± 6,3	7.9 ± 3,2
8 juillet	15	13 :18	13 :32	14	37,4 ± 8,1	4.8 ± 2,3
	16	13 :45	13 :55	10	51,2 ± 21,9	62.5 ± 29,1
	17	14 :53	15 :00	7	70,4 ± 10,2	43.8 ± 2,2
	18	15 :45	15 :52	7	54,8 ± 148,1	21.0 ± 11,6
10 juillet	19	15 :05	15 :15	10	28,1 ± 4,6	20.2 ± 4,1
	20	15 :23	15 :30	7	25,1 ± 5,0	24.5 ± 9,5
	21	15 :40	15 :47	7	35,0 ± 7,5	33.3 ± 0,9
	22	16 :32	16 :43	11	26,1 ± 6,5	14.8 ± 5,7
12 juillet AM	23	13 :31	13 :43	12	28,0 ± 5,9	20.4 ± 7,0
12 juillet PM	24	18 :36	18 :46	10	32,6 ± 7,5	35.4 ± 5,1
	25	18 :47	18 :59	12	40,3 ± 4,9	30.5 ± 7,3
	26	19 :13	19 :22	9	33,5 ± 5,3	34.8 ± 2,0
	27	19 :25	19 :32	7	34,4 ± 6,0	28.8 ± 5,3
	28	19 :35	19 :42	7	35,3 ± 5,9	28.8 ± 5,3
	29	19 :46	20 :03	17	35,5 ± 6,6	31.2 ± 8,1

TABLEAU 5.2 – Liste des panaches sélectionnés à partir des pics de ΔCO observés durant les vols de la campagne POLARCAT été.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	N° panache	début (HH :MM)	fin (HH :MM)	durée (min)	ΔCO mesuré (ppbv)	ΔCO FLEXPART (ppbv)
13 juillet	30	18 :14	18 :20	6	24.4 ± 4,8	23.5 ± 6,5
	31	18 :22	18 :30	8	38.6 ± 16,4	22.1 ± 5,2
	32	18 :34	18 :43	9	19.2 ± 17,9	69.7 ± 37,6
	33	19 :10	19 :25	15	23.4 ± 7,2	28.1 ± 11,5
	34	19 :30	19 :41	11	28.5 ± 10,6	39.1 ± 35,4
	35	19 :54	20 :04	10	58.6 ± 14,5	85.5 ± 46,1
	36	20 :14	20 :25	11	39.0 ± 8,9	30.5 ± 19,5
14 juillet AM	37	11 :50	11 :55	5	23.0 ± 5,2	46.2 ± 16,9
14 juillet PM	38	14 :20	14 :26	6	14.6 ± 8,4	38.4 ± 22,7
	39	14 :30	14 :37	7	16.1 ± 5,4	22.1 ± 10,0
	40	14 :40	14 :48	8	16.1 ± 8,2	25.7 ± 15,6
	41	15 :50	16 :07	17	35.4 ± 18,7	51.2 ± 18,3
	42	16 :18	16 :27	9	9.7 ± 7,2	73.4 ± 21,5
	43	16 :31	16 :44	13	19.8 ± 10,0	19.9 ± 24,1

TABLEAU 5.2 – (suite)

issus de feux asiatiques (50%) et d'Amérique du nord (25%) ainsi que d'émissions anthropiques européennes (25%), alors que la deuxième masse d'air partage ses origines entre les feux asiatiques et nord-américains. Les concentrations en CO mesurées et simulées par FLEXPART par continent sont tracées sous forme de barres sur la figure 5.4.

Pour localiser de façon plus précise les sources des émissions, il est important d'étudier les sensibilités d'émissions potentielles ainsi que les empreintes PES (pour plus de détail, voir chapitre 3, figure 3.11). Ces graphiques doivent être considérés prudemment du fait de l'échelle logarithmique utilisée pour les couleurs mais également, dans le cas des empreintes, en raison des conditions utilisées pour déterminer les valeurs. En effet, seules les particules simulées par FLEXPART qui descendent en dessous de 100 m (c'est à dire dans la première couche du modèle) sont considérées comme émises à la position donnée. Dans le cas de feux intenses, les émissions peuvent parfaitement sortir de cette couche par convection et être transportées ensuite sur de plus grandes distances, FLEXPART ne simulant donc pas ces émissions. Dans le cas d'émissions anthropiques en revanche, il est moins probable qu'elles sortent de cette couche.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

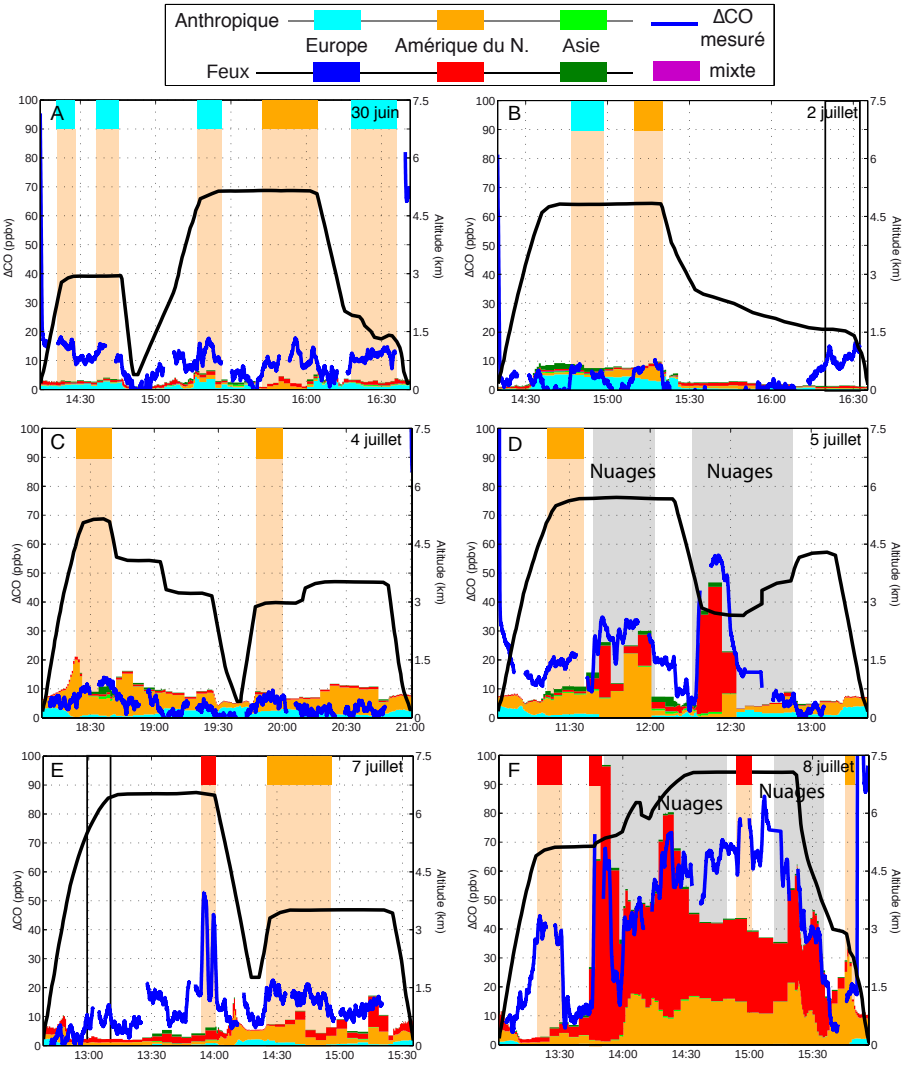


FIGURE *5.3 – Séries temporelles du ΔCO et des contributions continentales (anthropiques ou de feux) simulées par FLEXPART pour les vols de la campagne POLARCAT été. Les pics de CO surlignés dans la figure 5.2 et répertoriés dans la table 5.2 ont été reproduits et colorés fonction de leur origine : bleu ciel pour une origine anthropique européenne, orange et rouge pour les émissions nord-américaines anthropiques et de feux et vert foncé pour une origine de feux asiatiques. Les passages où les pics de CO n'ont pas été considérés en raison de la présence de nuages sont grisés.*

A partir de ces deux étapes de localisation des émissions, trois origines ont été isolées. La première origine concerne l'Europe et est observée lors des trois premiers vols de la campagne. Des particules d'aérosols de pollution sont transportées depuis l'Is-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

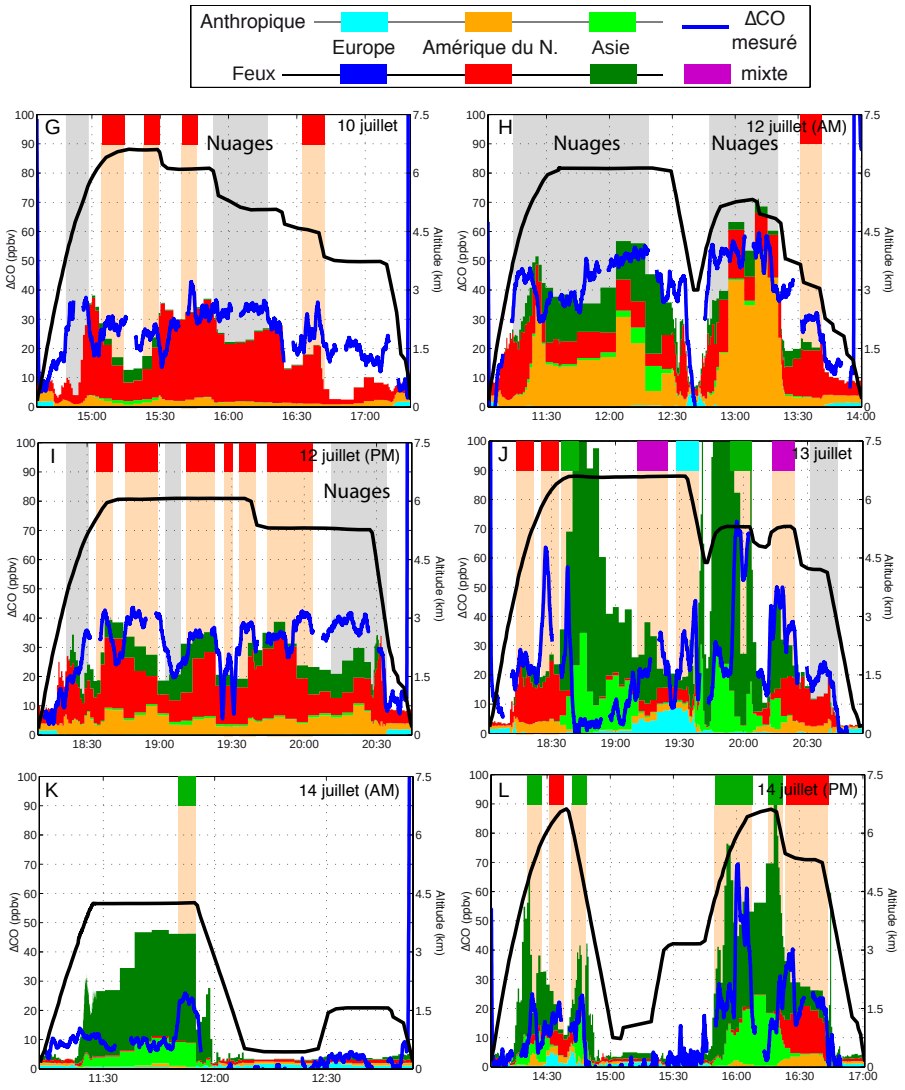


FIGURE *5.3 – (suite)*

lande voisine et éventuellement la Scandinavie. Ici, le conditionnel est d'usage du fait des faibles valeurs d'excès (14.7 ppbv observés en moyenne). En fin de campagne (13 et 14 juillet), les masses d'air asiatiques, influencées par des feux de forêt en Sibérie, sont principalement responsables des pics de CO observés. Enfin tout au long de la campagne, des feux de forêt canadien ont dominé les émissions issues d'Amérique du nord, les émissions anthropiques de la côte est des États-Unis contribuant, plus rarement, à des excès de CO. Les propriétés des masses d'air en fonction de leurs origines continentales (Asie, Europe) ont été étudiées par Schmale et al. (2011), c'est pourquoi pour cette étude, il a été fait le choix de se focaliser sur les masses d'air

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

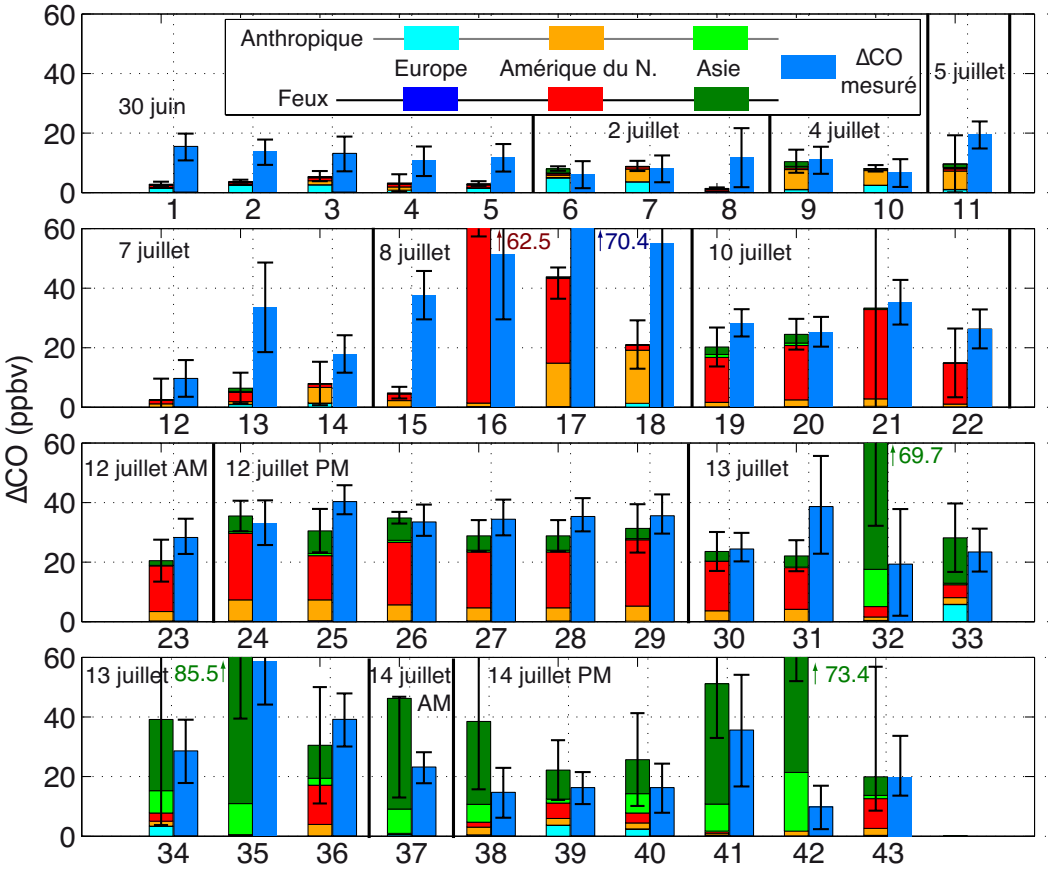


FIGURE *5.4 – Excès dans les concentrations en CO, par rapport à la concentration de fond, mesuré et simulé par FLEXPART. Les valeurs dépassant 60 ppbv sont indiquées numériquement.*

d'origines nord-américaines. Néanmoins, des informations globales sur les origines asiatiques et européennes seront données à titre de comparaison. L'étude des propriétés des particules de pollution transportées de ces continents vers le Groenland est l'objet de la section suivante. Du fait de sa complémentarité avec cette étude, l'article de Schmale et al. (2011) a été ajouté dans l'annexe B.

5.3 Propriétés des panaches de pollution d'Amérique du nord

Une fois les parties des vols relatives aux panaches de pollution sélectionnées, l'étude des propriétés des particules va permettre de mettre en avant les caractéris-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tiques spécifiques de ces panaches et ainsi d'en déduire les conséquences possibles pour les régions arctiques. Si les propriétés physiques des particules permettent d'estimer la répartition en taille des particules transportées ainsi que de la matière réfractaire, les propriétés chimiques permettent de confirmer l'origine anthropique ou de feux et également d'évaluer l'importance du recouvrement des particules. Enfin, les propriétés optiques donnent une information sur les propriétés d'absorption des particules et donc sur leur teneur en carbone suie.

5.3.1 Propriétés chimiques

Des mesures de composition chimique ont été effectuées à l'aide d'un AMS sur huit des douze vols (problème instrumental du 2 au 7 juillet), manipulé par l'équipe du Max Planck Institute for chemistry de Mayence. L'AMS fournit des concentrations massiques de cinq espèces chimiques : l'ammonium, les nitrates, les chlorides, les sulfates et les organiques. Du fait des très faibles concentrations rencontrées durant les vols de la campagne POLARCAT été, seuls les sulfates et les organiques étaient présents à des concentrations suffisamment élevées pour être au dessus des limites de détection. Ces deux espèces sont émises lors d'épisodes de pollution. En effet, Les sulfates sont associées aux émissions anthropiques et plus particulièrement à la combustion d'énergie fossile (Heald et al., 2006; Singh et al., 2010; Schmale et al., 2011) alors que les organiques sont plutôt liés aux feux de biomasse (Andreae and Merlet, 2001; Schmale et al., 2011).

La figure 5.5 présente les séries temporelles des mesures de l'AMS (instrument opérationnel uniquement durant huit vols) dans lesquelles sont surlignés les épisodes de pollution (le code couleur est expliqué précédemment). Il apparait que pour chaque panache, une augmentation dans la masse mesurée par l'AMS est visible. La visualisation des concentrations massiques moyennées par période sous forme de barres (figure 5.6) permet de mieux se rendre compte du rapport entre les concentrations des sulfates et des organiques. Chaque épisode relié aux émissions anthropiques, qu'elles soient européennes ou américaines, présente des concentrations en sulfate similaires à celles des organiques. En revanche, les panaches issus des feux de forêt sont dominés très largement par les organiques.

5.3.2 Propriétés physiques

Comme présenté dans la section 3.2.2.1, et déjà évoqué dans le chapitre précédant, l'usage du SMPS et d'OPCs échantillonnant des particules à température ambiante et à 280°C permet d'étudier les propriétés physiques des particules.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

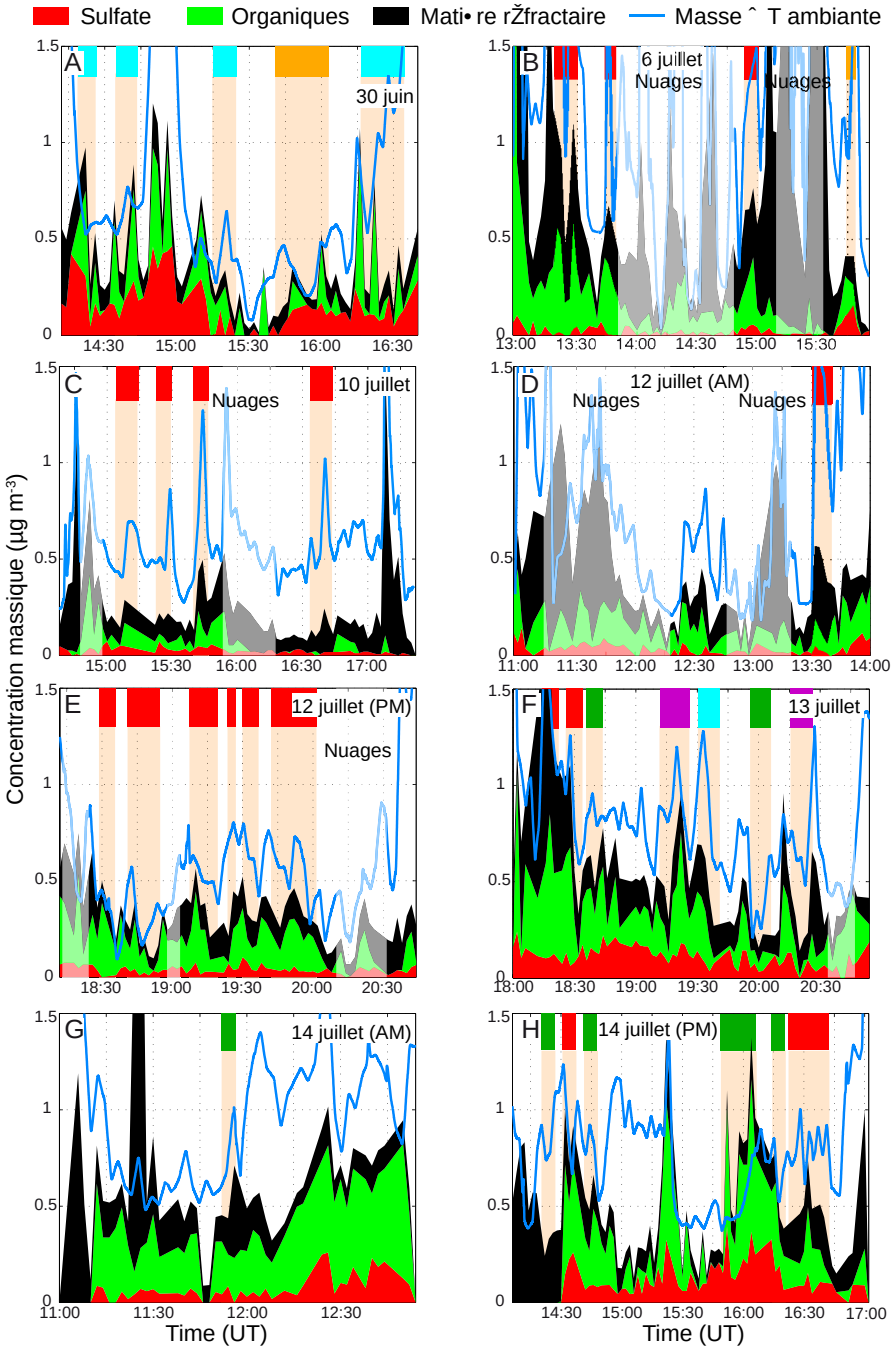


FIGURE 5.5 – *Séries temporelles des concentrations massiques de sulfates et d'organiques mesurées par l'AMS auxquelles est superposée la masse de matière réfractaire à 280°C déterminée à partir des mesures NVSMPS. Sont également tracées les évolutions de la masse à température ambiante. Afin que les comparaisons soient cohérentes, seules les données SMPS et NVSMPS ont été utilisées afin de coller aux diamètres de mesure de l'AMS. A noter que l'AMS n'était pas opérationnel lors des vols des 2, 4, 5 et 7 juillet. Les passages relatifs aux pics de DeltaCO sont identifiés de la même façon que sur la figure 5.3.*

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

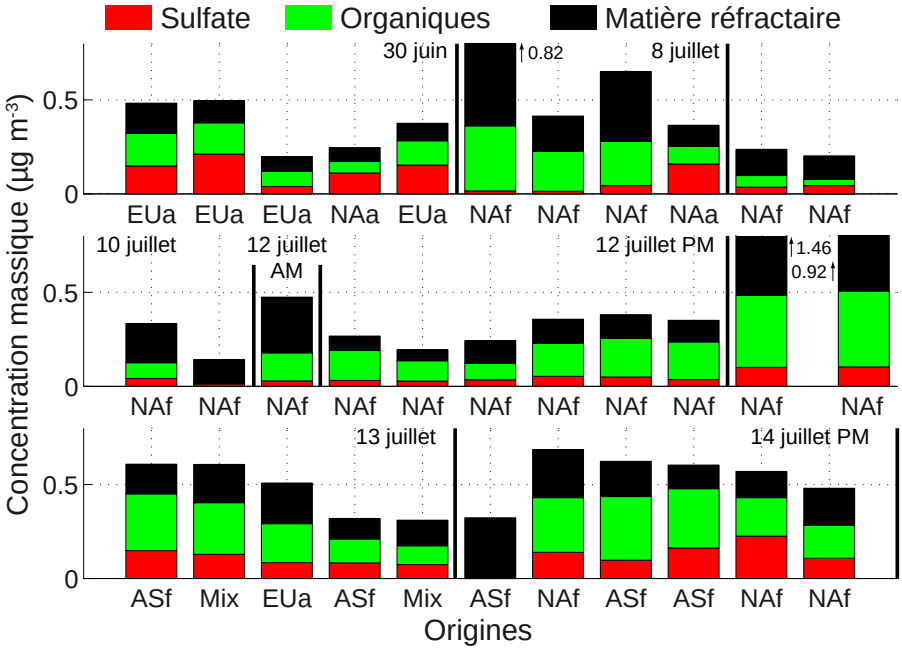


FIGURE *5.6 – Concentrations massiques en sulfates et matière organiques et réfractaire superposées pour les différents segments de vols sélectionnés. L'origine dominante relative à chaque barre est indiquée en abscisse : Europe anthropique (EUa), Amérique du Nord anthropique (NAa) et feux (NAf), feux asiatiques (ASf) et mixte (Mix).*

5.3.2.1 A température ambiante

La distribution en taille des particules donne des informations primordiales sur la distribution de la matière qui est transportée des régions sources vers l'Arctique. C'est grâce à la combinaison des mesures du SMPS et du PCASP que les distributions en taille peuvent s'étaler de 0.02 à 3 μm.

L'ensemble des distributions présentées dans la figure 5.7 a été reproduit à l'aide d'un modèle basé sur une somme de trois ou quatre lois log-normales (voir section 2.1.1 pour plus de détails), en fonction de la capacité du modèle à représenter les observations en respectant les contraintes imposées. Les paramètres des distributions ainsi modélisées sont donnés dans le tableau 5.3.

La figure 5.7 regroupe les distributions en taille des masses d'air correspondant aux origines européenne (A), nord-américaine anthropique et feux (B et E), feux asiatiques (C) et mixtes (D). Comme constaté lors de la sélection des pics de CO, les masses d'air d'origine européenne sont associées à de faibles concentrations de CO (ΔCO = 14,7 ppbv en moyenne) mais aussi de masse particulaire. De même,

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

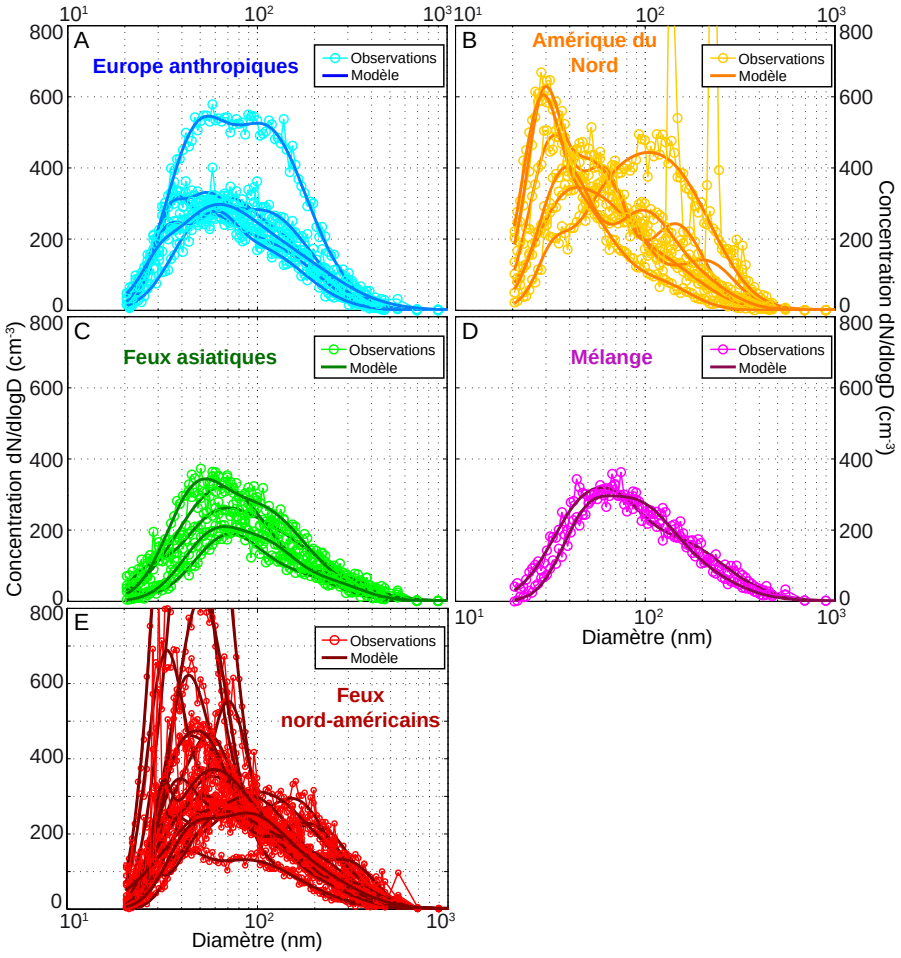


FIGURE 5.7 – *Distributions en taille (observées et modélisées) des particules d'aérosols de pollution regroupées par origine.*

les panaches asiatiques, sont eux plus concentrés en CO (ΔCO = 27,9 ppbv) mais ne présentent pas plus de masse. Les masses d'air anthropiques nord-américaines ne sont pas accompagnées non plus d'importantes concentrations en CO (ΔCO = 18,1 ppbv), même si il existe un cas particulier (ΔCO = 54.8 ppbv). Ce cas particulier est également associé à une plus importante masse, principalement vue dans un mode accumulation très concentré, alors que dans tous les autres cas, le mode Aitken est celui qui domine le spectre dimensionnel. Les masses d'air considérées comme mixtes ont des formes similaires aux feux asiatiques, l'une des origines les constituant. Enfin, les masses d'air issues des feux canadiens sont caractérisées dans la plupart des cas par un mode Aitken très concentré par rapport au mode accumulation et sont analysées plus en détail dans la suite de cette section.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

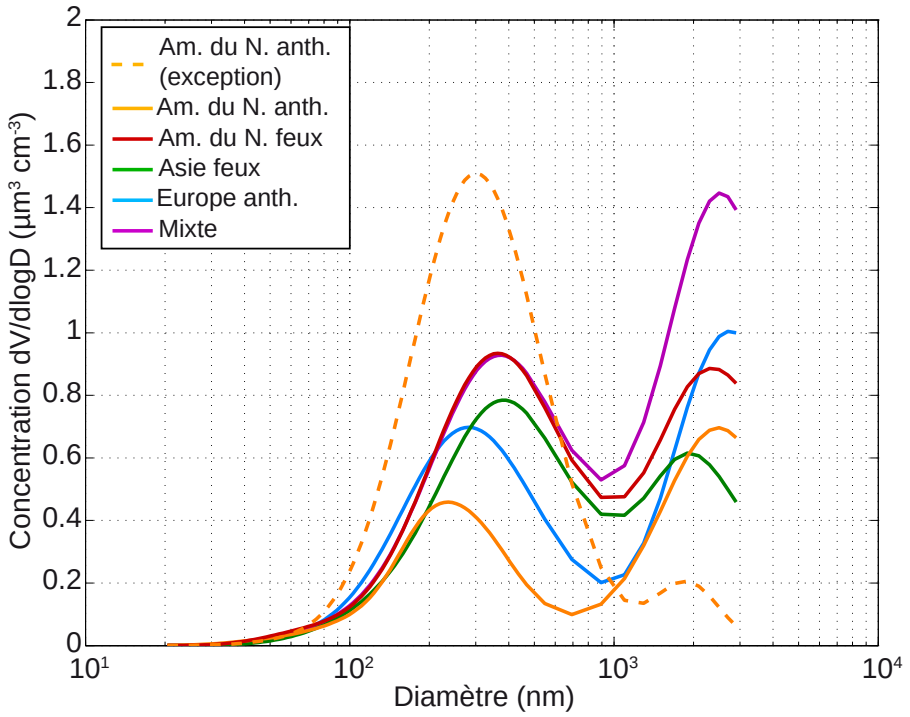


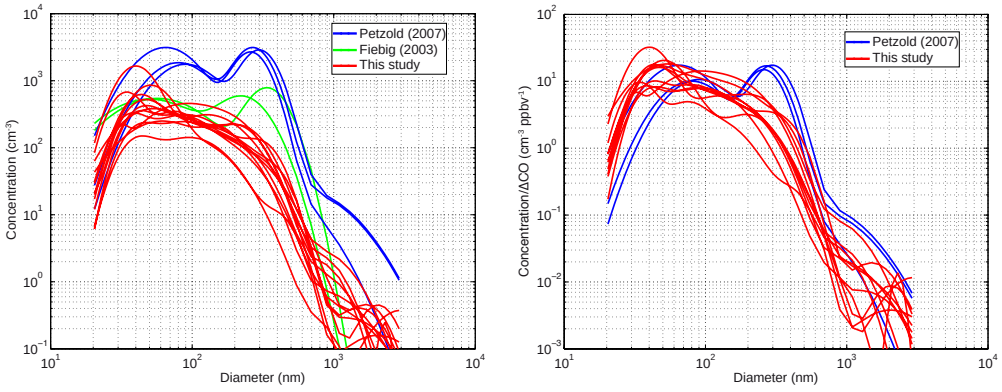
FIGURE *5.8 – Distributions en volume (modélisées) des particules d'aérosols de pollution moyennées par origine.*

Pour compléter cette analyse, les distributions moyennes modélisées en volume pour chaque origine des masses d'air étudiées jusqu'ici sont présentées dans la figure 5.8. Le volume est obtenu à partir des concentrations et en supposant les particules sphériques. Les distributions en volume donnent une information sur la répartition de la masse particulaire qui se trouve principalement dans les modes accumulation et grossier. Le volume étant lié au cube du diamètre, même de très faibles concentrations en grosses particules, comme on l'observe dans le cadre de la campagne POLARCAT-été, apportent la majorité du volume. En revanche, le mode Aitken, même pour les masses d'air de feux d'Amérique du Nord dont le mode Aitken était particulièrement concentré, contribue très peu au volume global. Il a été décrit précédemment le comportement particulier d'une distribution issue des émissions anthropiques d'Amérique du Nord. Cette distribution a donc été représentée distinctement sur la figure 5.8, ce qui permet de distinguer que la grande majorité de la masse correspondante à ce passage est située dans le mode accumulation. Pour les autres masses d'air, celles originaires des émissions anthropiques ont moins de masse dans le mode accumulation que celles issues de feux alors que les modes grossiers ne

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

dégagent pas de tendance selon les origines.

Les distributions en taille des particules issues des feux canadien peuvent être comparées à celles mesurées par Fiebig et al. (2003) et Petzold et al. (2007) qui, bien qu'observées en Europe, correspondaient à des sources et des temps de transport similaires. La comparaison entre les distributions nord-américaines mesurées par Fiebig et al. (2003) et Petzold et al. (2007) et celles de la campagne POLARCAT été est montrée dans la figure 5.9(a). Cette comparaison fait ressortir la particularité, déjà évoquée plus haut, des observations dans l'atmosphère du Groenland. En effet, si Fiebig et al. (2003) et Petzold et al. (2007) observent des concentrations du même ordre de grandeur pour les modes Aitken et accumulation, il existe une différence d'un ordre de grandeur environ entre les concentrations de ces deux modes mesurés au Groenland.



(a) (b)

FIGURE *5.9 – (a) Distributions en nombre des particules d'aérosols d'origine nord-américaine mesurées par Fiebig et al. (2003), Petzold et al. (2007) et lors de la campagne POLARCAT été et (b) distributions pondérées par ΔCO pour affranchir les distributions de l'intensité de la source. Fiebig et al. (2003) n'ont pas fourni de valeurs de ΔCO, les distributions ne sont donc pas représentées.*

Afin de déterminer quel mode présente des similitudes vis à vis des distributions issues de la littérature (mode Aitken ou accumulation plus ou moins concentré ?), il convient de pondérer les distributions par la valeur de CO en excès qui les accompagne. En effet, les concentrations en particules sont fortement liées à l'intensité de la source, tout comme le rapport de mélange de CO. Ainsi, la figure 5.9(b) présente ces distributions après pondération (Fiebig et al. (2003) n'ont pas fourni de valeurs de ΔCO). Il apparaît clairement que le mode Aitken est du même ordre de grandeur que celui observé par Petzold et al. (2007) contrairement au mode accumulation

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	N° panache	origine	Mode Aitken			Mode intermédiaire		
			$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$
30 juin	1	EUa	66,9	1,25	36,7	52,3	1,32	66,5
	2	EUa	75,6	1,31	39,9	-	-	-
	3	EUa	100,8	1,47	51,6	71,0	1,51	114,7
	4	NAa	139,8	1,50	40,2	15,8	1,26	73,0
	5	EUa	175,0	1,45	46,4	260,4	1,62	114,9
2 juillet	6	EUa	46,3	1,25	32,6	63,8	1,35	57,3
	7	NAa	342,7	1,80	41,6	-	-	-
	8	???	389,2	1,18	21,8	112,2	1,30	53,4
4 juillet	9	NAa	209,1	1,43	30,5	-	-	-
	10	NAa	pas	de	données			
5 juillet	11	NAa	160,1	1,35	33,7	90,6	1,27	66,5
7 juillet	12	???	584,8	1,34	46,8	185,4	1,56	67,1
	13	NAf	532,2	1,41	49,8	15,0	1,10	52,9
	14	NAa	135,9	1,37	38,0	98,4	1,43	94,8
8 juillet	15	NAf	125,0	1,29	41,8	173,1	1,77	75,0
	16	NAf	427,1	1,30	37,9	134,9	1,41	57,6
	17	NAf	155,6	1,25	32,8	129,1	1,40	64,8
	18	NAa	10,4	1,10	31,1	146,1	1,64	60,2
10 juillet	19	NAf	37,0	1,24	36,9	51,8	1,39	58,7
	20	NAf	41,5	1,22	33,3	72,1	1,44	62,9
	21	NAf	44,6	1,24	32,2	125,2	1,59	73,5
	22	NAf	146,2	1,44	65,9	24,4	1,14	70,9
12 juillet AM	23	NAf	274,5	1,38	49,9	-	-	-
12 juillet PM	24	NAf	285,9	1,38	50,2	53,5	1,61	115,2
	25	NAf	26,5	1,29	39,2	45,2	1,77	75,0
	26	NAf	23,9	1,19	33,7	127,2	1,35	53,8
	27	NAf	50,3	1,24	36,3	136,1	1,40	54,3
	28	NAf	27,7	1,20	34,5	148,6	1,39	50,0
	29	NAf	162,2	1,65	51,7	14,7	1,27	120,0
13 juillet	30	NAf	67,9	1,29	36,6	192,9	1,80	90,6
	31	NAf	15,9	1,10	31,6	201,4	1,67	57,0
	32	ASf	12,0	1,23	25,9	58,8	1,53	56,1
	33	Mix	89,3	1,52	48,7	111,5	1,80	84,7
	34	EUa	99,9	1,58	43,6	135,7	1,80	105,7
	35	ASf	70,6	1,52	10,0	80,8	1,51	69,6
	36	Mix	54,3	1,35	47,0	97,7	1,52	84,7
14 juillet AM	37	ASf	pas	de	données			
14 juillet PM	38	ASf	188,5	1,80	69,1	11,1	1,22	55,6
	39	NAf	109,0	1,67	47,8	100,0	1,80	120,0
	40	ASf	85,8	1,42	45,9	164,4	1,80	102,4
	41	ASf	78,3	1,47	59,4	45,9	1,41	118,6
	42	ASf	4,8	1,10	28,8	61,1	1,45	57,0
	43	NAf	44,3	1,33	42,8	111,6	1,58	85,8

TABLEAU 5.3 – Paramètres des modes utilisés pour modéliser les distributions à température ambiante (modes Aitken et intermédiaire).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	N° panache	origine	Mode accumulation			Mode grossier		
			$n_3(cm^{-3})$	σ_3	$d_{m3}(nm)$	$n_4(cm^{-3})$	σ_4	$d_{m4}(nm)$
30 juin	1	EUa	124,0	1,69	115,2	0,1	1,81	1419,9
	2	EUa	190,9	1,79	99,1	0,1	2,00	1500,0
	3	EUa	15,5	1,38	210,1	0,2	1,88	1414,0
	4	NAa	84,6	1,70	110,0	0,2	2,00	800,0
	5	EUa	4,2	1,30	306,1	0,2	1,98	1500,0
2 juillet	6	EUa	88,8	1,68	110,0	0,1	2,00	800,0
	7	NAa	51,8	1,20	247,4	0,5	2,00	500,0
	8	???	173,7	1,68	110,0	0,2	1,8	1500,0
4 juillet	9	NAa	72,2	1,63	80,0	0,1	1,51	1334,9
	10	NAa	pas	de	données			
5 juillet	11	NAa	82,3	1,30	149,3	0,8	2,00	800,0
7 juillet	12	???	60,7	1,30	336,7	0,1	1,50	1500,0
	13	NAf	76,5	1,62	156,6	0,5	1,53	800,0
	14	NAa	36,8	1,50	181,7	0,1	2,00	1408,8
8 juillet	15	NAf	67,3	1,43	229,8	1,34	1,56	800,0
	16	NAf	137,0	1,55	156,3	0,37	2,00	800,1
	17	NAf	109,6	1,56	181,9	0,6	1,50	800,0
	18	NAa	191,5	1,64	140,2	0,0	1,50	1500,0
10 juillet	19	NAf	119,5	1,78	110,0	0,7	1,79	800,0
	20	NAf	99,2	1,85	114,7	0,4	1,96	800,0
	21	NAf	49,2	1,61	203,0	0,2	2,00	1500,0
	22	NAf	70,5	1,68	149,4	0,1	1,50	1500,0
12 juillet AM	23	NAf	65,9	1,73	103,4	1,28	1,30	500,0
12 juillet PM	24	NAf	2,1	1,30	413,7	0,1	2,00	1500,0
	25	NAf	44,2	1,88	110,0	0,1	1,50	1353,3
	26	NAf	105,5	1,79	112,7	0,2	2,00	1346,9
	27	NAf	94,6	1,65	135,5	0,4	2,00	800,0
	28	NAf	106,2	1,70	125,7	0,4	2,00	877,7
	29	NAf	41,8	1,62	171,9	0,2	2,00	924,5
13 juillet	30	NAf	29,2	1,33	319,1	0,1	1,50	1460,6
	31	NAf	74,6	1,67	182,3	0,1	1,50	1500,0
	32	ASf	141,1	2,00	110,0	0,1	2,00	1500,0
	33	Mix	43,3	1,63	207,5	0,4	1,88	1126,6
	34	EUa	8,9	1,30	328,3	0,6	1,87	800,0
	35	ASf	31,8	1,57	172,6	0,2	1,98	800,0
	36	Mix	58,6	1,74	154,4	0,3	2,00	800,0
14 juillet AM	37	ASf	pas	de	données			
14 juillet PM	38	ASf	20,2	1,40	292,7	0,1	1,50	1478,1
	39	NAf	9,2	1,30	365,2	0,2	1,50	1160,2
	40	ASf	4,3	1,30	439,8	0,2	2,00	1500,0
	41	ASf	20,2	1,47	245,9	0,4	1,73	800,0
	42	ASf	123,2	1,85	117,2	0,4	1,71	800,0
	43	NAf	46,8	1,67	195,5	0,1	1,50	1500,0

TABLEAU 5.3 – (suite). Paramètres des modes utilisés pour modéliser les distributions à température ambiante (modes accumulation et grossier).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

qui est clairement en déficit. L'hypothèse privilégiée (et vérifiée dans la suite de ce chapitre) pour expliquer cette absence de matière est le lessivage de ce mode accumulation par dépôt humide lors du trajet entre la source et le lieu de mesure. Cette hypothèse sera approfondie dans la section 5.4.

5.3.2.2 Après chauffage à 280°C

L'utilisation des SMPS et OPC sous le flux de particules chauffées à 280°C permet d'obtenir une distribution en taille pour les particules ou parties de particules réfractaires. Cette matière réfractaire peut être composée de poussières désertiques, de sels de mer, de carbone suie et/ou de matière organique dont la température de vaporisation est supérieure à 280°C. Si il est difficile de conclure quant à la nature de cette matière réfractaire, l'étude de sa distribution apporte tout de même d'intéressantes informations sur l'état de mélange des particules d'aérosols. Ainsi, pourront apparaitre plusieurs modes réfractaires correspondant à différents aérosols ou bien, comme cela était le cas parfois pour la campagne de printemps, seul le recouvrement disparaît pour laisser la partie réfractaire des particules se retrouver dans un mode unique.

L'ensemble des distributions en particules réfractaires, réparties selon leurs origines respectives, sont présentées dans la figure 5.10. Si l'ensemble des distributions réfractaires peuvent être représentées par deux ou trois modes (voir tableau 5.4), seules celles relatives aux feux d'Amérique du Nord peuvent vraiment être qualifiées de bimodales du fait de l'existence de deux modes distincts à concentrations significatives. Pour toutes les distributions réfractaires, on retrouve un premier mode entre 25 et 40 nm auquel s'ajoute un second mode compris entre 40 et 110 nm.
Afin de compléter cette étude, la fraction volatile à 280°C, $F_{volatile}$, de volume de matière pour les passages sélectionnés a été étudiée. Cette valeur est obtenue selon la relation suivante :

$$F_{volatile} = \frac{V_{Tambiante} - V_{280C}}{V_{Tambiante}} \tag{5.1}$$

où $V_{Tambiante}$ et V_{280C} sont les volumes de matières mesurés à température ambiante et à 280°C par les couples SMPS/OPC. Les valeurs moyennes de cette fraction volatile pour chaque origine sont regroupées dans le tableau 5.5, tout comme les valeurs des 25e, 50e et 75e percentiles. On constate que, pour l'Amérique du Nord, les particules issues de feux sont moins volatiles que celles d'origines anthropiques. Ce résultat est logique dans la mesure où les émissions anthropiques sont caractérisées par le rejet de petites particules accompagnées d'importants volumes de gaz qui peuvent ensuite condenser sur les particules. Si la fraction volatile moyenne relative

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Date du vol	N° panache	origine	Mode réfractaire			Mode réfractaire 2			Mode réfractaire 3		
			$n_1(cm^{-3})$	σ_1	$d_{m1}(nm)$	$n_2(cm^{-3})$	σ_2	$d_{m2}(nm)$	$n_3(cm^{-3})$	σ_3	$d_{m3}(nm)$
30 juin	1	EUa	228,9	1,71	26,4	15,3	1,40	102,7	2,3	1,30	355,6
	2	EUa	253,6	1,77	24,9	21,8	1,43	92,5	3,4	1,30	181,6
	3	EUa	6,9	1,14	25,6	230,2	1,91	29,8	0,9	1,81	318,5
	4	NAa	165,1	1,56	25,7	35,4	1,91	52,0	1,7	1,55	150,0
	5	EUa	538,5	1,73	23,4	12,6	1,47	79,1	5,0	1,79	150,0
2 juillet	6	EUa	81,3	1,40	27,0	78,9	2,00	32,7	1,3	1,83	260,2
	7	NAa	172,7	1,80	23,1	41,1	1,73	50,9	1,7	1,32	150,0
	8	???	321,0	1,80	18,2	27,7	2,00	50,8	0,6	2,00	450,0
4 juillet	9	NAa	126,6	1,51	23,6	15,5	1,75	62,0	0,5	1,30	330,3
	10	NAa	215,1	1,73	16,9	45,7	2,00	41,3	0,5	1,30	414,0
5 juillet	11	NAa	144,8	1,61	25,6	24,2	1,73	71,2	0,7	1,30	319,0
7 juillet	12	???	324,9	1,32	22,9	136,3	1,96	33,7	2,3	1,30	334,8
	13	NAf	380,8	1,38	23,2	91,6	1,64	60,2	6,8	1,30	197,5
	14	NAa	202,1	1,73	23,0	60,3	1,91	50,3	0,4	1,30	430,0
8 juillet	15	NAf	1412,0	1,62	26,6	136,5	2,00	76,2	16,1	1,35	150,0
	16	NAf	270,2	1,80	24,5	63,7	1,54	95,2	1,34	1,38	450,0
	17	NAf	265,2	1,80	28,2	63,7	1,49	112,3	2,3	1,30	340,3
	18	NAa	269,6	1,44	28,5	111,3	1,63	54,6	2,5	1,30	178,5
10 juillet	19	NAf	154,1	1,59	33,6	9,2	1,23	113,4	11,4	1,76	150,0
	20	NAf	101,6	1,42	31,0	76,6	2,00	56,0	0,1	1,62	450,0
	21	NAf	58,5	1,40	30,1	131,6	2,00	41,7	14,4	1,52	158,2
	22	NAf	111,7	1,30	23,6	191,0	2,00	29,0	9,3	1,69	150,0
12 juillet AM	23	NAf	193,7	1,62	24,9	110,6	1,94	72,1	1,7	1,30	237,3
12 juillet PM	24	NAf	103,9	1,19	25,5	206,7	1,91	25,0	3,1	1,73	150,0
	25	NAf	91,0	1,57	29,3	10,0	1,38	104,7	0,5	1,39	341,2
	26	NAf	260,5	1,80	22,9	27,4	1,62	83,6	1,43	1,30	270,1
	27	NAf	167,7	1,47	28,9	81,7	2,00	57,0	1,33	1,30	189,0
	28	NAf	263,1	1,80	25,9	19,3	2,00	94,2	2,3	1,30	150,0
	29	NAf	93,3	1,51	26,1	99,2	1,99	39,2	5,99	1,88	150,0
13 juillet	30	NAf	300,1	1,74	29,4	59,1	1,53	114,3	10,3	1,30	344,5
	31	NAf	237,5	1,80	30,3	21,6	1,31	126,1	4,9	1,30	368,7
	32	ASf	84,9	1,35	27,4	80,7	1,87	44,9	10,9	1,64	150,0
	33	Mix	122,4	1,45	31,5	76,9	1,88	76,2	0,6	1,30	411,1
	34	EUa	73,4	1,24	27,3	172,0	1,82	32,6	23,1	1,59	150,0
	35	ASf	76,0	1,33	26,9	38,2	1,58	60,7	5,4	1,37	180,6
	36	Mix	114,7	1,38	28,4	126,5	2,00	43,6	4,4	1,97	150,0
14 juillet AM	37	ASf	pas	de	données						
14 juillet PM	38	ASf	55,5	1,29	27,7	133,1	1,82	31,0	18,7	1,81	154,6
	39	NAf	143,6	1,59	31,1	34,0	1,69	114,7	1,68	1,30	390,0
	40	ASf	99,1	1,35	29,4	101,4	1,83	48,6	12,6	1,77	150,0
	41	ASf	83,1	1,36	29,3	65,5	2,00	59,5	0,7	1,30	443,4
	42	ASf	110,2	1,41	30,3	62,9	2,00	58,8	3,5	1,30	159,8
	43	NAf	96,9	1,40	29,4	96,4	1,83	45,7	16,4	1,68	150,0

TABLEAU 5.4 – Paramètres des modes utilisés pour modéliser les distributions réfractaires.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

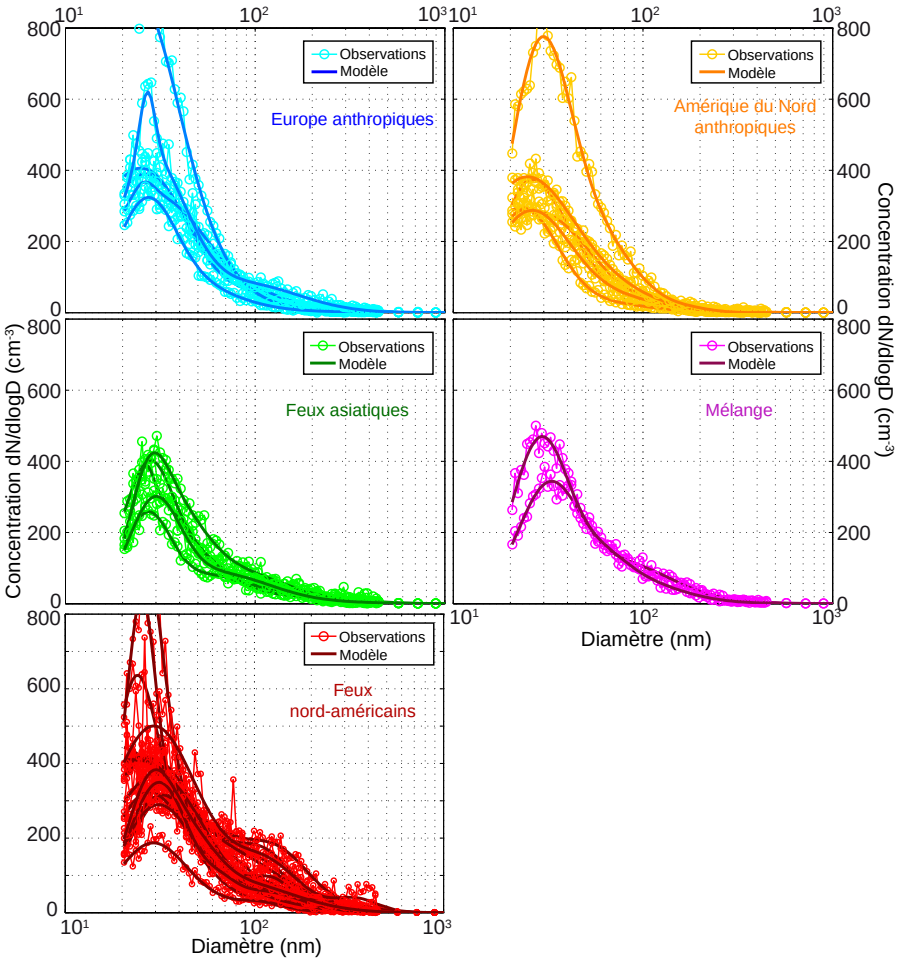


FIGURE *5.10 – Distributions en taille des particules réfractaires d'aérosols classées par origine.*

aux feux asiatiques est très proche de celle des feux nord-américains, celle des masses d'air européennes anthropiques est plus basse que celles d'Amérique du Nord et des feux. Cette faible valeur peut s'expliquer par l'âge (déterminé par FLEXPART) élevé des masses d'air européennes (13,7 ± 2,3 jours) par rapport aux masses d'air anthropiques d'Amérique du Nord (11,9 ± 2,4) qui implique un vieillissement des particules et de la matière organique qui devient plus réfractaire, mais aussi par le possible mélange avec des sels de mer au dessus de l'océan Atlantique lors du transport vers le Groenland.

En se concentrant sur les distributions relatives aux masses d'air d'Amérique du Nord (issues de feux ou d'émissions anthropiques), et en comparant les distributions à température ambiante avec celles à 280°C, il est possible de faire apparaître des

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Origine	$F_{volatile}$ moyenne	25e prctile	mediane	75e prctile
Europe anthropique	0,72 ± 0,32	0.71	0.81	0.87
Asie feux	0.74 ± 0.17	0.74	0.81	0.85
Am. du Nord feux	0,78 ± 0,15	0.76	0.82	0.86
Am. du Nord anth.	0.79 ± 0.32	0.78	0.86	0.90

TABLEAU 5.5 – Valeurs moyennes des fractions volatiles relatives aux différentes origines. Sont également indiqués les 25e, 50e et 75e percentiles.

différences entres les panaches, notamment au niveau de l'évolution du mode accumulation. Afin de caractériser cette évolution, les trois paramètres suivants ont été définis :

$$F_{volat,D>90\ nm} = \frac{V_{ambiant,D>90\ nm} - V_{280^{\circ}C,D>90\ nm}}{V_{ambiant,D>90\ nm}} \tag{5.2}$$

où $V_{ambiant,D>90\ nm}$ et $V_{280^{\circ}C,D>90\ nm}$ correspondent aux volumes de matière compris dans les particules de diamètres supérieurs à 90 nm à température ambiante et à 280°C. $F_{volat,D>90\ nm}$ exprime donc la fraction de matière qui est désorbée à 280°C dans le mode accumulation.

$$F_{conc,D>90\ nm} = \frac{N_{ambiant,D>90\ nm} - N_{280^{\circ}C,D>90\ nm}}{N_{ambiant,D>90\ nm}} \tag{5.3}$$

avec $N_{ambiant,D>90\ nm}$ et $N_{280^{\circ}C,D>90\ nm}$ qui sont les concentrations en nombre de particules de diamètres supérieurs à 90 nm à température ambiante et à 280°C. $F_{conc,D>90\ nm}$ donne une estimation de la fraction de particules du mode accumulation qui l'ont quitté.

$$F_{diam,ac} = \frac{D_{ambiant,ac} - D_{280^{\circ}C,ac}}{D_{ambiant,ac}} \tag{5.4}$$

où $D_{ambiant,ac}$ et $D_{280^{\circ}C,ac}$ sont les diamètres moyens du mode accumulation à température ambiante et à 280°C. $F_{diam,ac}$ permet donc de quantifier l'importance de la variation du diamètre moyen du mode accumulation.

Ces trois paramètres donnent des informations importantes en vue de la compréhension de l'état de mélange du mode particulaire accumulation mais aussi sur le degré de recouvrement des particules du mode accumulation. Ainsi, des fractions élevées de $F_{volat,D>90\ nm}$, $F_{conc,D>90\ nm}$ et $F_{diam,ac}$ indiquent des particules d'aérosols particulièrement volatiles pouvant être issues de la région source directement ou d'un recouvrement après l'émission. Les vingt passages reliés au feux d'Amérique du Nord peuvent être organisés en trois groupes distincts en fonction de leur valeur de $F_{diam,ac}$, chaque groupe correspondant à une valeur faible, moyenne ou forte de

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

$F_{diam,ac}$. Par ailleurs, Les masses d'airs anthropiques ont également été regroupées en un seul groupe. Les valeurs des paramètres relatifs à ces quatre groupes sont présentées dans le tableau 5.6.

Groupe	nbre de passage	diamètre moyen mode accu. (nm)	$F_{diam,ac}$ (%)	$F_{conc,D>90\ nm}$ (%)	$F_{volatile,D>90\ nm}$ (%)
NAf(1)	8	123,9 ± 23,0	9,3 ± 19,2	78,2 ± 12,0	79,6 ± 8,3
NAf(2)	10	133,8 ± 35,6	45,2 ± 9,6	89,0 ± 5,8	84,1 ± 3,9
NAf(3)	2	139,3 ± 50,7	77,6 ± 2,4	86,6 ± 1,2	85,4 ± 1,5
NAa	4	152,0 ± 68,1	54,0 ± 16,6	96,9 ± 2,8	95,3 ± 2,9

TABLEAU 5.6 – Valeurs moyennes et déviations standards des paramètres relatifs à l'évolution du mode accumulation après désorption.

Il ressort du tableau 5.6 qu'en moyenne, l'aérosol composant les modes accumulations des 18 périodes NAf est plus réfractaire que l'aérosol anthropique du mode accumulation des masses d'air NAa. Les masses d'air issues de feux d'Amérique du Nord conservent presque toujours (à deux exceptions près) un mode accumulation réfractaire qui a tout de même perdu une part importante de ses particules (78,2-86,6%) et de son volume (79,6-85,4%). Néanmoins, ces valeurs nous permettent de mettre en avant le mélange externe du mode accumulation qui était donc probablement composé (i) d'une importante partie de particules recouvertes de matière volatile (et donc mélangées en interne) qui ont disparu du mode après désorption et (ii) d'une petite partie de particules réfractaires très faiblement recouvertes qui constituent ce mode accumulation réfractaire et qui pourraient impacter le climat Arctique si elles venaient à être déposées sur une couche neigeuse ou glacée et dans le cas où elles comporteraient d'importante quantité de carbone suie. Par opposition, les modes accumulation des masses d'air anthropiques voient plus de 95% de leurs particules et de leur volume disparaître après le chauffage, nous conduisant plutôt à conclure sur un mélange interne de ces particules anthropiques. Les distributions à température ambiante et 280°C relatives aux quatre groupes sont représentées dans la figure 5.11. Pour les 24 masses d'air étudiées, il apparaît que seule une faible quantité de matière réfractaire est transportée jusqu'en Arctique, celle-ci étant uniquement issue des feux de biomasse. La contenance de ces modes réfractaires en carbone suie est étudiée à l'aide des propriétés optiques dans la section suivante.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

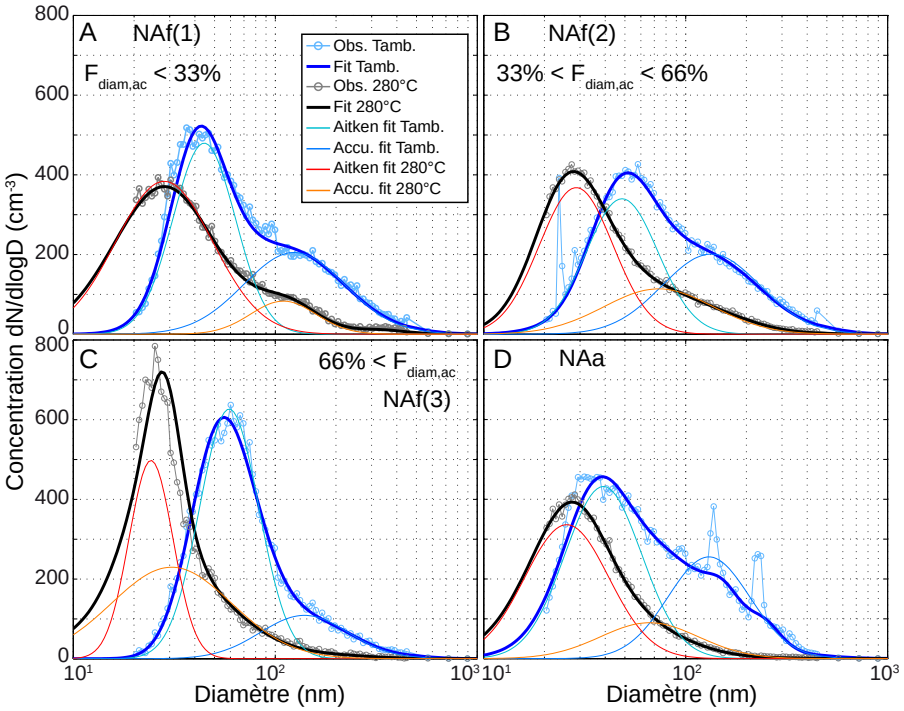


FIGURE *5.11 – Distributions moyennes en taille des particules d'aérosols mesurées et modélisées à température ambiante et à 280°C en fonction de la valeur de $F_{diam,ac}$ (voir tableau 5.6). Les modes Aitken et accumulation déterminés par le modèle sont également tracés.*

5.3.3 Propriétés optiques

Les propriétés optiques des particules d'aérosols, nommément les coefficients de diffusion (σ_{sca}) et d'absorption (σ_{abs}) de la lumière dans le cadre de la campagne été, sont utiles à plusieurs égards. Dans un premier temps, les mesures de diffusion permettent de vérifier la qualité des mesures de distribution en taille des particules d'aérosols. A l'aide de la théorie de Mie, il est possible d'estimer la diffusion qui serait générée à partir des distributions en taille (voir section 2.1.4) et ainsi de comparer cette estimation aux mesures du nephélomètre. Bien entendu, la méconnaissance de l'indice de réfraction ainsi que les résolutions temporelles des instruments conduisent parfois à des différences entre les calculs et les mesures.
Les séries temporelles de diffusion de la lumière permettent également de mettre en avant les passages où les concentrations en particules de gros diamètres sont les plus importantes. Nous avons vu précédemment que la diffusion d'une particule est proportionnelle au carré de son rayon (section efficace de diffusion dans la section

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

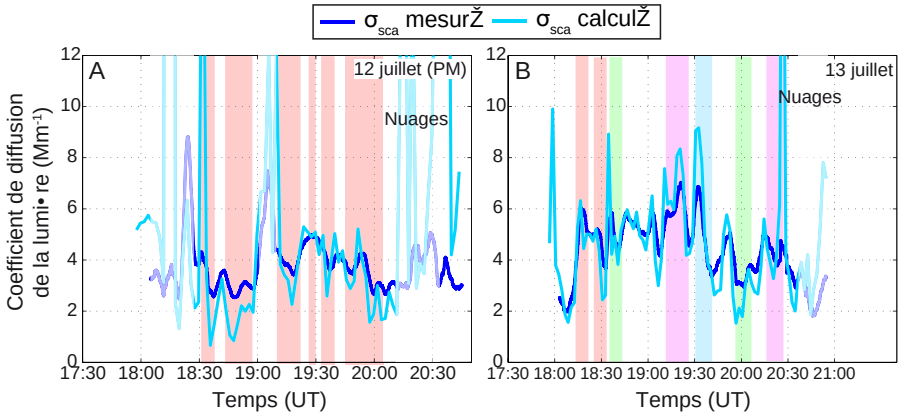


FIGURE *5.12 – Coefficient de diffusion de la lumière mesuré et calculé pour les vols des 12 et 13 juillet de la campagne été. Les passages relatifs à des panaches de pollutions sont indiqués avec leurs couleurs respectives.*

3.2.2.2), ainsi, les plus grosses particules dominent la diffusion mesurée. Deux séries temporelles des σ_{sca} mesurés à 450 nm, ainsi que ceux calculés (pour la même longueur d'onde) depuis les spectres dimensionnels sont présentées dans la figure 5.12. Il apparaît que les passages pollués sont généralement associés à des pics de diffusion, confirmant ainsi l'augmentation de concentration en particules. σ_{sca} calculé à partir du code de Mie représente bien les mesures (le coefficient de corrélation entre les deux séries temporelles sont 0,72 et 0,54 pour les 12 et 13 juillet, respectivement), la dispersion étant due principalement aux variations de l'indice de réfraction dans l'atmosphère alors qu'une valeur fixe (1,59) a été utilisée pour les calculs.

Par ailleurs, à partir des mesures de diffusion à différentes longueurs d'ondes, il est possible de déterminer deux paramètres qui caractérisent la distribution de particules d'aérosols : le coefficient Angstrom α est obtenu à l'aide de la relation suivante (Angstrom, 1929) :

$$\alpha = \frac{\log \sigma_{sca,700\,nm} \quad \log \sigma_{sca,450\,nm}}{\log 700 \quad \log 450} \tag{5.5}$$

La valeur de α permet de d'estimer qui, des particules fines (submicroniques) ou grossières (supermicroniques), domine la distribution. Ainsi, pour des valeurs de $\alpha \leq 1$, c'est le mode grossier ($D_p > 1\,\mu m$) qui domine la distribution avec des particules d'origine par exemple marine ou désertique, alors que c'est le mode fin ($D_p < 1\,\mu m$) qui domine si $\alpha \geq 2$ avec des particules issues de combustions qu'elles soient anthropique ou naturelles (feux). Dans le cas où α est compris entre 1 et 2, aucun mode ne domine la distribution (Dubovik et al., 2002).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Le paramètre d'asymétrie g est lui obtenu par la relation suivante (Andrews et al., 2006) :

$$g = -7.143889 \cdot b^3 + 7.464439 \cdot b^2 - 3.96356 \cdot b + 0.9893 \tag{5.6}$$

avec

$$b = \frac{\sigma_{bsca}}{\sigma_{sca}} \tag{5.7}$$

et où σ_{bsca} correspond au coefficient de rétrodiffusion de la lumière par les particules, c'est donc la diffusion de la lumière relative aux angles compris entre 90 et 180°. Le paramètre d'asymétrie peut varier entre 0 et 1 et donne une indication sur la taille des particules ainsi que sur leur forme. En effet, la valeur de g est influencée par le rapport entre les coefficients de rétrodiffusion et de diffusion. Si g prend une valeur proche de 1, cela correspond à $b \approx 0$ et donc à une diffusion largement supérieure à la rétrodiffusion, s'apparentant à la diffusion de Mie. Cette configuration correspondra au cas des grosses particules qui diffusent (très) largement vers l'avant. En revanche, si g voit sa valeur tendre vers 0, on sera dans le cas où b prendra une valeur de 0.5 et donc que la rétrodiffusion égalera la diffusion avant (entre 0 et 90°). Autrement dit, le régime Rayleigh dominera la diffusion. Les valeurs de b supérieures à 0.5 n'étant pas triviales et réservées à des particules aux formes « exotiques » leur permettant de diffuser plus de lumière en arrière qu'en avant, il est peu probable que g prenne une valeur inférieure à 0.
Comme nous avons pu le constater lors de l'étude des distributions en taille des particules, très peu d'entre elles se trouvaient dans le mode grossier. Ce résultat se retrouve dans les valeurs d'α et de g relatives aux passages de vol sélectionnés puisque le coefficient d'Angstrom ne descend jamais en dessous de 2, alors que g ne dépasse jamais 0,5. Tout comme il l'avait été lors de l'étude des distributions en taille des particules d'aérosols, ce résultat est surprenant du fait de l'âge des masses d'air rencontrées qui devraient donc avoir un α plus faible et un g plus élevé. Il permet néanmoins de confirmer l'absence de grandes concentrations en particules marines ou désertiques. En revanche, ces valeurs se retrouvent lorsque l'avion a échantillonné la couche limite océanique.

Le coefficient d'absorption de la lumière est relié à la partie absorbante des aérosols. En général, la partie absorbante correspond majoritairement au carbone suie même si chaque type de particules absorbe une partie de l'énergie. Du fait de la localisation des mesures, les quantités observées se révèlent très faibles. De plus, de la même façon que σ_{sca}, σ_{abs} est particulièrement influencé par les particules de gros diamètres, peu présentes dans l'atmosphère groenlandaise lors des mesures. Les valeurs de σ_{abs} observées durant la campagne été sont donc en moyenne plus faibles que

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

celles mesurées au printemps en Europe du nord et même fréquemment en dessous de la limite de détection et ne sont donc pas présentées ici.

5.4 Etude du processus de dépôt humide

Cette partie a pour but de montrer, à l'aide de données issues du modèle de retro-trajectoires HYSPLIT et du centre européen de prévisions météorologiques ECMWF, que le mode accumulation des masses d'air d'origine nord-américaine a très probablement été lessivé au cours du trajet entre les sources et le Groenland.

5.4.1 Outils d'analyse

5.4.1.1 Le modèle de retro-trajectoire HYSPLIT

HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Technology) est un modèle de rétro-trajectoire largement utilisé par la communauté scientifique (e.g., Venzac et al. (2009) à la station multi-instrumentée du Puy-de-Dôme et O'Dowd et al. (2007), Raut and Chazette (2008) et Xueref-Remy et al. (2011) pour l'analyse de différentes campagnes aéroportées). Ce modèle a été développé à l'Air Resources Laboratory de la NOAA et la description de la dernière version du modèle disponible en ligne est faite par Draxler and Rolph (2010) et Rolph (2010). Contrairement au modèle FLEXPART, HYSPLIT ne simule pas l'évolution de 40 000 mais d'une seule particule lagrangienne. Il en résulte une rétro-trajectoire unique, le long de laquelle il est possible de récupérer différents paramètres tels que la position bien sur, mais également l'altitude et l'humidité relative.

5.4.1.2 Les données ECMWF

L'ECMWF (European Center for Meteorological Weather Forcast) est situé à Reading en Angleterre et fournit à l'ensemble de la communauté des prévisions obtenues à partir de modèles et des registres historiques déterminées à partir des mesures effectuées régulièrement dans le monde. Ce sont les mesures de précipitations qui vont nous intéresser ici, toujours dans le but de montrer le lessivage du mode accumulation.

5.4.2 Le dépôt humide

A l'aide des outils précédemment présentés, l'humidité relative et les précipitations totales mesurées le long des la retro-trajectoires des masses d'air durant leur

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

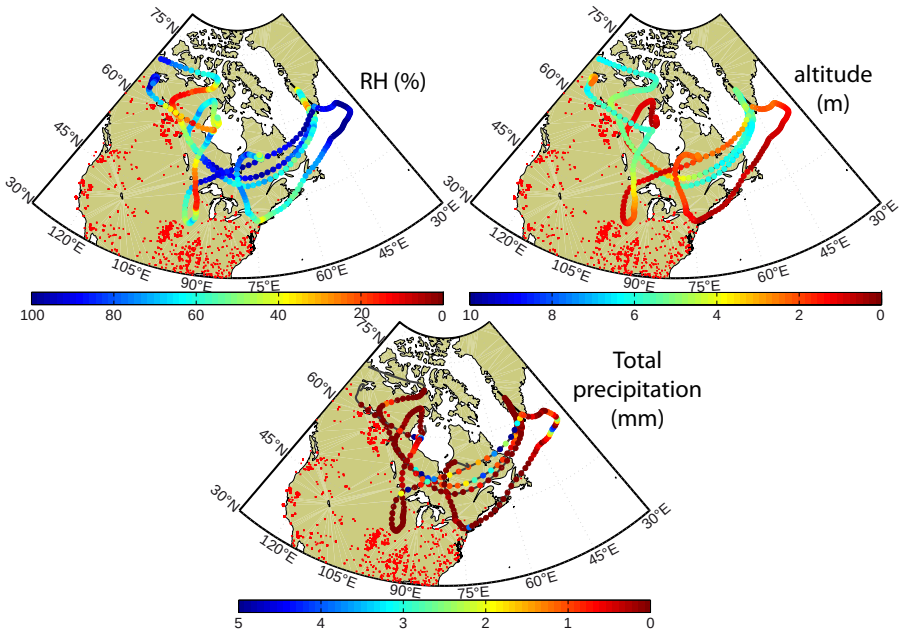


FIGURE *5.13 – Représentations géographiques des rétro-trajectoires correspondant au vol du 8 juillet. L'humidité relative, l'altitude et les précipitations totales le long des retro-trajectoires sont indiquées par des cercles de couleur. Les anomalies de température détectées par le radio-spectromètre MODIS sont indiquées par des points rouges.*

trajet des sources aux points de mesure ont été étudiées. Comme le montre la figure 5.13 qui prend pour exemple le vol du 8 juillet où sont représentées trois rétro-trajectoires menant aux feux canadiens et une rétro-trajectoire menant aux rejets anthropiques de la côte est, toutes les masses d'air issues d'Amérique du Nord sont potentiellement concernées par des précipitations durant leur transport. La figure 5.14 présente au cours du temps l'évolution de l'altitude de la rétro-trajectoire ainsi que les millimètres de précipitation estimés à la position calculée de la masse d'air. Il apparaît clairement que chaque masse d'air a rencontré entre ses zones d'émission et de mesure un événement précipitant qui aura lessivé une partie de son mode accumulation. La rétro-trajectoire présentée dans la figure 5.14(B) semble peu impactée par les précipitations. Néanmoins, quelques réserves subsistent sur la rétro-trajectoire du fait de son altitude toujours très élevée qui ne permettent pas à la masse d'air d'être enrichi par des émissions au sol, phénomène ayant pourtant eu lieu, comme indiqué par les mesures d'excès de CO et de masse.

Ce constat de précipitations le long des trajets des masses d'air vers le Groenland est valable pour l'ensemble des mesures de particules dont l'origine est l'Amérique

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

du Nord, permettant d'expliquer les faibles concentrations en particules dans les modes accumulations mesurés comparativement aux mesures déjà effectuées par Fiebig et al. (2003) et Petzold et al. (2007). Durant la campagne POLARCAT été, il semble qu'une grande partie des panaches de pollution transportés de l'Amérique du Nord vers le Groenland soient interceptés par des événements nuageux et soumis au dépôt humide avant leur arrivée en Arctique.

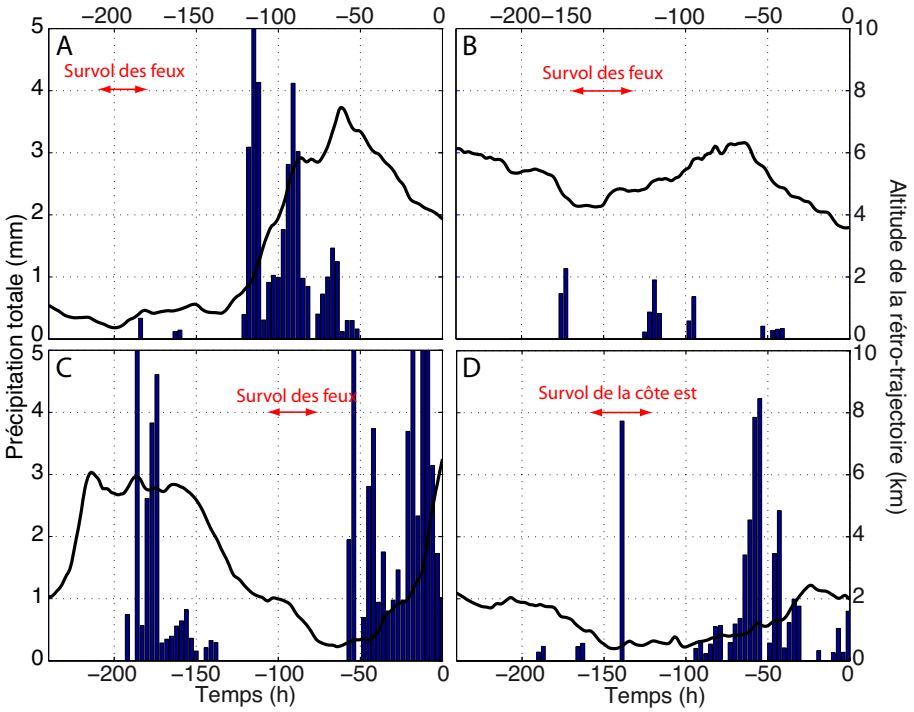


FIGURE *5.14 – Evolution de l'altitude des rétro-trajectoires calculées par le modèle HYSPLIT pour le vol du 8 juillet. Les barres représentent les estimations ECMWF de précipitations totales. Les périodes durant lesquelles les masses d'air ont survolé les zones d'émissions sont symbolisées en rouge.*

5.5 Conclusions

Au cours de cette étude, 43 segments de vols dans l'atmosphère groenlandaise ont été associés à des excès de CO. A l'aide du modèle lagrangien de retro-trajectoires FLEXPART, l'origine de ces masses d'air a été identifiée et a permis de distinguer trois principales origines géographiques : l'Asie, l'Europe et l'Amérique du Nord. Les deux premières origines correspondent principalement à des excès de CO faibles en

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

raison de l'âge avancé des masses d'air (plus de 14 jours) ou à de faibles concentrations en particules. En revanche, les masses d'air nord-américaines, qu'elles soient d'origine anthropique ou de feux de forêt, ont été régulièrement échantillonnées avec des excès de CO élevés et des concentrations en particules élevées. Par ailleurs, peu d'étude ciblaient les masses d'air issues de l'Amérique du Nord. C'est donc vers ces dernières que cette étude s'est tournée. L'étude des propriétés chimiques a permis de montrer l'importante abondance relative de la matière organique par rapport au sulfate dans les particules issues des feux de forêt alors que les deux espèces sont à concentrations égales pour les masses d'air anthropiques.

Une caractéristique particulière se détache des distributions en taille des particules d'aérosols issues de l'Amérique du Nord : elles présentent quasiment toutes un mode Aitken beaucoup plus prononcé que le mode accumulation. Lors de la comparaison de ces distributions avec celles de masses d'air issues de la même origine et d'un âge similaire (Fiebig et al., 2003; Petzold et al., 2007), il apparait que c'est le mode accumulation qui est moins concentré que celui mesuré par les précédentes études. L'hypothèse retenue pour expliquer ces faibles concentrations dans le mode accumulation est celle du dépôt humide, ce dernier étant dû à l'activation d'une partie des particules du mode accumulation en gouttelettes d'eau nuageuses puis à la précipitation de celles-ci ou alors au lessivage des particules par des gouttelettes précipitantes issues d'un nuage à une altitude supérieure. La dernière partie de ce chapitre, à travers l'étude de l'humidité relative et des taux de précipitation le long du trajet calculé des masses d'air, permet de confirmer l'hypothèse d'un dépôt humide d'une partie des particules composant le mode accumulation des panaches de pollution originaire de l'Amérique du Nord. L'ensemble des masses d'air étudiées durant cette campagne semblent avoir été soumises à ce dépôt humide. Il semblerait donc qu'une importante partie des particules de pollution contenues dans le mode accumulation (représentant donc un important volume) et transportées vers l'Arctique soit retirées de l'atmosphère. Ces particules n'accédant pas aux régions arctique, elles ne peuvent pas les impacter au travers des différents effets connus tels que les interactions avec les rayonnements ou la déposition sur la glace de particules absorbantes. Néanmoins, cette conclusion est basée sur l'étude de la région arctique au cours d'une campagne dont la durée (15 jours) ne saurait être représentative de l'intégralité de l'été.

L'étude des masses d'air nord-américaines permet donc de rendre compte qu'une faible quantité de matière réfractaire est transportée vers le Groenland en été (du moins au cours de la campagne POLARCAT été), et encore moins de carbone suie puisque le PSAP n'aura quasiment pas détecté de matière absorbante. Si il a été montré que l'ensemble des continents de l'hémisphère nord pouvait contribuer à pol-

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

luer la région arctique et plus précisément le Groenland, les mesures ont également montré que le vieillissement et la dispersion des panaches de pollution rencontrés étaient plus importants que durant le printemps au nord de la Suède. C'est pourquoi des mesures supplémentaires sont nécessaires, pour confirmer l'impact des saisons sur le transport de pollution et indirectement du dépôt humide mais également de la localisation des mesures. Enfin, une connaissance des propriétés des panaches de pollution proches des sources permettrait une meilleure compréhension des processus contraignant ces panaches ainsi que de leur évolution sur leur trajet vers l'Arctique.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Chapitre 6

Conclusions générales

6.1 Synthèse

La région arctique est plus impactée par le changement climatique que les autres régions de la Terre. Cette sensibilité peut paraitre paradoxale tant la contribution de ces régions à l'émission de gaz à effet de serre et de particules de pollution est faible. Par ailleurs, du fait de sa position septentrionale, la région arctique n'avait pas suscité autant d'attention que d'autres et les processus physiques et chimiques qui s'y produisaient restaient en partie méconnus et mal représentés par les modèles. Dans le cadre de la 4^e Année Polaire Internationale (API), le projet POLARCAT et les projets parallèles (ARCTAS, ARCPAC, ICEALOT, YAK) visaient à combler en partie cette absence de connaissance (du moins leur composante atmosphérique) à l'aide de la modélisation régionale et globale du transport et des processus d'évolutions des principaux facteurs atmosphériques (gaz, particules, nuages) affectant les régions arctiques et de campagnes de mesures aéroportées au cours desquelles une instrumentation récente était embarquée à bord de l'ATR-42 français. La contribution de cette thèse à cet important chantier concerne l'étude des particules d'aérosols transportées vers les régions arctiques et mesurées durant les deux campagnes de mesures menées autour de Kiruna en Suède (avril 2008) et Kangerlussuaq au Groenland (juillet 2008).

Ainsi, la campagne de printemps aura permis d'identifier et de caractériser seize panaches de pollution dont les origines ont été déterminées à l'aide du modèle lagrangien de rétro-trajectoires FLEXPART. Les différentes origines des panaches (Europe et Asie), tout comme leurs différentes natures (feux de forêts ou émissions anthropiques) ont permis une étude large, bien que restreinte à deux semaines, des divers types de pollutions pouvant être transportées en Arctique. Ainsi, les feux de forêts étudiés, qu'ils viennent d'Europe ou d'Asie, possédaient des caractéristiques communes, notamment au niveau des distributions en nombre de particules en fonction de leur diamètre. Un important mode accumulation centré entre 134 et 150 nm suffisait quasiment à les représenter, ce mode se désorbant, après chauffage à 280°C, uniformément vers un mode réfractaire centré lui entre 74

et 78 nm.
De façon surprenante, ce mode représentatif des particules issues des feux de forêts se retrouvait dans d'autres panaches dont l'origine avait été simulée comme anthropique ou mixte par le modèle FLEXPART. Deux panaches européens de pollution anthropique voient ainsi leurs distributions réfractaires dominées par ce mode associé aux feux. Par ailleurs l'analyse d'un panache asiatique déjà étudié en partie par De Villiers et al. (2010) et composé d'un mélange d'émissions anthropiques et de feux de forêts voit sa distribution en nombre de particules dans la gamme de diamètre du mode accumulation se séparer en deux modes distincts, l'un d'eux n'étant autre que celui rattaché aux feux de forêt centré à 150 nm. Le second mode étant lui relié à des composés organiques qui, certainement à cause de leur vieillissement, présentent des propriétés réfractaires importantes et identiques à la littérature.
Pour cette même période de mesure POLARCAT-printemps, une étude de cas a permis de caractériser l'évolution d'une masse d'air dans l'atmosphère arctique. En effet, un panache anthropique européen a été échantillonné durant trois jours consécutifs et l'évolution de ses propriétés a pu être étudiée. Ainsi, il a été constaté que le rapport de mélange du CO ainsi que le coefficient d'absorption de la lumière décroissaient exponentiellement alors que l'augmentation du diamètre moyen du mode Aitken augmentait exponentiellement, la volatilité des particules d'aérosols restant constante lors des deux premiers jours avant de décroitre le dernier jour. L'évolution des concentrations et des diamètres moyens des modes Aitken et accumulation par coagulation a été modélisée, mettant en avant que la coagulation seule ne pouvait expliquer les évolutions observées. Le processus de condensation semble donc significatifs également dans l'évolution et le vieillissement des particules d'aérosols transportées en Arctique au printemps. Il reste néanmoins une contradiction entre l'augmentation de matière volatile qu'aurait du apporter la condensation et la fraction volatile volumique qui reste constante et diminue même le dernier jour. Cette contradiction peut partiellement être expliquée par le vieillissement d'une partie de la matière organique déjà présente dans les particules qui serait donc devenue réfractaire. Mais il est difficile de croire que ce vieillissement puisse compenser à lui seul l'augmentation de volume due à la condensation.

Le phénomène de brume arctique, bien documenté dans la littérature, apparait particulièrement durant l'hiver et le printemps. C'est pourquoi la majorité des campagnes de mesures visant à le caractériser ont eu lieu lors de ces périodes. En ce sens, les mesures effectuées durant la campagne d'été sont rares et donnent un point de vue original sur l'Arctique. Ainsi, plus de 40 panaches de pollution

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

ont été isolés et leurs origines identifiées. Néanmoins, peu de panache étaient associés à d'importantes concentrations de CO, laissant croire qu'ils avaient été émis depuis de nombreux jours et/ou qu'ils avaient subi une importante dispersion. Les panaches originaires d'Amérique du Nord, l'origine la plus proche, ont donc été les principaux sujets d'étude de cette campagne. Après comparaison avec des mesures de panaches de la même origine et du même âge FLEXPART (mais pas mesurés au même endroit), il est apparu que les modes accumulation présentaient un déficit de concentration dans la plupart des panaches alors que les modes Aitken étaient dans un même ordre de grandeur. Ce déficit a été expliqué par le dépôt humide survenu sur le trajet des panaches entre les sources et le Groenland. Ce processus de lessivage impacte préférentiellement les particules dont les diamètres font partis du mode accumulation. Ce processus semble malheureusement avoir eu lieu pour l'ensemble des panaches nord-américains étudiés, ne nous permettant pas d'inter-comparer les panaches soumis et non soumis au processus de dépôt humide. Une importante conséquence de ce dépôt est que les probables particules réfractaires et absorbantes qui se retrouvent dans ce mode ont en grande partie disparu et ne peuvent impacter le climat en Arctique. De plus, leur dépôt humide étant effectué au dessus du continent nord-américain ou de la mer du Labrador, il n'aura pas impacté non plus la fonte de la glace.

D'un point de vue général, ces deux campagnes de mesures apportent une vision nouvelle d'une partie de l'atmosphère arctique au printemps et en été. Les quelques exemples qui ont été traités durant ces travaux de thèse mettent en avant la grande diversité des origines et des caractéristiques des panaches de pollution transportés vers l'Arctique, bien que quelques parallèles puissent être fais. L'aspect peu répétitif des mesures pose quelques problèmes vis à vis des statistiques, d'autant que la plupart du temps, l'aspect très « filamenteux » de l'atmosphère conduit à des temps d'échantillonnage assez courts. Néanmoins, ces travaux fournissent des données précieuses aux modélisateurs qui étaient dans l'attente de mesures in-situ leur permettant de mieux modéliser le transport de pollution vers l'Arctique ainsi que les processus qui y sont rattachés. Les campagnes de mesure POLARCAT constituent une « première approche » de l'atmosphère arctique qui a permis d'initier la mise en place d'une climatologie des particules de pollution transportées vers l'Arctique plus précise que celles existantes. Mais de par leur ponctualité et leurs localisations restreintes, les conclusions de ces analyses ne peuvent pas et ne doivent pas être généralisées à l'ensemble de l'atmosphère arctique. En revanche, elles constituent un point de départ intéressant pour des études futures.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

6.2 Perspectives

Dans la continuité de ces travaux de thèse, plusieurs orientations doivent être suivies pour aller plus loin dans la compréhension des panaches de pollution transportés en Arctique. Des campagnes de mesures supplémentaires sont bien entendu également nécessaires pour cibler davantages les panaches de pollution. Les principales voies de transport des panaches étant désormais bien documentées, il serait souhaitable d'augmenter la durée d'échantillonnage de ces panaches en organisant, par exemple, les plans de vols sous forme de « quadrillage » ou, à l'instar du dernier vol de la campagne de printemps, en traversant le panache de pollution verticalement à plusieurs reprises. Cette stratégie présenterait l'avantage d'augmenter la quantité de données relatives à un panache en réduisant par la même occasion les incertitudes qui y seraient rattachées. D'importantes informations seraient également enregistrées concernant l'hétérogénéité du panache. Enfin, la focalisation de plusieurs vols sur un même panache (avec plusieurs avions ?), dont les premières mesures seraient faites à proximité des zones d'émissions permettrait, à l'aide d'instruments mesurant les concentrations des espèces chimiques sous forme gazeuse (PTRMS) et particulaire (AMS), de caractériser de façon plus précise les processus de vieillissement impactant le panache et notamment le processus de condensation, apportant de nouvelles données qui combleraient les modélisateurs. La synergie de ces mesures avec celles obtenues par satellite (extinction, épaisseur optique) semble également indispensable pour permettre dans un premier temps de valider ces mesures à distance, avant dans un second temps d'utiliser ces instruments de mesures continues pour une étude à plus long terme du transport des panaches de pollution vers l'Arctique. Par ailleurs, une attention particulière devrait être donnée aux mesures concernant le carbone suie. En effet, c'est un des facteurs clés dans la quantification de l'impact de la pollution transportée en Arctique et son étude, au cours de travaux de cette thèse n'a pas permis de quantifier sa présence. L'aspect nuage devra également être pris en considération tant les interactions entre particules d'aérosols et nuages en Arctique sont méconnues. C'est ce que propose de faire en partie le projet ANR CLIMSPLIP, qui mesurera sur le long-terme les propriétés microphysiques de l'atmosphère au Spitzberg ainsi que les concentrations en carbone suie (déposées sur la neige).

Un second aspect particulièrement important à aborder dans la continuité de ces travaux est la modélisation. La modélisation du transport des panaches depuis les régions sources vers l'Arctique est un sujet qui n'a pas été traité au cours de ces travaux. C'est pourtant un aspect primordial qui permettra, contrairement aux

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

mesures in-situ, d'avoir une vision plus globale du comportement des panaches de pollution dans l'intégralité de l'atmosphère arctique. Les deux campagnes de mesure POLARCAT ainsi que les campagnes parallèles ont mis à disposition des modélisateurs d'importants jeux de données relatifs à l'Arctique qui doivent désormais être utilisés pour étendre l'étude du transport de la pollution à l'ensemble de l'atmosphère arctique. C'est en partie ce que propose de faire le projet européen ECLIPSE dont le but principal est d'améliorer la connaissance du transport des polluants à courte durée de vie vers l'Arctique. Une partie du projet ANR CLIMSPLIP vise également à modéliser le transport de la pollution vers l'Arctique en synergie avec les mesures qui seront effectuées conjointement.

Pour finir, il convient de rappeler que l'Arctique est une zone sensible aux divers forceurs du changement climatique et ce, malgré l'absence quasi-totale d'émissions de pollutions en son sein. L'ouverture probable du passage du nord-ouest au cours de la prochaine décennie à la navigation marchande et l'engouement qu'elle suscitera risquent d'augmenter encore l'impact de l'Homme sur cet environnement protégé alors que nous commençons seulement à comprendre son fonctionnement (voir le dossier spécial récemment publié par la revue Nature sur l'évolution de l'Arctique « après la glace[1] »). En conclusion, les mots de Roald Amundsen, explorateur Arctique et premier capitaine à traverser le passage nord-ouest, permettent de résumer parfaitement la situation :

« Everything is on a reduce scale here in the Polar Regions ;
we can't afford to be extravagant. »

1. http ://www.nature.com/news/specials/arcticfrontier/index.html

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Bibliographie

Ackerman, S., Toon, O. B., Stevens, D. E., Heymsfeld, A. J., Ramanathan, V., and Welton, E. J. : Reduction of tropical cloudiness by soot, Science, 288, 1042–1057, doi:10.1126/science.288.5468.1042, 2000. (Cité en page 6.)

Adler, G., Riziq, A. A., Erlick, C., and Rudich, Y. : Effect of intrinsic organic carbon on the optical properties of fresh diesel soot, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 107, 6699–6704, doi:10.1073/pnas.0903311106, 2009. (Cité en pages 19 et 21.)

Aitchison, J. and Brown, J. A. C. : The lognormal distribution, Cambridge University Press, Cambridge (USA), 1957. (Cité en page 14.)

Albrecht, B. A. : Aerosols, Cloud Microphysics, and Fractional Cloudiness, Science, 245, 1227–1230, 1989. (Cité en page 7.)

Anderson, J. G., Toohey, D. W., and Brune, W. H. : Free radicals within the Antarctic vortex : The role of CFC in Antarctic ozone loss, Science, 251, 39–46, doi:10.1126/science.251.4989.39, 1991. (Cité en page 3.)

Andreae, M. O. : Soot carbon and excess fine potassium : Long-range transport of combustion-derived aerosols, Science, 220, 1148–1151, 1983. (Cité en page 64.)

Andreae, M. O. and Merlet, P. : Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, Global Biogeochem. Cycles, 15, doi:10.129/2000GB001382, 2001. (Cité en page 94.)

Andrews, E., Sheridan, P. J., Fiebig, M., McComiskey, A., Ogren, J. A., Arnott, P., Covert, D., Elleman, R., Gasparini, R., Collins, D., Jonsson, H., Schmid, B., and Wang, J. : Comparison of methods for deriving aerosol assymetry parameter, J. Geophys. Res., 111, D05S04, doi:10.1029/2004jd005734, 2006. (Cité en page 109.)

Angstrom, A. : On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air, Geografiska Annaler, 11, 156–166, 1929. (Cité en page 108.)

Benton, A. K., Langridge, J. M., Ball, S. M., Bloss, W. J., Dall'Osto, M., Nemitz, E., Harrison, R. M., and Jones, R. L. : Night-time chemistry above London : measurements of NO_3 and N_2O_5 from the BT tower, Atmos. Chem. Phys., 10, 9781–9795, doi:10.5194/acp-10-9781-2010, 2010. (Cité en page 78.)

Bohren, C. and Huffman, D. : Absorption and scattering of light by small particles, John Wiley, New York, 1983. (Cité en page 18.)

Bond, T. C., Anderson, T. L., and Campbell, D. : Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols, Aerosol Science and Technology, 30, 582–600, 1999. (Cité en page 37.)

Boulon, J., Sellegri, K., Venzac, H., Picard, D., Weingartner, E., Wehrle, G., Collaud Cohen, M., Bütikofer, E., Baltensperger, U., and Laj, P. : New particle formation and ultrafine charged aerosol climatology at a high altitude site in the Alps (Jungfraujoch, 3580 m a.s.l, Switzerland), Atmos. Chem. Phys., 10, 9333–9349, doi:10.5194/acp-10-9333-2010, 2010. (Cité en page 26.)

Brock, C., Radke, L., and Hobbs, P. : Sulfur in particles in Arctic hazes derived from airborne in situ and lidar measurements, J. Geophys. Res., 95, 22 369–22 387, 1990. (Cité en pages 9 et 27.)

Brock, C. A., Cozic, J., Bahreini, R., Froyd, K. D., Middlebrook, A. M., McComiskey, A., Brioude, J., Cooper, O. R., Stohl, A., Aikin, K. C., De Gouw, J. A., Fahey, D., Ferrare, R., Gao, R. S., Gore, W., Holloway, J. S., Hübler, G., Jefferson, A., Lack, D. A., Lance, S., Moore, R. H., Murphy, D. M., Nenes, A., Novelli, P. C., Nowak, J. B., Ogren, J. A., Peischl, J., Pierce, R. B., Pilewskie, P., Quinn, P. K., Ryerson, T. B., Schmidt, K. S., Schwarz, J. P., Sodemann, H., R., S. J., Stark, H., Thomson, D. S., Thornberry, T., Veres, P., Watts, L. A., Warneke, C., and Wollny, A. G. : Characteristics, sources, and transport of aerosols measured in spring 2008 during the aerosol, radiation, ad cloud processes affecting Arctic Climate (ARCPAC) project, Atmos. Chem. Phys., 11, 2423–2453, doi:10.5194/acp-11-2423-2011, 2011. (Cité en page 30.)

Browell, E., Butler, C., Kooi, S., Fenn, M., Harriss, R., and Gregory, G. : Large scale variability of ozone and aerosols in the summertime Arctic and sub-Arctic troposphere, J. Geophys. Res., 97, 16 433–16 450, 1992. (Cité en pages 9 et 27.)

Burrows, J. P., Holzle, E., Goede, A. P. H., Visser, H., and Fricke, W. : SCIAMACHY – Scanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CartographY, Acta Astronautica, 35, 445–451, doi:10.1016/0094-5765(94)00278-T, 1995. (Cité en page 28.)

Canagaratna, M., Jayne, J., Jimenez, J., Allan, J., Alfarra, M., Zhang, Q., Onasch, T., Drewnick, F., Coe, H., Middlebrook, A., Delia, A., Williams, L., Trimborn, A., Northway, M., DeCarlo, P., Kolb, C., Davidovits, P., and Worsnop, D. : Chemical

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer, Mass Spectrom. Rev., 26, 185–222, doi:10.1002/mas.20115, 2007. (Cité en page 39.)

Cavalieri, D. J., Gloersen, P., Parkinson, C. L., Comiso, J. C., and Zwally, H. J. : Observed hemispheric assymetry in global sea ice changes, Science, 278, 1104–1106, 1997. (Cité en page 3.)

Chapman, W. L. and Walsh, J. E. : Simulation of Arctic temperature and pressure by global coupled model, J. Clim., 20, 609–632, doi:10.1002/joc.1305, 2007. (Cité en pages 2 et 7.)

Charlson, R. J., Langner, J., and Rodhe, H. : Sulphate aerosol and climate, Nature, 348, 22, doi:10.1038/348022a0, 1990. (Cité en page 5.)

Charlson, R. J., Schwartz, S. E., Hales, J. M., Cess, R. D., Coackley Jr, J. A., Hansen, J. E., and Hofmann, D. J. : Climate forcing by anthropogenic aerosols, Science, 255, 423–430, doi:10.1126/science.255.5043.423, 1992. (Cité en page 6.)

Coakley, J. A. J., Bernstein, R. L., and Durkee, P. A. : Effect of ship-stack effluents on cloud reflectivity, Science, 237, 1020–1022, 1987. (Cité en page 7.)

Costabile, F., Birmili, W., Klose, S., Tuch, T., Wehner, B., Wiedensohler, A., Franck, U., König, K., and Sonntag, A. : Spatio-temporal variability and principal components of the particle number size distributions in an urban atmosphere, Atmos. Chem. Phys., 9, 3163–3195, doi:10.5194/acp-9-3163-2009, 2009. (Cité en page 67.)

Covert, D. S. and Heintzenberg, J. : Size distributions and chemical properties of aerosol at Ny Alesund, Svalbard, Atmos. Environ., 27, 2989 – 2997, doi:DOI : 10.1016/0960-1686(93)90331-R, 1993. (Cité en page 15.)

Curry, J. A., Hobbs, P. V., King, M. D., Randall, D. A., Minnis, P., Isaac, G. A., Pinto, J. O., Uttal, T., Bucholtz, A., Cripe, D. G., Gerber, H., Fairall, C. W., Garrett, T. J., Hudson, J., Intrieri, J. M., Jakob, C., Jensen, T., Lawson, P., Marcotte, D., Nguyen, L., Pilewskie, P., Rangno, A., Rogers, D. C., Strawbridge, K. B., Valero, F. P. J., Williams, A. G., and Wylie, D. : FIRE Arctic Clouds Experiment, Bull. Am. Met. Soc., 81, 5–30, 2000. (Cité en page 9.)

Curtius, J. : Nucleation of atmospheric aerosol particles, Comptes Rendus Physique, 7, 1027–1045, doi:10.1016/j.crhy.2006.10.018, 2006. (Cité en page 23.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

de Boer, G., Tripoli, G. J., and Eloranta, E. W. : Preliminary comparison od CloudSat-derived microphysical quantities with ground-based measurements for mixed-phase could research in the Arctic, J. Geophys. Res., 113, D00A06, doi:10.1029/2008JD010029, 2008. (Cité en page 28.)

De Villiers, R. A., Ancellet, G., Pelon, J., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Gayet, J.-F., and Law, K. S. : Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic, Atmos. Chem. Phys., 10, 5011–5030, doi:10.5194/acp-10-5011-2010, 2010. (Cité en pages 28, 30, 38, 48, 51, 58, 79 et 116.)

Delmas, R., G., M., and Peuch, V.-H. : Physique et chimie de l'atmosphère, Belin, 2005. (Cité en pages 22, 23 et 24.)

Delworth, T. L. and Mann, M. E. : Observed and simulated multidecadal variability in the Northern hemisphere, Clim. Dynam., 16, 661–676, doi:10.1007/s003820000075, 2000. (Cité en page 3.)

Deser, C. : On the teleconnectivity of the "Arctic Oscillation", Geophys. Res. Let., 27, 779–782, doi:10.1029/1999GL010945, 2000. (Cité en page 2.)

Dickson, R. R., Osborn, T. J., Hurrell, J. W., Meincke, J., Blindheim, J., Adlandsvik, B., Vinje, T., Alexseev, G., and Maslowski, W. : The Arctic ocean response to the North Atlantic oscillation, J. Clim., 13, 2671–2696, doi:10.1175/1520-0442(2000)013<2671 :TAORTT>2.0.CO ;2, 2000. (Cité en page 3.)

Draxler, R. R. and Rolph, G. D. : HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (http ://ready.arl.noaa.gov/HYSPLIT.php), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD, 2010. (Cité en pages 40 et 110.)

Dreiling, V. and Friederich, B. : Spatial distribution of the arctic haze aerosol size distribution in western and eastern Arctic, Atmos. Res., 44, 133–152, doi:10.1016/S0169-8095(96)00035-X, 1997. (Cité en pages 8, 9 et 27.)

Drewnick, F., Hings, S. S., DeCarlo, P., Jayne, J. T., Gonin, M., Fuhrer, K., Weimer, S., Jimenez, J. L., Demerjian, K. L., Borrmann, S., and Worsnop, D. R. : A New Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer (TOF-AMS)—Instrument Description and First Field Deployment, Aerosol Science and Technology, 39, 637–658, doi:10.1080/02786820500182040, 2005. (Cité en page 39.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanre, D., and Slutsker, I. : Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worlwide locations, J. Atmos. Sci., 59, 590–608, 2002. (Cité en page 108.)

Eckhardt, S., Stohl, A., Beirle, S., Spichtinger, N., James, P., Forster, C., Junker, C., Wagner, T., Platt, U., and Jennings, S. G. : The North Atlantic Oscillation controls air pollution transport to the Arctic, Atmos. Chem. Phys., 3, 1769–1778, doi:10.5194/acp-3-1769-2003, 2003. (Cité en page 2.)

Ehn, M., Birmili, W., Juninnen, H., Aalto, P., and Kulmala, M. : Non-volatile residuals of newly formed atmospheric particles in the boreal forest, Atmos. Chem. Phys., 7, 677–684, doi:10.5194/acp-7-677-2007, 2007. (Cité en page 81.)

Eleftheriadis, K., Vratolis, S., and Nyeki, S. : Aerosol black carbon in the European Arctic : Measurements at Zeppelin station, Ny-Alesund, Svalbard from 1998-2007, Geophys. Res. Let., 36, L02 809, doi:10.1029/2008GL035741, 2009. (Cité en pages 9 et 26.)

Engvall, A.-C., Krejci, R., Ström, J., Minikin, A., Treffeisen, R., Stohl, A., and Herber, A. : In-situ airborne observations of the microphysical properties of the Arctic tropospheric aerosol during late spring and summer, Tellus B, 60, 392–404, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00348.x, 2008. (Cité en page 27.)

Engvall, A.-C., Ström, J., Tunved, P., Krejci, R., Schlager, H., and Minikin, A. : The radiative effect of an aged, internally mixed Arctic aerosol originating from lower-latitude biomass burning, Tellus B, 61, 677–684, doi:10.1111/j.1600-0889.2009.00431.x, 2009. (Cité en page 15.)

Farahani, E., Fast, H., Mittermeier, R. L., Makino, Y., Strong, K., McLandress, C., Shepherd, T. G., Chipperfield, M. P., Hannigan, J. W., Coffey, M. T., Mikuteit, S., Hase, F., Blumenstock, T., and Raffalski, U. : Nitric acid measurements at Eureka obtained in winter 2001-2002 using solar and lunar Fourier transform infrared absorption spectroscopy : Comparisons with observations at Thule and Kiruna and with results from three-dimensional models, J. Geophys. Res., 112, D01 305, doi:10.1029/2006JD007096, 2007. (Cité en page 26.)

Fiebig, M., Stohl, A., Wendisch, M., Eckhardt, S., and Petzold, A. : Dependence of solar radiative forcing of forest fire aerosol on ageing and state of mixture, Atmos. Chem. Phys., 3, 881–891, doi:10.5194/acp-3-881-2003, 2003. (Cité en pages 99, 112 et 113.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Flanner, M., Zender, C. S., Randerson, J. T., and Rasch, P. J. : Present-day climate forcing and response from black carbon in snow, J. Geophys. Res., 112, D11 202, doi:10.1029/2006JD008003, 2007. (Cité en page 9.)

Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D.C.and Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Van Dorland, R. : Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In : Climate Change 2007 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA., 2007. (Cité en pages 6, 7 et 8.)

Frost, G. J., McKeen, S. A., Trainer, M., Ryerson, T. B., Neuman, J. A., Roberts, J. M., Swanson, A., Holloway, J. S., Sueper, D. T., Fortin, T., Parrish, D. D., Fehsenfeld, F. C., Flocke, F., Peckham, S. E., Grell, G. A., Kowal, Cartwright, J., Auerbach, N., and Habermann, T. : Effects of changing power plant NO_x emissions on ozone in the eastern United States : Proof of concept, J. Geophys. Res., 111, D12 306, doi:10.1029/2005JD006354, 2006. (Cité en page 43.)

Fuchs, N. A. : The mechanics of aerosols, Pergamon, Oxford, 1964. (Cité en page 71.)

Garrett, T. J. and Zhao, C. : Increased Arctic cloud longwave emissivity associated with pollution from mid-latitudes, Nature, pp. 787–789, 2006. (Cité en pages 7 et 9.)

GIEC : Bilan 2007 des changements climatiques. Contribution des Groupes de travail I, II et III au quatrième Rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat [Équipe de rédaction principale, Pachauri, R.K. et Reisinger, A. (publié sous la direction de)], Tech. rep., GIEC, Genève, Suisse, 2007. (Cité en pages 1, 2 et 4.)

Giglio, L., Descloitres, J., Justice, C. O., and Kaufman, Y. : An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, Rem. Sens. Environ., 87, 273–282, doi:10.1016/S0034-4257(03)00184-6, 2003. (Cité en page 41.)

Greenaway, K. R. : Experiences with Arctic flying weather, Royal Meteorol. Soc. Can. Branch, Toronto, Ont., Canada, 1950. (Cité en page 8.)

Guazzotti, S. A., Suess, D. T., Coffee, K. R., Quinn, P. K., Bates, T. S., Wisthaler, A., Hansel, A., Ball, W. P., Dickerson, R. R., Neususs, C., Crutzen, P. J., and Prather, K. A. : Characterization of carbonaceous aerosols outflow from India

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

and Arabia : Biomass/biofuel burning and fossil fuel combustion, J. Geophys. Res., 108, doi:10.1029/2002JD003277, 2003. (Cité en page 64.)

Guyon, P., Franck, G. P., Welling, M., Chand, D., Artaxo, P., Rizzo, L., Nishioka, G., Kolle, O., Fritsch, H., Silva Dias, M. A. F., Gatti, L. V., Cordova, A. M., and Andreae, M. O. : Airborne measurements of trace gas and aerosol particle emissions from biomass burning in Amazonia, Atmos. Chem. Phys., 5, 2989–3002, doi:10.5194/acp-5-2989-2005, 2005. (Cité en page 57.)

Hallquist, M., Stewart, D. J., Baker, J., and Cox, R. A. : Hydrolysis of N_2O_5 on submicron sulfuric acid aerosols, J. Phys. Chem. A, 104, 3984–3990, 2000. (Cité en page 78.)

Hansen, J., Sato, M., Ruedy, R., and et al. : Climate simulations for 1880-2003 with GISS modelE, Clim. Dynam., 29, 661–696, doi:10.1007/s00382-007-0255-8, 2007. (Cité en page 9.)

Hansen, M., DeFries, R., Townshend, J. R. G., and Sohlberg, R. : Global land cover classification at 1 km resolution using a decision tree classifier, Intern. J. Rem. Sens., 21, 1331–1365, 2000. (Cité en page 41.)

Haywood, J. M. and Shine, K. P. : The effect of anthropogenic sulfate and soot aerosol on the clear-sky planetary radiation budget, Geophys. Res. Let., 22, 603–606, 1995. (Cité en page 6.)

Heald, C. L., Jacob, D. J., Alexander, B., Fairlie, T. D., Yantosca, R. M., and Chu, D. A. : Transpacific transport of Asian anthropogenic aerosols and its impact on surface air quality in the United States, J. Geophys. Res., 111, doi:10.129/2005JD006847, 2006. (Cité en pages 78 et 94.)

Heintzenberg, J. : Particle size distribution and optical properties of Arctic haze, Tellus, 32, 251–260, doi:10.1111/j.2153-3490.1980.tb00952.x, 1980. (Cité en page 15.)

Heintzenberg, J., Wiedensohler, A., Tuch, T. M., Covert, D. S., Sheridan, P. J., Ogren, J. A., Gras, J., Nessler, R., Kleefeld, C., Kalivitis, N., Aaltonen, V., Wilhelm, R.-T., and Havlicek, M. : Intercomparisons and aerosol calibrations of 12 commercial integrating nephelometers of three manufacturers, Journal of Atmospheric and Oceanic Technology, 23, 902–914, doi:10.1175/JTECH1892.1, 2005. (Cité en page 37.)

Hervo, M., Quennehen, B., Kristiansen, N. I., Boulon, J., Stohl, A., Fréville, P., Pichon, J.-M., Picard, D., Labazuy, P., Gouhier, M., Colomb, A., Schwarzenboeck,

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

A., and Sellegri, K. : Physical and optical properties of 2010 Eyjafjallajökull volcanic eruption aerosol : groud-based, LIDAR and airborne measurements in France, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 11, 24 631–24 670, doi:10.5194/acpd-11-24631-2011, 2011. (Cité en pages 4 et 28.)

Hillamo, R., Kerminen, V.-M., Maenhaut, W., Jaffrezo, J.-L., Balachandran, S., and Davidson, C. : Size distributions of atmospheric trace elements at dye 3, Greenland – I. Distribution characteristics and dry deposition velocities, Atmos. Environ., 27, 2787 – 2802, doi:DOI : 10.1016/0960-1686(93)90311-L, 1993. (Cité en page 15.)

Hinds, W. C. : Aerosol technology : properties, behaviour and measurement of airborne particles, Wiley-Interscience, 1999. (Cité en page 34.)

Hulot, N. : Pour un pacte écologique, Editions Calmann-Levy, 2007. (Cité en page 1.)

Hurrell, J. W. : Decadal trends in the North Atlantic Oscillation : Regional temperatures and precipitation, Science, 269, 676–679, doi:10.1126/science.269.5224.676, 1995. (Cité en page 2.)

Hussein, T., Hämeri, K., Aalto, P., Paatero, P., and Kulmala, M. : Modal structure and spatial-temporal variations of urban and suburban aerosols in Helsinki, FInland, Atmos. Environ., 39, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.11.031, 2005. (Cité en page 67.)

IPCC : Climate Change 2007 : Synthesis Report. Contribution of Working groups I, II and III to the fourth Assessement Report of the Intergouvernemental Panel on Climate Change [Core Writing Team, Pachauri, R.K and Reisinger, A. (eds.)], IPCC, Geneva, Switzerland, 2007. (Cité en pages 21 et 22.)

Jacob, D. J., Crawford, J. H., Maring, H., Clarke, A. D., Dibb, J. E., Emmons, L. K., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., Russell, P. B., Singh, H. B., Thompson, A. M., Shaw, G. E., McCauley, E., Pederson, J. R., and Fisher, J. A. : The Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS) mission : design, execution, and first results, Atmos. Chem. Phys., 10, 5191–5212, doi:10.5194/acp-10-5191-2010, 2010. (Cité en page 30.)

Jacobson, M. Z. : Strong radiative heating due to the mixing state of black carbon in atmospheric aerosols, Nature, 409, 695–697, 2001. (Cité en page 16.)

Jacobson, M. Z. : Climate response of fossil fuel and biofuel soot, accounting for soot's feedback to snow and sea ice albedo and emissivity, J. Geophys. Res., 109, D21 201, doi:10.1029/2004JD004945, 2004. (Cité en pages 8 et 26.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Jacobson, M. Z. : Fundamentals of atmospheric modeling, second edition, Cambridge University press, Cambridge, UK, 2005. (Cité en pages 70, 71, 72 et 73.)

Jorgensen, T. S. : On particles in the Arctic stratosphere, Annals of Geophysics, 46, 341–352, 2003. (Cité en page 21.)

Kaufman, Y. J. and Nakajima, T. : Effect of Amazon smoke on cloud microphysics and albedo - Analysis from satellite imagery, J. Appl. Meteorol., 32, 729–744, 1993. (Cité en page 6.)

Kerminen, V. M., Pirjola, L., Boy, M., Eskola, A., Teinila, K., Laasko, L., Asmi, A., Hienola, J., Lauri, A., Vainio, V., Lethinen, K., and Kulmala, M. : Interaction between SO2 and submicron atmospheric particles, Atmos. Res., 54, 41–57, doi:10.1016/S0169-8095(00)00038-7, 2000. (Cité en page 78.)

Kiehl, J. T. and Briegleb, B. P. : The relative roles of sulfate aerosols and greenhouse gases in climate forcing, Science, 260, 311–314, doi:10.1126/science.260.5106.311, 1993. (Cité en page 5.)

Kim, Y. and Cess, R. D. : Effect of anthropogenic sulfate aerosols on low-level cloud albedo over oceans, J. Geophys. Res., 98, 14 883–14 885, 1993. (Cité en page 7.)

Koch, D. and Hansen, J. : Distant origins of black carbon : A Goddart Institute for Space Studies ModelE experiment, J. Geophys. Res., 110, D04 204, doi:10.1029/2004JD005296, 2005. (Cité en page 9.)

Konovalov, I. B., Beekmann, M., Kuznetsova, I. N., Yurova, A., and Zvyagintsev, A. M. : Atmospheric impacts of the 2010 Russian wildfires : integrating modelling and measurements of the extreme air pollution episode in the Moscow megacity region, Atmos. Chem. Phys., 11, 10 031–10 056, doi:10.5194/acp-11-10031-2011, 2011. (Cité en page 4.)

Lubin, D. and Vogelmann, A. M. : A climatologically significant aerosol longwave indirect effect in the Arctic, Nature, pp. 453–456, 2006. (Cité en page 7.)

Manney, G. L., Santee, M. L., Rex, M., Livesey, N. J., Pitts, M. C., Veefkind, P., Nash, E. R., Wohltmann, I., Lehmann, R., Froidevaux, L., Poole, L. R., Schoeberl, M. R., Haffner, D. P., Davies, J., Dorokhov, V., Gernaudt, H., Johnson, B., Kivi, R., Kyrö, E., Larsen, N., Levelt, P. F., Makshtas, A., McElroy, C. T., Nakajima, H., Parrondo, M. C., Tarasick, D. W., Von der Gathen, P., Walker, K. A., and Zinoviev, N. S. : Unprecedented Arctic ozone loss in 2011, Nature, doi:10.1038/nature10556, 2011. (Cité en page 3.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Matsuki, A., Iwasaka, Y., Shi, G. Y., Chen, H. B., Osada, K., Zhang, D., Kido, M., Inomata, Y., Kim, Y. S., Trochkine, D., Nishita, C., Yamada, M., Nagatani, M., and Nakata, H. : Heterogeneous sulfate formation on dust surface and its dependence on mineralogy : Balloon-borne measurements in the surface atmosphere of Beijing, China, Water, Air and Soil Pollution : Focus, 5, 101–132, 2005a. (Cité en page 61.)

Matsuki, A., Iwasaka, Y., Shi, G. Y., Zhang, D., Trochkine, D., Yamada, M., Kim, Y. S., Chen, B., Nagatani, T., Miyazawa, T., Nagatani, M., and Nakata, H. : Morphological and chemical modification of mineral dust : Observational insight into the heterogeneous uptake of acidic gases, Geophys. Res. Let., 32, L22 806, doi:10.1029/2005GL024176, 2005b. (Cité en page 61.)

Matsuki, A., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Crumeyrolle, S., Venzac, H., Laj, P., and Gomes, L. : Temporal and vertical variations of aerosol physical and chemical properties over West Africa : AMMA aircraft campaign in summer 2006, Atmos. Chem. Phys., 10, 8437–8451, doi:10.5194/acp-10-8437-2010, 2010. (Cité en page 61.)

Mayewski, P. A., Lyons, W. B., Spencer, M. J., Twickler, M., Dansgaard, W., Koci, B., Davidson, C. I., and Honrath, R. E. : Sulfate and nitrate concentrations from a south Greenland ice core, Science, 232, 975–977, 1986. (Cité en page 2.)

Mayewski, P. A., Lyons, W. B., Spencer, M. J., Twickler, M. S., Buck, C. F., and Whitlow, S. : an ice-core record of atmospheric response to anthropogenic sulfate and nitrate, Nature, 346, 554–556, 1990. (Cité en page 2.)

McConnell, J. R., Edwards, R., Kok, G. L., Flanner, M. G., Zender, C. S., Saltzman, E. S., Banta, J. R., Pasteris, D. R., Carter, M. M., and Kahl, J. D. W. : 20th-century industrial black carbon emissions altered Arctic climate forcing, Science, 317, 1381–1384, doi:10.1126/science.1144856, 2007. (Cité en page 9.)

McCormick, R. A. and Ludwig, H. : Climate modification by atmospheric aerosols, Science, 156, 1358–1359, 1967. (Cité en pages 4 et 6.)

McMeeking, G. R., Hamburger, T., Liu, D., Flynn, M., Morgan, W. T., Northway, M., Highwood, E. J., Krejci, R., Allan, J. D., Minikin, A., and Coe, H. : Black carbon measurements in the boundary layer over western and northern Europe, Atmos. Chem. Phys., 10, 9393–9414, doi:10.5194/acp-10-9393-2010, 2010. (Cité en page 70.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

McNaughton, C. S., Clarke, A. D., Howell, S. G., Pinkerton, M., Anderson, B., Thornhill, L., Hudgins, C., Winstead, E., Dibb, J. E., Scheuer, E., and Maring, H. : Results from the DC-8 inlet characterization experiment (DICE) : Airborne versus surface sampling of mineral dust and sea salt aerosols, Aerosol Science and Technology, 41, 136–159, doi:10.1080/02786820601118406, 2007. (Cité en page 32.)

Menon, S. and Rotstayn, L. : The radiative influence of aerosol effects on liquid-phase cumulus and stratiform clouds based on sensitivity studies with two climate models, Clim. Dynam., 27, 345–356, 2006. (Cité en page 9.)

Mentel, T. F., Bleilebens, D., and Wahner, A. : A study of nighttime nitrogen oxide oxidation in a large reaction chamber – The fate of NO_2, N_2O_5, HNO_3, and O_3 at different humidities, Atmos. Environ., 30, 4007–4020, 1996. (Cité en page 78.)

Merlaud, A., Theys, N., Fayt, C., Hermans, C., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Pommier, M., Ancellet, G., Burkhart, J., Stohl, A., and Van Roozendael, M. : Airborne DOAS measurements in Arctic : vertical distributions of aerosol extinction coefficient and NO_2 concentration, Atmos. Chem. Phys., 11, 9219–9236, doi:10.5194/acp-11-9219-2011, 2011. (Cité en pages 28, 78 et 81.)

Mie, G. : Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen, Ann. Phys, Leipzig, 330, 377–445, 1908. (Cité en page 18.)

Mitchell, J. M. : Visual range in the polar regions with particular reference to the Alaskan Arctic, J. Atmos. Terr. Phys. Spec., Suppl., 195–211, 1957. (Cité en page 8.)

Molina, L. T. and Molina, M. J. : Production of chlorine oxide (Cl2O2) from the self-reaction of the chlorine oxide (ClO) radical, J. Phys. Chem, 91, 433–436, doi:10.1021/j100286a035, 1987. (Cité en page 3.)

Moritz, R. E., Bitz, C. M., and Steig, E. J. : Dynamics of recent climate change in the Arctic, Science, 297, 1497–1502, doi:10.1126/science.1076522, 2002. (Cité en pages 3 et 4.)

Nédélec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoeur, F., Cayez, G., and Marizy, C. : An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft : technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme, Atmos. Chem. Phys., 3, 1551–1564, doi:10.5194/acp-3-1551-2003, 2003. (Cité en pages 39 et 69.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

O'Dowd, C., C., S., Mulcahy, J., and Gerard Jennings, S. : Wind speed influences on marine aerosol optical depth, Advances in Meteorology, 2010, doi:10.1155/2010/830846, 2010. (Cité en page 26.)

O'Dowd, C. D., Yoon, Y. J., Junkerman, W., Aalto, P., Kulmala, M., Lihavainen, H., and Viisanen, Y. : Airborne measurements of nucleation mode particles I : coastal nucleation and growth rates, Atmos. Chem. Phys., 7, 1491–1501, doi:10.5194/acp-7-1491-2007, 2007. (Cité en page 110.)

Olivier, J. G. J. and Berdowski, J. J. M. : The Climate System, chap. Global Emissions sources and sinks, pp. 33–78, A. A. Balkema Publishers/Swet & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands, 2001. (Cité en page 43.)

Overpeck, J., Hughen, K., Hardy, D., Bradley, R., Case, R., Douglas, M., Finney, B., Gajewski, K., Jacoby, G., Jennings, A., Lamoureux, S., Lasca, A., MacDonald, G., Moore, J., Retelle, M., Smith, S., Wolfe, A., and Zielinski, G. : Arctic environmental change of the last four centuries, Science, 278, 1251–1256, doi:10.1126/science.278.5341.1251, 1997. (Cité en page 2.)

Paris, J.-D., Ciais, P., Nédélec, P., Ramonet, M., Belan, B. D., Arshinov, M. Y., Golitsyn, G. S., Granberg, I., Stohl, A., Cayez, G., Athier, G., Boumard, F., and Cousin, J.-M. : The YAK-AEROSIB transcontinental aircraft campaigns : new insights on the transport of CO_2, CO and O_3 across Siberia, Tellus B, 60, 551–568, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00369.x, 2008. (Cité en page 30.)

Parkinson, C. L., Cavalieri, D. J., Gloersen, P., Zwally, H. J., and Comiso, J. C. : Arctc sea ice extents, areas and trends, 1978-1996, J. Geophys. Res., 104, 20 837–20 856, 1999. (Cité en page 3.)

Petzold, A., Weinzierl, B., Huntrieser, H., Stohl, A., Real, E., Cozic, J., Fiebig, M., Hendricks, J., Lauer, A., Law, K., Roiger, A., Schlager, H., and Weingartner, E. : Perturbation of the European free troposphere aerosol by North American forest fire plumes during the ICARTT-ITOP experiment in summer 2004, Atmos. Chem. Phys., 7, 5105–5127, doi:10.5194/acp-7-5105-2007, 2007. (Cité en pages 99, 112 et 113.)

Petzold, A., Rasp, K., Weinzierl, B., Esselborn, M., Hamburger, T., Dörnbrack, A., Kandler, K., Schütz, L., Knippertz, P., Fiebig, M., and Virkkula, A. : Saharan dust absorption and refractive index from aircraft-based observations during SAMUM 2006, Tellus B, 61, 118–130, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00383.x, 2009. (Cité en page 19.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Polyakov, I. V., Alexseev, G. V., Bekryaev, R. V., Bhatt, U., Colony, R. L., Johnson, M. A., Karklin, V. P., Makshtas, A. P., Walsh, D., and Yulin, A. V. : Observationally based assessment of polar amplification of global warming, Geophys. Res. Let., 29, 1878, doi:10.1029/2001GL011111, 2002. (Cité en page 2.)

Pommier, M., Law, K. S., Clerbaux, C., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Schlager, H., Ancellet, G., Paris, J.-D., Nédélec, P., Diskin, G. S., Podolske, J. R., Holloway, J. S., and Bernath, P. : IASI carbon monoxide validation over the Arctic during POLARCAT spring and summer campaigns, Atmos. Chem. Phys., 10, 10 655–10 678, doi:10.5194/acp-10-10655-2010, 2010. (Cité en page 30.)

Pratt, K. A. and Prather, K. A. : Real-time, single-particle volatility, size, and chemical composition measurements of aged urban aerosols, Environ. Sci. Technol., 43, 8276–8282, doi:10.1021/es902002t, 2009. (Cité en pages 60 et 81.)

Protat, A., Pelon, J., Grand, N., Delville, P., Laborie, P., Vinson, J.-P., Bouniol, D., Bruneau, D., Chepfer, H.and Delanoë, J., Haeffelin, M., Noël, V., and Tinel, C. : Le projet Rali : Combinaison d'un radar et d'un lidar pour l'étude des nuages faiblement précipitants, La météorologie, 47, 23–33, 2004. (Cité en page 28.)

Pruppacher, H. R. and Klett, J. D. : Microphysics of Clouds and Precipitation, second edition, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 1997. (Cité en pages 6 et 25.)

Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Schmale, J., Schneider, J., Sodemann, H., Stohl, A., Ancellet, G., Crumeyrolle, S., and Law, K. S. : Physical and chemical properties of pollution aerosol particles transported from North America to Greenland as measured during the POLARCAT summer campaign, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 11, 11 771–11 808, doi:10.5194/acpd-11-11771-2011, 2011. (Cité en pages 11 et 12.)

Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Matsuki, A., Burkhart, J., Stohl, A., Ancellet, G., and Law, K. S. : Aerosol physical and chemical properties of anthropogenic and Eurasian forest fire plumes transported to the Arctic during the POLARCAT-France spring campaign, Atmos. Chem. Phys. Discuss., in prep. (Cité en pages 11 et 12.)

Quinn, P. K., Miller, T. L., Bates, T. S., Ogren, J. A., Andrews, E., and Shaw, G. E. : A three-year record of simultaneously measured aerosol chemical and optical properties at Barrow, Alaska, J. Geophys. Res., 107, doi:10.1029/2001JD001248, 2002. (Cité en pages 8, 9 et 26.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Quinn, P. K., Shaw, G., Andrews, E., Dutton, E. G., Ruoho-Airola, T., and Gong, S. L. : Arctic Haze : Current trend and knowledge gaps, Tellus B, 59, 99–114, doi:10.1111/j.1600-0889.2006.00238.x, 2007. (Cité en pages 8, 21 et 54.)

Quinn, P. K., Bates, T. S., Baum, E., Doubleday, N., Fiore, A. M., Flanner, M., Fridlind, A., Garrett, T. J., Koch, D., Menon, S., Shindell, D., Stohl, A., and Warren, S. G. : Short-lived pollutants in the Arctic : their climate impact and possible mitigation strategies, Atmos. Chem. Phys., 8, 1723–1735, doi:10.5194/acp-8-1723-2008, 2008. (Cité en pages 7, 9 et 17.)

Raut, J.-C. and Chazette, P. : Vertical profiles of urban aerosol complex refractive index in the frame of ESQUIF airborne measurements, Atmos. Chem. Phys., 8, 901–919, doi:10.5194/8-901-2008, 2008. (Cité en page 110.)

Real, E., Law, K. S., Weinzierl, B., Fiebig, M., Petzold, A., Wild, O., Methven, J., Arnold, S., Stohl, A., Huntrieser, H., Roiger, A., Schlager, H., Stewart, D., Avery, M., Sachse, G., Browell, E., Ferrare, R., and BLake, D. : Processes influencing ozone levels in Alaskan forest fire plumes during long-range transport over the North Atlantic, J. Geophys. Res., 112, doi:10.1029/2006JD007576, 2007. (Cité en page 86.)

Reid, J. S., Hobbs, P. V., Ferek, R. J., Blake, D. R., Martins, J. V., Dunlap, M. R., and Liousse, C. : Physical, chemical, and optical properties of regional hazes dominated by smoke in Brazil, J. Geophys. Res., 103, 32 059–32 080, doi:10.129/98JD00458, 1998. (Cité en page 57.)

Reid, J. S., Koppmann, R., Eck, T. F., and Eleuterio, D. P. : A review of biomass burning emissions part II : intensive physical properties of biomass burning particles, Atmos. Chem. Phys., 5, 799–825, doi:10.5194/acp-5-799-2005, 2005. (Cité en page 57.)

Roiger, A., Schlager, H., Schäfler, A., Huntrieser, H., Scheibe, M., Aufmhoff, H., Cooper, O. R., Sodemann, H., Stohl, A., Burkhart, J. F., Lazzara, M., Schiller, C., Law, K. S., and Arnold, F. : In-situ observation of Asian pollution transported into the Arctic lowermost stratosphere, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 11, 16 265–16 310, doi:10.5194/acpd-11-16265-2011, 2011. (Cité en page 30.)

Rolph, G. D. : Real-time Environmental Applications and Display sYstem (READY) Website (http ://ready.arl.noaa.gov), NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD, 2010. (Cité en page 110.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Rosenfeld, D. : TRMM Observed First Direct Evidence of Smoke from Forest Fires Inhibiting Rainfall, Geophys. Res. Let., 26, 3105–3108, 1999. (Cité en page 7.)

Rosenfeld, D. : Suppression of Rain and Snow by Urban and Industrial Air Pollution, Science, 287, 1793–1796, 2000. (Cité en page 7.)

Schmale, J., Schneider, J., Jurkat, T., Voigt, C., Kalesse, H., Rautenhaus, M., Lichtenstern, M., Schlager, H., Ancellet, G., Arnold, F., Gerding, M., Mattis, I., Wendisch, M., and Borrmann, S. : Aerosol layers from the 2008 eruptions of Mount Okmok and Mount Kasatochi : In situ upper troposphere and lower stratosphere measurements of sulfate and organics over Europe, J. Geophys. Res., 115, doi:10.1029/2009JD013628, 2010. (Cité en page 39.)

Schmale, J., Schneider, J., Ancellet, G., Quennehen, B., Stohl, A., Sodemann, H., Burkhart, J. F., Hamburger, T., Arnold, S. R., Schwarzenboeck, A., and Borrmann, S. a. L. K. S. : Source identification and airborne chemical characterisation of aerosol pollution from long-range transport over Greenland during POLARCAT summer 2008, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 11, 7593–7658, doi:10.5194/acpd-11-7593-2011, 2011. (Cité en pages 78, 92, 93 et 94.)

Schnell, R. C. : Arctic haze and the Arctic Gas and Aerosol Sampling Program (AGASP), Geophys. Res. Let., 11, 361–364, doi:10.1029/GL011i005p00361, 1984. (Cité en page 27.)

Schoeberl, M. R. and Hartmann, D. L. : The dynamics of the stratospheric polar vortex and its relation to springtime ozone depletions, Science, 251, 46–52, doi:10.1126/science.251.4989.46, 1991. (Cité en page 3.)

Schumann, U., Weinzierl, B., Reitebuch, O., Schlager, H., Minikin, A., Forster, C., Baumann, R., Sailer, T., Graf, K., Mannstein, H., Voigt, C., Rahm, S., Simmet, R., Scheibe, M., Lichtenstern, M., Stock, P., Rüba, H., Schäuble, D., Tafferner, A., Rautenhaus, M., Gerz, T., Ziereis, H., Krautstrunk, M., Mallaun, C., Gayet, J.-F., Lieke, K., Kandler, K., Ebert, M., Weinbruch, S., Stohl, A., Gasteiger, J., Groß, S., Freudenthaler, V., Wiegner, M., Ansmann, A., Tesche, M., Olafsson, H., and Sturm, K. : Airborne observations of the Eyjafjalla volcano ash cloud over Europe during air space closure in April and May 2010, Atmos. Chem. Phys., 11, 2245–2279, doi:10.5194/acp-11-2245-2011, 2011. (Cité en page 4.)

Schwarzenboeck, A., Heintzenberg, J., and Mertes, M. : Incorporation of aerosol particles between 25 and 850 nm into cloud element : measurements with a new complementary sampling system, Atmos. Res., 52, 241–260, 2000. (Cité en page 32.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Seibert, P. and Frank, A. : Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode, Atmos. Chem. Phys., 4, 51–63, doi:10.5194/acp-4-51-2004, 2004. (Cité en page 40.)

Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. : Atmospheric chemistry & physics, John Wiley & Sons, New York, 1998. (Cité en pages 15, 16, 17, 18, 20, 21, 23, 24, 25 et 76.)

Sem, G. J. : Design and performance characteristics of three continous-flow condensation particle counters : a summary, Atmos. Environ., 62, 267–294, doi:10.1016/S0169-8095(02)00014-5, 2002. (Cité en page 34.)

Serreze, M. C., Maslanik, J. A., Scambos, T. A., Fetterer, F., Stroeve, J., Knowles, K., Fowler, C., Drobot, S., Barry, R. G., and Haran, T. M. : A record minimum arctic sea ice extent and area in 2002, Geophys. Res. Let., 30, 1110, doi:10.1029/2002GL016406, 2003. (Cité en page 3.)

Serreze, M. C., Holland, M. M., and Stroeve, J. : Perspectives on the Arctic's shrinking sea ice cover, Science, 315, 1533–1536, doi:10.1126/science.1139426, 2007. (Cité en page 3.)

Sharma, S., Brook, J. R., Cachier, H., Chow, J., Gaudenzi, A., and Lu, G. : Light absorption and thermal measurements of black carbon in different regions of Canada, J. Geophys. Res., 107, 4771, doi:10.1029/2002JD002496, 2002. (Cité en pages 9 et 26.)

Shaw, G. E. : The vertical distribution of atmospheric aerosols at Barrow, Alaska, Tellus, 27, 39–50, 1975. (Cité en pages 9 et 27.)

Shindell, D., Faluvegi, G., and Bell, N. : Preindustrial-to-present-day radiative forcing by tropospheric ozone from improved simulations with the GISS chemistry-climate GCM, Atmos. Chem. Phys., 3, 1675–1702, doi:10.5194/acp-3-1675-2003, 2005. (Cité en page 9.)

Shindell, D., Faluvegi, G., Lacis, A., Hansen, J., Ruedy, R., and Aguilar, E. : Role of tropospheric ozone increases in 20^{th}-century climate change, J. Geophys. Res., 111, D08 302, doi:10.1029/2005JD006348, 2006. (Cité en page 9.)

Singh, H. B., Anderson, B. E., Brune, W. H., Cai, C., Cohen, R. C., Crawford, J. H., Cubison, M. J., Czech, E. P., Emmons, L., Fuelberg, H. E., Huey, G., Jacob, D. J., Jimenez, J. L., Kaduwela, A., Kondo, Y., Mao, J., Olson, J. R., Sachse, G. W., Vay, S. A., Weinheimer, A., Wennberg, P. O., and Wisthaler, A. :

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Pollution influence on atmospheric composition and chemistry at high northern latitudes : Boreal and California forest fire emissions, Atmos. Environ., 44, 4553–4564, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.08.026, 2010. (Cité en pages 78 et 94.)

Sirois, A. and Barrie, L. : Arctic lower troposheric aerosol trends and composition at Alert, Canada : 1980-1995, J. Geophys. Res., 104, 11 599–11 618, doi:10.1029/1999JD900077, 1999. (Cité en pages 9 et 26.)

Stephens, G. L., Vane, D. G., Boain, R. J., Mace, G. G., Sassen, K., Wang, Z., Illingworth, A. J., O'Connor, E. J., Rossow, W. B., Durden, S. L., Miller, S. D., Austin, R. T., Benedetti, A., Mitrescu, C., and the CloudSat science team : The CloudSat mission and the A-Train : A new dimension to space-based observations of clouds and precipitation, Bull. Am. Met. Soc., 83, 1771–1790, 2002. (Cité en page 28.)

Stohl, A. : Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere, J. Geophys. Res., 111, 0148–0227, doi:10.1029/2005JD006888, URL `http://dx.doi.org/10.1029/2005JD006888`, 2006. (Cité en page 9.)

Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G. : Validation of the lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data, Atmos. Environ., 32, 4245 – 4264, doi:10.1016/S1352-2310(98)00184-8, 1998. (Cité en page 40.)

Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Spichtinger, N., Huntrieser, H., Heland, J., Schlager, H., Wilhelm, F., Arnold, F., and Cooper, O. : backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements, J. Geophys. Res., 108, doi:10.1029/2002JD002862, 2003. (Cité en page 40.)

Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G. : Technical note : The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, Atmos. Chem. Phys., 5, 2461–2474, doi:10.5194/acp-5-2461-2005, 2005. (Cité en page 40.)

Stohl, A., Berg, T., Burkhart, J. F., Fjæraa, A. M., Forster, C., Herber, A., Hov, O., Lunder, C., McMillan, W. W., Oltmans, S., Shiobara, M., Simpson, D., Solberg, S., Stebel, K., Ström, J., Tørseth, K., Treffeisen, R., Virkkunen, K., and Yttri, K. E. : Arctic smoke – record high air pollution in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe, Atmos. Chem. Phys., 7, 511–534, doi:10.5194/acp-7-511-2007, 2007. (Cité en page 43.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Stroeve, J. C., Serreze, M. C., Fetterer, F., Arbetter, T., Meier, W., Maslanik, J., and Knowles, K. : Tracking the Arctic's shrinking ice cover : Another extreme Sptember minimum in 2004, Geophys. Res. Let., 32, L04 501, doi:10.1029/2004GL021810, 2005. (Cité en page 3.)

Stroeve, J. C., Holland, M. M., Meier, W., Scambos, T. A., and Serreze, M. C. : Arctic sea ice decline : faster than forecast, Geophys. Res. Let., 34, doi:10.1029/2010GL045662, 2007. (Cité en page 3.)

Stroeve, J. C., Serreze, M. C., Drobot, S., Gearheard, S., Holland, M., Maslanik, J., Meier, W., and Scambos, T. : Arctic sea ice extent plummets in 2007, Eos Trans. AGU, 89, doi:10.1029/2008EO020001, 2008. (Cité en page 3.)

Stroeve, J. C., Serreze, M. C., Holland, M. M., Kay, J. E., Malanik, J., and Barrett, A. P. : The Arctic's rapidly shrinking sea ice cover : a research synthesis, Clim. Change, pp. 1–23, doi:10.1007/s10584-011-0101-1, 2011. (Cité en page 3.)

Taalas, P., Damski, J., Kyro, E., Ginzburg, M., and Talamoni, G. : Effect of stratospheric ozone variations on UV radiation and on troposheric ozone at hugh latitudes, J. Geophys. Res., 102, 1533–1539, doi:10.1029/96JD02310, 1997. (Cité en page 3.)

Taylor, K. E. and Penner, J. E. : Response of the climate to atmospheric aerosols and greenhouse gases, Nature, 369, 734–737, doi:10.1038/369734a0, 1994. (Cité en page 5.)

Thompson, D. W. J. and Wallace, J. M. : Regional climate impact of the Northern Hemisphere annular mode and associated climate trends, Science, 293, 85–89, doi:10.1126/science.1058958, 2001. (Cité en page 4.)

Thrane, E. V. and von Zahn, U. : ALOMAR - A new facility for middle atmosphere research at Arctic latitudes, J. Geomag. Geoelectr., 47, 921–928, 1995. (Cité en page 28.)

Tridon, F., Van Baelen, J., and Pointin, Y. : Aliasing in Micro Rain Radar data due to strong vertical winds, Geophys. Res. Let., 38, L02 804, doi:10.1029/2010GL046018, 2011. (Cité en page 28.)

Tunved, P., Hansson, H.-C., Kulmala, M., Aalto, P., Viisanen, Y., Karlsson, H., Kristensson, A., Swietlicki, E., Dal Maso, M., Ström, J., and Komppula, M. : One year boundary layer aerosol size distribution data from five nordic background

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

stations, Atmos. Chem. Phys., 3, 2183–2205, doi:10.5194/acp-3-2183-2003, 2003. (Cité en page 15.)

Tunved, P., Ström, J., and Hansson, H. C. : An investigation of processes controlling the evolution of the boundary layer aerosol size distribution properties at the Swedish background station Aspvreten, Atmos. Chem. Phys., 4, 2581–2592, doi:10.5194/acp-4-2581-2004, 2004. (Cité en page 67.)

Twomey, S. : Pollution and the planetary albedo, Atmos. Environ., 8, 1251–1256, 1974. (Cité en pages 4 et 7.)

Twomey, S. : The Influence of Pollution on the Shortwave Albedo of Clouds, J. Atmos. Sci., 34, 1149–1152, doi:10.1175/1520-0469(1977)034<1149 :TIOPOT>2.0.CO ;2, 1977. (Cité en page 7.)

Uttal, T., Curry, J. A., McPhee, M. G., Perovich, D. K., Moritz, R. E., Maslanik, J. A., Guest, P. S., Stern, H. L., Moore, J. A., Turenne, R., Heiberg, A., Serreze, M. C., Wylie, D. P., Persson, O. G., Paulson, C. A., Halle, C., Morison, J. H., Wheeler, P. A., Makshtas, A., Welch, H., Shupe, M. D., Intrieri, J. M., Stamnes, K., Lindsey, R. W., Pinkel, R., Pegau, W. S., Stanton, T. P., and Greenfeld, T. C. : Surface Heat Budget of the Arctic Ocean, Bull. Am. Met. Soc., 83, 255–275, 2002. (Cité en page 9.)

Venzac, H., Sellegri, K., Laj, P., Villani, P., Bonasoni, P., Marinoni, A., Cristofanelli, P., Calzolari, F., Fuzzi, S., Decesari, S., Facchini, M.-C., Vuillermoz, E., and Verza, G.-P. : High frequency new particle formation in the Himalayas, Proc. Natl. Acad. Sci. USA, 105, 15 666–15 671, doi:10.1073/pnas.0801355105, 2008. (Cité en page 26.)

Venzac, H., Sellegri, K., Villani, P., Picard, D., and Laj, P. : Seasonal variation of aerosol size distributions in the free troposphere and residual layer at the puy de Dôme station, France, Atmos. Chem. Phys., 9, 1465–1478, doi:10.5194/acp-9-1465-2009, 2009. (Cité en pages 26 et 110.)

Vestreng, V., Breivik, K., Adams, M., Wagner, A., Goodwin, J., Rozovskaya, O., and Pacyna, J. M. : Emission data reported to LRTAP Convention and NEC Directive - Initial review for HMs and POPs, EMEP report 2005, Norwegian Meteorological Institute, 2005. (Cité en page 43.)

Villani, P., Picard, D., Michaud, V., Laj, P., and Wiedensohler, A. : Design and Validation of a Volatility Hygroscopic Tandem Differential Mobility Analyzer (VH-TDMA) to Characterize the Relationships Between the Thermal and Hygroscopic

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Properties of Atmospheric Aerosol Particles, Aerosol Science and Technology, 42, 729–741, 2008. (Cité en page 34.)

von Savigny, C., Robert, C. E., Baumgarten, G., Bovensmann, H., and Burrows, J. P. : Comparison of NLC particle sizes derives from SCIAMACHY/Envisat observations with ground-based LIDAR measurements at ALOMAR (69°N), Atmos. Meas. Tech., 2, 523–531, doi:10.5194/amt-2-523-2009, 2009. (Cité en page 28.)

Wang, X. and Key, J. R. : Arctic surface, cloud and radiation properties on the AVHRR polar pathfinder dataset. Part II : Recent trends, J. Clim., 18, 2575–2593, 2005. (Cité en page 4.)

Wehner, B. and Wiedensohler, A. : Long term measurements of submicrometer urban aerosols : statistical analysis for correlations with meteorological conditions and trace gases, Atmos. Chem. Phys., 3, 867–879, doi:10.5194/acp-3-867-2003, 2003. (Cité en pages 56, 67 et 78.)

Whitby, K. T. : The physical characteristics of sulphur aerosols, Atmos. Environ., 12, 135–159, 1978. (Cité en pages 14 et 67.)

White, P. W. : IFS Documentation, ECMWF, Reading, UK, 2002. (Cité en page 40.)

Willeke, K. and Baron, P. A. : Aerosol measurement : principles, techniques, and applications, John Wiley & Sons, 2001. (Cité en page 35.)

Winker, D. M., Pelon, J., and McCormick, M. P. : The CALIPSO mission : Spaceborne lidar for observation of aerosols and clouds, status and performance, Proc. SPIE, 4893, 1–11, 2003. (Cité en page 28.)

Xueref-Remy, I., Messager, C., Filippi, D., Pastel, M., Nedelec, P., Ramonet, M., Paris, J.-D., and Ciais, P. : Variability and budget of CO_2 in Europe : analysis of the CATEER airborne campaigns - Part 1 : Observed variability, Atmos. Chem. Phys., 11, 5655–5672, doi:10.5194/acp-11-5655-2011, 2011. (Cité en page 110.)

Yamanouchi, T., Treffeisen, R., Herber, A., Shiobara, M., Yamagata, S., Hara, K., Sato, K., Yabuki, M., Tomikawa, Y., Rinke, A., Neuber, R., Schumachter, R., Kriews, M., Ström, J., Schrems, O., and Gernandt, H. : Arctic study of tropospheric aerosol and radiation (ASTAR) 2000 : Arctic haze case study, Tellus B, 57, 141–152, 2005. (Cité en pages 10 et 27.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Zhang, K. M., Wexler, A. S., Zhu, Y. F., Hinds, W. C., and Sioutas, C. : Evolution of particle number distribution near roadways. Part II : the Road-to-Ambient process, Atmos. Environ., 38, 6655–6665, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.06.044, 2004. (Cité en pages 56, 67 et 78.)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Annexe A

Liste des publications, communications, et principaux travaux accomplis

A.1 Publications dans des journaux à comité de lecture

- **B. Quennehen**, A. Schwarzenboeck, A. Matsuki, J.F. Burkhart, A. Stohl, G. Ancellet, and K.S. Law : Anthropogenic and forest fire pollution aerosol transported to the Arctic : observations from the POLARCAT-France spring campaign, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12, 4541-4588, doi:10.5194/acpd-12-4541-2012, 2012.
- **B. Quennehen**, A. Schwarzenboeck, J. Schmale, J. Schneider, H. Sodemann, A. Stohl, G. Ancellet, S. Crumeyrolle, and K.S. Law : Physical and chemical properties of pollution aerosol particles transported from North America to Greenland as measured during the POLARCAT summer campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10947-10963, doi:10.5194/acp-11-10947-2011, 2011.
- M. Hervo, **B. Quennehen**, N.I. Kristiensen, M. Gouhier, A. Stohl, A. Colomb, P. Labazuy, A. Schwarzenboeck, P. Fréville, J.M Pichon, D. Picard and K. Sellegri : Physical and optical properties of 2010 Eyjafjalla volcanic eruption aerosol : Ground based, LIDAR and airborne measurements at the Puy de Dôme station (1465 m), France, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 24631-24670, doi:10.5164/acpd-11-24631-2011, 2011.
- A. Merlaud, N. Theys, C. Fayt, C. Hermans, **B. Quennehen**, A Schwarzenboeck, M. Pommier, G. Ancellet, J. Burkhart, A. Stohl and M. Van Roozendael : Airborne DOAS measurements in Arctic : vertical distributions of aerosol extinction coefficient and NO_2 concentration, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 9219-9236, doi:10.5194/acp-11-9219-2011, 2011.
- J. Schmale, J. Schneider, G. Ancellet, **B. Quennehen**, A. Stohl, H. Sodemann, J. Burkhart, T. Hamburger, S. Arnold, A. Schwarzenboeck, S. Borrmann,

K.S. Law : Source identification and airborne chemical characterisation of aerosol pollution from long-range transport over Greenland during POLARCAT summer 2008, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 10097-10123, doi:10.5194/acp-11-10097-2011, 2011.

- A. Matsuki, **B. Quennehen**, A. Schwarzenboeck, S. Crumeyrolle, H. Venzac, P. Laj and L. Gomes : Temporal and Vertical variations of aerosol physical and chemical properties over West Africa : AMMA aircraft campaign in summer 2006, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 8437-8451, doi:10.5194/acp-10-8437-2010, 2010.
- R.A. de Villiers, G. Ancellet, J. Pelon, **B. Quennehen**, A. Schwarzenboeck, J.F. Gayet and K.S. Law : Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 5011-5030, doi:10.5194/acp-10-5011-2010, 2010.

A.2 Participation à des conférences

- **B. Quennehen**, A., Schwarzenboeck, A., Matsuki, J., Schmale, H., Sodemann, J., Schneider, G., Ancellet, A., Stohl, J., Pelon and K. S. Law, 2011 : Pollution transported to the Arctic during the POLARCAT-France spring and summer campaigns : source regions and aerosol properties. *European Geosciences Union (EGU) General Assembly, 2011, Vienna, Austria, (April 3-8).* Poster presentation.
  Association for Polar Early Career Scientist (APECS), Virtual poster session, 28 April 2011. Poster presentation.
- **B. Quennehen**, A. Schwarzenboeck, O. Jourdan, A. Stohl, J. Schmale, S. Crumeyrolle, K.S. Law : Arctic aerosol physical and optical characterisation during the POLARCAT summer campaign in Greenland, Poster presentation, International Polar Year Science Conference, Olso, Norway, June 2010.

A.3 Publications en préparation

- A. Matsuki, A. Schwarzenboeck, **B. Quennehen**, K. Deboudt, G. Febvre, O. Jourdan, C. Gourbeyre and J.-F. Gayet : Single particle analysis of aerosols and cloud residues in the Arctic troposphere : POLARCAT spring aircraft campaign, *in prep.*, 2012.
- S. Crumeyrolle, A. Schwarzenboeck, J.C. Roger, K. Sellegri, J.F. Burkhart, A. Stohl, L. Gomes, **B. Quennehen**, G. Roberts, R. Weigel, P. Villani, J.M. Pichon, T. Bourrianne, P. Laj : Overview of aerosol properties associated with air

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

masses sampled by the ATR-42 during the EUCAARI campaign (2008), *in prep.*, 2012.

A.4 Principaux travaux accomplis

- inversion des mesures aérosols à l'aide d'un code de Mie pour validation à partir des mesures de diffusion de la lumière du néphélomètre.
- Mise en place d'un algorithme de correction des données PCASP à l'aide des mesures des coefficients de diffusion (néphélomètre) et d'absorption (PSAP) de la lumière.
- Contrôle de la qualité des données par analyse statistique.
- Ecriture d'un modèle simple de coagulation brownienne à partir des équations du livre de Jacobson (2005).
- participation à des études sur les campagnes AMMA (été 2006), EUCAARI (mai 2008) et les panaches de cendres volcaniques issus de l'éruption de l'Eyfjalla (printemps 2011).
- Participation à l'acquisition de mesures aéroportées du LaMP durant le projet MEGAPOLI (Juin 2009).
- Co-encadrement de stagiaires de M1 et M2 sur l'analyse des mesures avion EUCAARI et MEGAPOLI.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Annexe B

Étude des mesures AMS obtenues durant la campagne POLARCAT été par Schmale et al.(2011)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Atmos. Chem. Phys., 11, 10097–10123, 2011
www.atmos-chem-phys.net/11/10097/2011/
doi:10.5194/acp-11-10097-2011
© Author(s) 2011. CC Attribution 3.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics

Source identification and airborne chemical characterisation of aerosol pollution from long-range transport over Greenland during POLARCAT summer campaign 2008

J. Schmale[1], J. Schneider[1], G. Ancellet[2], B. Quennehen[3], A. Stohl[4], H. Sodemann[4,5], J. F. Burkhart[4,6], T. Hamburger[7], S. R. Arnold[8], A. Schwarzenboeck[3], S. Borrmann[1,9], and K. S. Law[2]

[1]Max Planck Institute for Chemistry, Mainz, Germany
[2]UPMC Univ. Paris 06, Univ. Versailles St-Quentin, CNRS/INSU, LATMOS-IPSL, Paris, France
[3]Laboratoire de Météorologie Physique, Université Blaise Pascal, Aubière, France
[4]Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, Norway
[5]ETH Zürich, Institut für Atmosphäre und Klima, Zürich, Switzerland
[6]School of Engineering, University of California, Merced (UCM), Merced, CA, USA
[7]Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt, Institut für Physik der Atmosphäre, Oberpfaffenhofen, Germany
[8]Institute for Climate and Atmospheric Science, School of Earth and Environment, University of Leeds, UK
[9]Institute for Atmospheric Physics, Johannes Gutenberg University, Mainz, Germany

Received: 7 February 2011 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 4 March 2011
Revised: 19 August 2011 – Accepted: 27 September 2011 – Published: 6 October 2011

Abstract. We deployed an aerosol mass spectrometer during the POLARCAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) summer campaign in Greenland in June/July 2008 on the research aircraft ATR-42. Online size resolved chemical composition data of submicron aerosol were collected up to 7.6 km altitude in the region 60 to 71° N and 40 to 60° W. Biomass burning (BB) and fossil fuel combustion (FF) plumes originating from North America, Asia, Siberia and Europe were sampled. Transport pathways of detected plumes included advection below 700 hPa, air mass uplifting in warm conveyor belts, and high altitude transport in the upper troposphere. By means of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART, trace gas analysis of O_3 and CO, particle size distributions and aerosol chemical composition 48 pollution events were identified and classified into five chemically distinct categories. Aerosol from North American BB consisted of 22 % particulate sulphate, while with increasing anthropogenic and Asian influence aerosol in Asian FF dominated plumes was composed of up to 37 % sulphate category mean value. Overall, it was found that the organic matter fraction was larger (85 %) in pollution plumes than for background conditions (71 %). Despite different source regions and emission types the particle oxygen to carbon ratio of all plume classes was around 1 indicating low-volatility highly oxygenated aerosol. The volume size distribution of out-of-plume aerosol showed markedly smaller modes than all other distributions with two Aitken mode diameters of 24 and 43 nm and a geometric standard deviation σ_g of 1.12 and 1.22, respectively, while another very broad mode was found at 490 nm ($\sigma_g = 2.35$). Nearly pure BB particles from North America exhibited an Aitken mode at 66 nm ($\sigma_g = 1.46$) and an accumulation mode diameter of 392 nm ($\sigma_g = 1.76$). An aerosol lifetime, including all processes from emission to detection, in the range between 7 and 11 days was derived for North American emissions.

Correspondence to: J. Schmale
(julia.schmale@gmail.com)

1 Introduction

After the discovery of haze layers in late winter and early spring in the lower Arctic atmosphere by pilots overflying Canada and Alaska in the 1950s (Greenaway, 1950; Mitchell, 1956) numerous campaigns and continuous measurements of Arctic aerosol have been conducted (Rahn et al., 1977; Schnell, 1984; Shaw, 1995; Law and Stohl, 2007; Quinn et al., 2007, and references therein). However, Arctic aerosol

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

research has focused predominantly on winter/spring (Rahn and McCaffrey, 1980; Shaw, 1995; Stohl et al., 2006) while fewer measurements have been performed during summer when concentrations are generally lower (Law and Stohl, 2007). Most of the available in-situ measured aerosol data (optical, microphysical, and chemical) have been collected at the surface, whereas only very few summertime airborne studies of aerosol chemical composition have been carried out so far (Brock et al., 1989, 1990; Talbot et al., 1992; Franke et al., 1997; Dreiling and Friederich, 1997). In summer 2008, the NASA ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites, Jacob et al., 2010) and POLARCAT-France (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) campaigns in June/July 2008 deployed aerosol mass spectrometers (AMS) for non-refractory submicron aerosol detection together with other aerosol and trace gas related instrumentation.

In contrast to Arctic air pollution in winter and early spring, when weather conditions are more stable and particulate matter can remain suspended in the Arctic troposphere for up to several weeks, summertime pollution is subject to more varied weather conditions (Shaw, 1995; Stohl, 2006). Wet deposition partly prevents aerosol from reaching high northern latitudes, especially with regard to Asian air masses entering the Arctic with the Pacific storm track (Park et al., 2005; Dickerson et al., 2007; Matsui et al., 2011). Nevertheless, there are several source regions, North America (NA), Europe, Siberia, and East Asia, from where pollution plumes are transported towards the Arctic (e.g. Rahn, 1977; Koch and Hansen, 2005; Stohl, 2006; Stohl et al., 2006; McConnell et al., 2007; Shindell et al., 2008). The main emission sources are biomass burning (BB) and fossil fuel combustion (FF) including smelter emissions, e.g. from Norilsk or the Kola peninsula. Anthropogenic activity can be assumed to be a relatively predictable source of emissions as changes are driven primarily by industrial and economic development and environmental legislation (Lavoue et al., 2000; McConnell et al., 2007). BB emissions, however, vary substantially from year to year. Boreal forest fires are ignited both naturally by lightning and by humans (Flannigan et al., 2009). However, while the number of human induced fires is greater, large fires are more often caused by lightning (Stocks et al., 2002). During summer 2008, extensive boreal forest fires occurred in eastern Siberia in the Yakutsk region, and there was elevated fire activity in Saskatchewan, Canada, (Jacob et al., 2010; Paris et al., 2009; Singh et al., 2010), both influencing the atmospheric composition in the Arctic.

Due to the sulphur content in fossil fuels, FF is associated with the formation of particulate sulphate from SO_2 emissions, while biomass burning emissions have a low sulphur content (Andreae and Merlet, 2001). Both sources emit gas-phase and particulate organic compounds which contribute to carbonaceous particulate matter in the pollution plumes either directly or by gases partitioning into the particle phase (Donahue et al., 2009). Thus, when characterising the source type of a pollution plume, rather low particulate sulphate but high organic carbon fractions are expected for BB plumes (Reid et al., 2005; Singh et al., 2010), whereas for FF the sulphate contribution is expected to be elevated (Heald et al., 2008; Singh et al., 2010). Because of the long transport times of up to more than two weeks the aerosol arriving over Greenland is expected to be highly oxygenated due to chemical ageing (Jimenez et al., 2009) as confirmed by surface measurements of $PM_{2.5}$ chemical composition at Summit, central Greenland (von Schneidemesser et al. 2009; Hagler et al. 2007). Thus, properties such as optical behaviour, hydrophobicity/hygroscopicity and size distributions are expected to be different from near source aerosol. Understanding of the chemical composition and state of oxidation of particulate matter is important for modelling its impacts on the Arctic system, one of the most sensitive regions on Earth in terms of climate change (IPCC, 2007). Aerosol directly influences atmospheric radiative transfer via its optical properties and indirectly via aerosol cloud interactions. Depending on the composition particulate matter preferentially absorbs (black carbon) or scatters (sulphate) radiation. Deposited aerosol can change the surface albedo of snow or ice (Quinn et al., 2008), leading to enhanced surface warming and melting, and can contribute to the acidification of the Arctic (AMAP, 2006).

In summer, pollution plumes reach the Arctic troposphere by a number of different transport patterns depending on their source region: low-level transport below 800 hPa, low-level transport with subsequent ascent, and higher altitude transport above 600 hPa (Stohl, 2006). Air masses over central Greenland especially follow the second and third pathways (Hirdman et al., 2010), due to the elevation of the ice sheet ($>$3.2 km). However, it must be taken into consideration that low-level transport to the Arctic is nearly absent during summer and that the Arctic front retreats far North during this time of year so that the sampled air masses were not always of true Arctic character. Air mass uplift, partly with strong ascent rates, takes place in the warm conveyor belt (WCB) of synoptic low pressure systems (Browning et al., 1982; Cooper et al., 2002). In the region of the North Atlantic and Pacific storm tracks this mechanism can enhance long-range export of polluted air masses from the industrialised areas of eastern US and East Asia (Stohl, 2001; Dickerson et al., 2007). Observational evidence suggests that transport in WCBs partly but not completely removes aerosol by wet deposition (Park et al., 2005).

In this paper we present the chemical composition and origin of submicron aerosol in the free troposphere over Greenland measured by an aircraft-based Aerodyne aerosol mass spectrometer (AMS) during the POLARCAT-France experiment in June/July 2008. Air masses were intercepted while entering or leaving the Arctic. The main objective of the AMS deployment was the study of individual polluted

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

long-range transport air masses, the identification of emission source regions and their associated aerosol chemical characteristics, as well as particle lifetimes and size distributions.

2 Background of the POLARCAT campaign and in-situ instrumentation

The POLARCAT-France summer campaign was carried out from 30 June to 14 July, 2008, as part of the International Polar Year initiatives. The Safire (Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement) research aircraft ATR-42 was based in Kangerlussaq (67.0° N, 50.7° W), Greenland, from where all scientific flights were conducted between 60 to 71° N and 40 to 60° W. Submicron aerosol chemical composition measurements were performed with a unit mass resolution Aerodyne aerosol mass spectrometer (AMS) which operated successfully during eight flights. Further instruments aboard the ATR-42 are listed in Table 1. The flight tracks are shown in Fig. 1. The maximum altitude ceiling was 7.6 km, the speed 100 m s^{-1} and the maximum flight duration three hours. Data with temporal resolution of 1 s thus represent a horizontal resolution of 100 m and 2 min average data 12 km. The vertical resolution during ascents and descents is approximately 5 m and 600 m, respectively. The main purpose of the AMS deployment within the scope of the POLARCAT-France study was the identification and chemical characterisation of particulate matter in long-range transport pollution plumes originating from different source regions and emission sources.

2.1 Aerosol mass spectrometer

The chemical composition, mass concentration and size distribution of submicron aerosol was determined by a Compact Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer (C-ToF-AMS, hereafter AMS) (Drewnick et al., 2005; Canagaratna et al., 2007). In short, aerosol is sampled through a critical orifice placed in front of an aerodynamic lens which focuses the particles into a narrow beam. The particle beam is cut and blocked periodically by a chopper before it enters a time-of-flight region in a vacuum chamber where particles are concentrated and accelerated, which allows for particle sizing in terms of vacuum aerodynamic diameter (d_{va}, DeCarlo et al., 2004). Subsequently, the particulate matter is flash-vaporised by a 600 °C heater and the vapour is ionized by electron impact (70 eV). The ions are extracted into a time-of-flight mass spectrometer. By subtracting the instrument's background signal, measured when the chopper is blocking the particle beam, from the aerosol signal and by means of a fragmentation table (Allan et al., 2004b) the obtained mass spectra can be converted into particulate mass concentrations of the following chemical species: ammonium, nitrate, sulphate, organics, and chloride. Here, we focus on mass concentrations of sulphate and organics as the other species were usually below the detection limit. The AMS was operated in the so-called general alternation mode recording mass spectra for five seconds and subsequently particle time of flight equally for five seconds. Three repetitions of this recording were averaged to one data point representing 30 s of measurements. For final data analysis four points were averaged to two minutes time resolution data. The instrument's ionization efficiency was calibrated six times and the particle time of flight twice during the campaign.

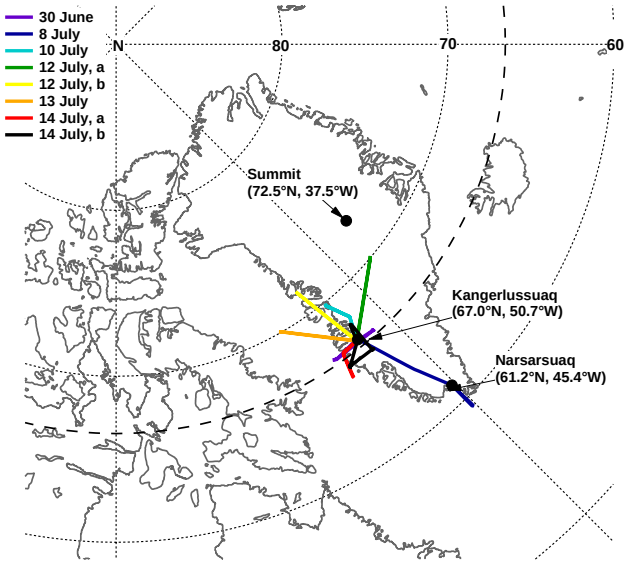


Fig. 1. POLARCAT-France summer experiment 2008 flight tracks involving AMS measurements covering altitudes from sea level to 7.6 km. The research aircraft, ATR-42, was based in Kangerlussuaq, Greenland.

2.1.1 Inlet system

Due to changes in ambient pressure during aircraft measurements a pressure controlled inlet system (PCI) was employed (Bahreini et al., 2008). The PCI is designed to keep the pressure in front of the AMS inlet constant to guarantee stable inlet transmission efficiency and stable conditions for particle sizing. The PCI design for the ATR-42 aircraft has been described and characterised in Schmale et al. (2010). The transmission efficiency is 100 % for particles in the range between 200 and 400 nm d_{va}, while it increases steadily from 20 to 100 % between 80 and 200 nm and drops to 50 % near 450 nm from where it decreases to 20 % at 1000 nm. The overall transmission efficiency over the complete transmission range of 80 and 1000 nm is 54 %. The vacuum aerodynamic diameter is denoted by d_{va} which is equal to the product of the mobility diameter (d_{mob}) with the "Jayne shape factor" and the particle density divided by unit density (DeCarlo, 2004).

Table 1. Instrumentation aboard the ATR-42 during the POLARCAT-France summer campaign 2008.

Instrument	Reference
Compact time-of-flight aerosol mass spectrometer (C-ToF-AMS)*	Drewnick et al. (2005), Canagaratna et al. (2007), Schmale et al. (2010)
Scanning mobility particle sizer (SMPS)*	Villani et al. (2007), Quennehen et al. (2011)
Optical particle counter (OPC), GRIMM, model 1.108	Quennenhen et al. (2011)
Nephelometer, TSI, 3563	Voigt et al. (2010)
2D-Cloud probe	Febvre et al. (2009)
Passive cavity aerosol spectrometer probe (PCASP), DMT, 100-X	Quennenhen et al. (2011)
Particle soot absorption photometer (PSAP)	Bond et al. (1999)
Leandre New Generation Aerosol lidar*	de Villiers et al. (2010)
Forward scattering spectrometer probe, FSSP 100	Gayet et al. (2006)
IR absorption carbon monoxide detection instrument*	Nedelec et al. (2003)
Ozone lidar	Ancellet and Ravetta (2003)
UV absorption ozone detection instrument*	Ancellet et al. (2009)
Lyman-Alpha hygrometer*	Buck (1976)

* Instruments marked with an asterisk contributed to the analysis for this paper.

Table 2. Flight dates and altitude range covered by AMS measurements. Representation of total organic mass spectrum by the selection of organic *m/z* (% mass), Pearson correlation coefficient (R) of the linear regression, and average 2 min 3 sigma limit of detection (LOD) for each flight.

					2 min LOD (µg m^{-3})			
2008 Flight Date	covered altitude (km)	% mass	R	Number of data points	Particulate sulphate	Particulate organics	Particulate nitrate	Particulate ammonium
30 June	0–5.5	38	0.82	32	0.08	0.80	0.03	0.35
8 July	0–7.6	49	0.72	165	0.06	0.22	0.02	0.27
10 July	0–7.3	47	0.80	107	0.03	0.18	0.01	0.18
12 July, a	0–6.7	52	0.62	163	0.03	0.21	0.01	0.20
12 July, b	0–6.7	60	0.75	145	0.04	0.23	0.02	0.25
13 July	0–7.3	52	0.73	121	0.10	0.53	0.04	0.41
14 July, a	0–4.6	49	0.68	145	0.08	0.25	0.02	0.18
14 July, b	0–7.3	43	0.74	124	0.05	0.42	0.03	0.35

Together with the scanning mobility particle sizer (SMPS) and optical particle counter (OPC), see Table 1, the AMS sampled from the community aerosol inlet (CAI) through a 1/4″ outer diameter stainless steel tube of approximately 2 m length. CAI is an isokinetic and isoaxial inlet identical to the University of Hawaii NASA DC-8 aircraft inlet. The 50 % cut-off is at 4.1 µm aerodynamic diameter, thus not impairing AMS measurements (McNaughton et al., 2007).

2.1.2 Data preparation and error estimation

Due to very low mass concentrations (average of 0.54 µg m^{-3}) during the POLARCAT-summer experiment many of the mass to charge ratios (*m/z*) contributing to the organic spectrum were close to or even below zero. This adds noise to the organic signal and increases the limit of detection (LOD). The LOD depends on the instrument's background signal (I_b) and is calculated from three times the standard deviation of I_b multiplied by the sqrt(2) to account for the noise in the background and measurement signal which are subtracted from each other for the determination of the aerosol mass concentration. Therefore, only a selection of *m/z*, i.e. their contributions to the organic mass spectrum, was chosen to represent the total organic mass similar to the jump mass mode (JMS) used for quadrupole AMS data analysis as described by Crosier et al. (2007) and as suggested by Drewnick et al. (2009). The considered mass to charge ratios were derived from an organic mass spectrum obtained during sampling a pollution plume, thus accounting for mass to charge ratios present in the background and pollution events. The final selection criterion was a combination of three factors:

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

1. an increased number of points above LOD compared to the total organic mass signal,
2. a maximum ratio of the correlation coefficient (Pearson's R), from the linear regression of the organic selection versus the total organic spectrum, and the LOD, and
3. the highest representation of mass of the total organic mass after fulfilment of points 1 and 2.

This method resulted in the selection of five *m/z* (15, 29, 43, 44, and 59) corresponding to the most abundant ions observed that exhibited a clear signature in all flights. Table 2 shows the correlation coefficients, number of data points included, and fraction of mass represented for each flight. Organic aerosol data discussed in this paper is based on the representative mass to charge ratios and has been rescaled using the linear regression of the organic selection versus the total organic spectrum.

To provide quantitative data at standard temperature and pressure (STP) the aerosol mass concentration after standard AMS data analysis had to be converted when using a pressure controlled inlet (PCI). The formula depends on the volume flow into the instrument, the flow parameters of the PCI and the pressure in the PCI (Schmale et al., 2010).

The total error related to each data point is comprised of two types of uncertainties: (1) a statistical error can be attributed to each measurement point based on ion counting statistics (Allan et al., 2003) which is near 30 % for sulphate data points greater than the three sigma LOD and 41 % for organics for 30 s time resolution. For data points greater than the one sigma LOD the errors are around 40 % and 63 %, respectively. These large statistical errors become plausible when considering that the actual detected ion signal from ambient aerosol is only about 100 Hz higher than the instrument background signal. (2) The systematic error due to the inlet transmission efficiency of the PCI is close to 30 % (Schmale et al., 2010). A second systematic uncertainty is caused by the collection efficiency (CE) as described by Huffman et al. (2005). CE accounts for losses within the standard AMS inlet and lens system, the non-focusing of particularly shaped particles, and the bounce-off from the heater which occurs for certain types of particles. This uncertainty cannot be calculated on a point by point basis but was estimated for the entire campaign. For this study, CE is assumed to be 0.5 due to the lack of comparable aerosol chemical composition measurements. It has been shown in previous studies that a factor of 0.5 represents well the collection efficiency of ambient aerosol (e.g. Allan et al., 2004a; Drewnick et al., 2005; Hings et al., 2007). While very acidic marine, liquid phase, and liquid coated aerosol tends to have a CE factor of one (Quinn et al., 2006; Matthew et al., 2008) we believe that POLARCAT aerosol has different characteristics since on average more than 70 % of the mass is composed of aged organic material and water would partially evaporate in the inlet tubing due to the temperature differences between ambient air and aircraft interior. This temperature difference was 48 K on average, while the maximum difference was 75 K. Combining the CE and the transmission efficiency of the PCI results in an overall collection efficiency CE_{PCI} of $0.54 \cdot 0.5 = 0.27 \pm 0.17$.

The method for calculating the LOD is based on a publication by Drewnick et al. (2009), and has been described in Schmale et al. (2010) for the POLARCAT data. In brief, the applied algorithm allows for calculation of the standard deviation of a signal that is a combination of short-scale noise and long-term trend (Reitz, 2011). This is especially useful for aircraft measurement data when time for establishing the instrument's vacuum is limited. Background concentrations become smaller during operation because the vacuum pressure decreases over time. For POLARCAT it was observed that especially the organic *m/z* decreased exponentially during the scientific flights resulting in long-term trends in the AMS background signal. The LOD was calculated for intervals of one hour during each measurement for two minute time resolution data. The averaged LOD for each flight is shown in Table 2 for the species sulphate, organics, nitrate, and ammonium. The signals of nitrate and ammonium were generally below the detection limit of 0.02 and 0.27 $\mu g\,m^{-3}$, respectively, for the POLARCAT campaign, thus no data are shown in this paper.

2.2 Further instruments aboard ATR-42

The ATR-42 ozone instrument (Ancellet et al., 2009) is based on UV absorption with two cells and has a precision of $2\,nmol\,mol^{-1}$ at a time resolution of four seconds. The CO analyser (Nedelec et al., 2003), based on an IR absorption technique, has a precision of $5\,nmol\,mol^{-1}$ with a lower detection limit of $10\,nmol\,mol^{-1}$.

The aerosol size distribution for particles smaller than 500 nm mobility diameter was measured by a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) consisting of a differential mobility analyser (DMA) as described by Villani et al. (2007) and a CPC (TSI model 3010) for particle detection. The SMPS measured continuously at a time resolution of 130 s (Quennehen et al., 2011).

A Lyman-Alpha hygrometer (Buck, 1976) was used to provide fast response water vapour measurements. A slower response General Eastern 1011B hygrometer designed for airborne applications was mounted in close proximity and used to normalize the Lyman-Alpha signal.

Basic meteorological (pressure and temperature) and aircraft position data are provided by ATR-42 permanently integrated standard instruments.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

3 Air mass transport modelling

3.1 FLEXPART Lagrangian particle dispersion model

The source-receptor analysis for long-range transport of particle pollution plumes was conducted by using the FLEXPART Lagrangian model (Stohl et al., 2005). The model calculates the dispersion of hypothetical air parcels based on mean winds interpolated from meteorological analysis fields together with random motions representing turbulence and convection. Results discussed here are from runs driven with ECMWF (European Centre for Medium-Range Weather Forecast) analysis data with a horizontal resolution of $0.5° \times 0.5°$ and 91 vertical model levels at three hour time steps. In addition, FLEXPART was run with GFS (Global Forecast System of NOAA/NCEP) data with a horizontal resolution of $0.5° \times 0.5°$ and 26 pressure levels in the vertical. These GFS calculations were used to identify possibly problematic cases where ECMWF and GFS results did not agree. All plumes discussed in this paper are represented in the results by both types of input data. The data are available at http://zardoz.nilu.no/~andreas/POLARCAT_FRANCE/.

Backward simulations as described in Stohl et al. (2003) were run to determine potential pathways and source contributions of the observed pollution plumes. 60 000 virtual particles were released at each time step when the aircraft position changed more than 0.30° horizontally or 150 m vertically. The virtual particles carrying tracers with passive and aerosol-like characteristics were followed for 20 days backward in time with the aerosol-like tracer species additionally being subject to dry and wet deposition. This allows for determination of emission sensitivities and source contributions, both calculated at 0.5° horizontal resolution, based on available emission fluxes (Stohl et al., 2003). The emission sensitivity does not consider any specific emission source or a specific tracer. Only later, as part of the post-processing, the emission sensitivity is folded with specific emission fields such as for sulphur, BC or CO. Thus, the difference between the various aerosol-like tracers is based solely on the emission source distribution.

For anthropogenic emissions, the EDGAR emissions inventory version 3.2FT for the year 2000 (Olivier and Berdowski, 2001) was used outside of North America and Europe, while the inventory of Frost et al. (2006) for North America and the EMEP inventory for 2005 for Europe were applied. For black carbon emissions, the inventory of Bond et al. (2004) was used. Emissions from BB were modelled as described by Stohl et al. (2007) using fire locations detected by the moderate-resolution imaging spectrometer (MODIS) on the Aqua and Terra satellites and a land-cover vegetation classification. Smoke was injected within the lowest 100 m above the surface; it quickly mixed vertically to fill the planetary boundary layer.

Domain-filling forward simulations were used for the determination of the vertical extent of the polluted air masses. Passive CO tracers and aerosol-like BC tracers were released at the surface, using the same emission information as for the backward simulations. For both, forward and backward calculations, the concentrations of these two tracers bracket the loading of actual aerosol particles. The passive tracer does not suffer any wash-out at all, while for aerosol-like tracers in-cloud and below-cloud scavenging is applied assuming scavenging properties similar to sulphate. These properties are also applied immediately after emission when real BC still would have hydrophobic properties. Therefore, wet deposition is generally overestimated. The passive tracer concentration indicates a possible maximum aerosol loading while the hygroscopic aerosol-like tracer represents the lower limit. The ratio of aerosol-like and passive tracer indicates the potential wash-out of aerosol particles. Additionally, a CO passive fire tracer was calculated for the purpose of distinguishing between CO contributions from biomass burning and anthropogenic activities.

3.2 Trajectory models

Two trajectory models, the OFFLINE trajectory model (Methven, 1997; Methven et al., 2003) and the Lagrangian Analysis Tool, LAGRANTO, (Wernli and Davies, 1997), were used for detailed plume analysis. Input data was retrieved from ECMWF operational analyses and interpolated to Lagrangian particle position to calculate meteorological parameters, such as temperature, pressure, relative humidity, cloud cover, and potential vorticity along 10-day backward trajectories. Both models initialised the back trajectories every one minute and advected them backwards with a 30-min time step. Trajectory start point was the aircraft position itself for the OFFLINE model, and a box of 1 km diameter and 200 m height centred at the aircraft position from where 100 trajectories were randomly released for LAGRANTO.

4 Characterisation of individual pollution plumes

The campaign was divided into two phases according to the prevailing meteorological conditions, and hence source regions of air masses. Phase 1 (30 June to 10 July) was characterised by air mass transport from North America with advection of BB plumes from fires in Saskatchewan, Canada, and FF pollution from the Great Lakes area, Ohio Valley (steel industry), and the East Coast, USA. During phase 2 from 12 to 14 July, air masses were advected across the North Pole (Sodemann et al., 2010), carrying pollution from BB in Siberia and FF in East Asia. Some contributions of FF from Europe were also detected within the second period. During 8 scientific flights 48 pollution episodes (denoted as “plumes”, see Table 3) were identified using the criteria stated below.

Table 3. List of all 48 identified pollution plumes. The highlighted plumes were used for the aerosol lifetime calculation (see Fig. 14).

Date	Time	Class	Sub-class	mean aerosol concentration
2008	UTC			($\mu g\ m^{-3}$)
30 June	14:14–14:24	BB/FF no Asia	EU FF, Can BB	1.61 ± 0.83
	15:08–15:12	BB/FF no Asia	NA, EU FF, Can BB	1.61 ± 1.00
	16:12–16:18	BB/FF no Asia	NA, EU FF, Can BB	1.62 ± 1.22
8 July	13:14–13:32	"pure" BB (Plume I)	Can BB, Sib BB	0.82 ± 0.35
	13:34–13:38	"pure" BB	Can BB, Sib BB	0.47 ± 0.32
	13:46–13:56	"pure" BB	Can BB, Sib BB	0.63 ± 0.42
	13:56–14:02	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.51 ± 0.20
	14:18–14:24	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.53 ± 0.27
	14:42–14:52	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.42 ± 0.20
	14:52–15:02	**NA/EU, FF/little BB (Plume II)**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.62 \pm 0.35}$
	15:02–15:08	**NA/EU, FF/little BB (outlier)**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.35 \pm 0.18}$
	15:24–15:32	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.40 ± 0.48
	15:40–15:50	**NA/EU, FF/little BB (Plume III)**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.63 \pm 0.32}$
10 July	14:48–14:58	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.48 ± 0.36
	15:10–15:18	"pure" BB	Can BB, Sib BB	0.42 ± 0.21
	15:22–15:28	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.37 \pm 0.31}$
	15:42–15:52	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.39 \pm 0.32}$
	15:52–16:02	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.36 ± 0.30
12 July a	**11:30–11:36**	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.57 \pm 0.28}$
	11:40–12:00	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.52 \pm 0.26}$
	12:24–12:28	BB/FF no Asia	NA FF/BB	0.58 ± 0.28
	12:28–12:34	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.45 \pm 0.21}$
	12:44–12:52	BB/FF no Asia	NA FF/BB	0.34 ± 0.16
	12:58–13:06	BB/FF no Asia	NA FF/BB	0.61 ± 0.36
	13:12–13:18	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.37 \pm 0.37}$
	13:30–13:36	**NA/EU, FF/little BB**	**NA FF/little BB**	$\mathbf{0.32 \pm 0.20}$
	13:44–13:54	BB/FF no Asia	EU FF, Can BB	0.42 ± 0.20
12 July b	18:28–18:46	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.56 ± 0.41
	19:06–19:16	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.69 ± 0.30
	19:24–19:42	BB/FF no Asia	NA FF/BB	0.55 ± 0.28
	19:48–20:02	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.52 ± 0.28
13 July	18:24–18:30	BB/FF no Asia (Plume V_{ref})	NA BB/FF	1.24 ± 0.40
	18:34–18:40	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.96 ± 0.42
	18:42–19:06	Asia FF/Sib BB (Plume IV)	Asia FF/Sib BB	0.98 ± 0.40
	19:18–19:24	NA/EU, FF/little BB	EU FF, NA FF	1.25 ± 0.60
	19:28–19:36	NA/EU, FF/little BB	EU FF, NA FF	0.92 ± 0.34
	19:36–19:40	Sib BB/Asia FF	Sib BB/Asia FF	0.40 ± 0.26
	19:56–20:02	Sib BB/Asia FF (Plume V)	Sib BB/Asia FF	0.26 ± 0.26
	20:10–20:16	Sib BB/Asia FF	Sib BB/Asia FF	0.84 ± 0.43
	20:16–20:20	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.69 ± 0.45
14 July a	12:18–12:26	Sib BB/Asia FF	Sib BB/Asia FF	0.75 ± 0.33
14 July b	14:30–14:42	BB/FF no Asia	EU FF, Can BB	1.39 ± 0.57
	15:50–15:56	Asia FF/Sib BB	Asia FF/Sib BB	0.95 ± 0.60
	15:58–16:04	Asia FF/Sib BB	Asia FF/Sib BB	1.03 ± 0.65
	16:04–16:08	Asia FF/Sib BB	Asia FF/Sib BB	1.32 ± 0.54
	16:08–16:16	Asia FF/Sib BB	Asia FF/Sib BB	1.24 ± 0.50
	16:22–16:28	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.86 ± 0.63
	16:30–16:40	BB/FF no Asia	NA BB/FF	0.80 ± 0.43

BB, biomass burning; FF, fossil fuel combustion; NA, North America; EU, Europe; Sib, Siberia; Asia, East Asia; class and sub-class names are composed according to the importance of the pollution contribution.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

The identification of pollution plumes within the aircraft data time series was conducted manually by taking into consideration the following parameters:

1. Increased concentrations of at least 0.1 µg m^{-3} (STP) of particulate sulphate and/or organic aerosol relative to the immediate surroundings,
2. a particle signature of at least 0.01 µm^3 cm^{-3} (STP) in the volume size distribution ($dV/d\log(dp)$) of accumulation mode particles measured by the SMPS,
3. an increase of at least 10 nmol mol^{-1} CO and/or O_3 mixing ratio relative to the immediate surroundings, and
4. an identifiable source-receptor relationship modelled by FLEXPART.

For an episode to be recognized as plume either (1) and (2) and (4); or (3) and (4) had to be fulfilled. The shortest identified pollution episodes involve three AMS data points of 2 min time resolution. Since the AMS limit of detection was elevated during most of the flights 9 plumes were below the 3 sigma LOD but above the 1 sigma LOD and 8 plumes were below the 1 sigma LOD. In some of these pollution plumes only gaseous tracers were enhanced, while during others either particulate sulphate or organics were elevated and the other below LOD due to the nature of the emission source. These events were still accounted for because the SMPS data clearly showed the presence of enhanced particle number densities and AMS mass concentrations were locally elevated. For POLARCAT-France measurements, SMPS volume size distribution data can be compared qualitatively to AMS mass concentration data within certain constraints. The particle size ranges of the SMPS, 20–500 nm mobility diameter (d_{mob}), and the AMS, 80–1000 nm vacuum aerodynamic diameter (d_{va}), are comparable. Although the shape factor and density of the measured aerosol are not known, it is expected that whenever the SMPS detects a clear signal in accumulation mode particles the AMS will detect a mass signal. Even though the SMPS signal includes refractory aerosol components, such as mineral dust and BC, it is very likely that when BC aerosol is present it is either coated or accompanied by non-refractory compounds which the AMS can detect. BC emissions, which are expected to be advected to Greenland from FF and BB emissions, are always accompanied by release of VOCs (volatile organic compounds) in both cases and SO_2 during fossil fuel combustion. These gas phase components will undergo chemical change over time and transport and partition to the particle phase (e.g. Hallquist et al., 2009).

4.1 Case studies

The following subsections intend to give a more detailed insight into the meteorological conditions during the POLARCAT campaign and to highlight the strong variability in the observed pollution events resulting from this situation. The following aspects are discussed by means of 6 selected pollution episodes (Tables 3 and 4) observed on 8 and 13 July, 2008: source regions and types, gas and particle phase chemical characteristics, transport times, pathways, patterns and aerosol scavenging.

4.1.1 Flight description and meteorological situation on 8 and 13 July 2008

The flight on 8 July started in Kangerlussuaq, passed over the Greenland ice sheet heading south, flew over the Atlantic Ocean, and then returned to Narsarsuaq, Southern Greenland (dark blue trace, Fig. 1). Due to an intense low pressure system tracking from North America towards southern Greenland, mainly air masses from Canada and the United States were sampled (see Fig. 2). A strong warm conveyor belt (WCB) associated with this low pressure system lifted warm and humid air masses from North America up to 400 hPa and advected them towards southern Greenland over approximately 3 days. According to FLEXPART, transport times from North America were between three and nine days. During the flight, the aircraft crossed several clouds, thus aerosol was sampled in and outside of clouds. Figure 3a shows the time series of altitude, CO and O_3 at 1 s time resolution. In-situ relative humidity equal to or greater than 100 % is indicated by striped areas. Panel b presents AMS sulphate and organic aerosol measurements at two minutes time resolution. The SMPS volume size distribution at STP with 130 s time resolution in µm^3 cm^{-3} is shown in Fig. 3e. Panel c compares the FLEXPART backwards simulated excess total CO (grey) and BB CO (brown) with the in-situ measured CO minus 100 nmol mol^{-1} (called measured excess CO). Panel d provides an estimation of aerosol wash-out based on the ratio of BC aerosol-like and passive tracers. The unit-less percentage indicates the amount of aerosol which has not been scavenged. The very low numbers indicate that the majority of particulate matter has potentially been removed during transport towards Greenland.

On 13 July 2008, the ATR-42 flew from Kangerlussuaq straight over Baffin Bay in NW direction to a turning point at 70.1° N, 60.4° W from where it returned on the same path. The first leg was flown at 7.3 km altitude while during the return the altitude varied between 4.6 and 5.8 km a.s.l. (Fig. 1 and Fig. 4a) to cross forecasted pollution plumes at various altitudes. During this period, Asian pollution was transported across the pole associated with the development of a low pressure system over the East Siberian Sea (Sodemann et al., 2010). At the same time another low pressure system, originating from North America, travelled north along the eastern coast of Greenland. Pollution plumes sampled between these two low-pressure systems were in a region of stretching and filamentation leading to the formation of fine-scale features in the measurements (shown in detail by Sodemann et al., 2010). According to FLEXPART, this flight was influenced

Table 4. Overview of campaign characteristic pollution plumes (discussed in detail in Sect. 4).

	Plume I	Plume II	Plume III	Plume IV	Plume V
coordinates	66.3–65.5° N, 49.9–49.1° W	61.1–60.5° N, 45.4° W	60.5–61.1° N, 45.4° W	68.4–69.4° N, 54.8–57.8° W	68.7–69.0° N, 55.6–56.4° W
altitude (km)	4.2–5.0	7.6	2.1–3.0	7.3	5.7
date/time (UTC)	8 July 2008, 13:14–13:32	8 July 2008, 14:52–15:02	8 July 2008, 15:40–15:50	13 July 2008, 18:42–19:06	13 July 2008, 19:56–20:02
extension (km)	108	60	60	150	72
origin	BB, Canada	BB, Canada FF, Great Lakes	FF, Ohio Valley, Great Lakes BB, Canada	FF, Asia BB, Siberia	BB, Siberia FF, Asia
age (days)	7	6–11 3–4	>7 5–8	6–11	6–11
maximum AMS derived mass (µg m^{-3})	1.11	0.96	0.73	1.30	0.22
fraction of particulate organics (%)	90 ± 12	82 ± 4	55 ± 17	52 ± 22	–
ΔCO (nmol mol^{-1})	30	27	–	−16	30
ΔO_3 (nmol mol^{-1})	10	45	–	50	−24

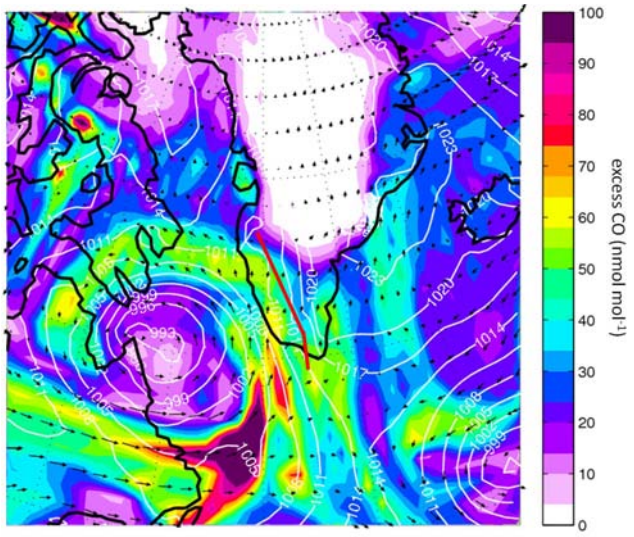


Fig. 2. Low pressure system west of Greenland on 8 July at 15:00 UTC at 5000 m altitude. The colour-code denotes FLEXPART derived excess CO mixing ratio in nmol mol^{-1}, the white contours represent surface pressure levels from 980 to 1030 hPa in 3 hPa intervals. The red trace indicates the flight track on 8 July 2008.

by a variety of air masses from different origins leading to high variability in air mass transport times which ranged between 10 and 17 days for Asia and around one week for NA and Europe. Figure 4 provides the same information as Fig. 3 for this specific flight.

The plumes which are discussed in the following analysis are represented by roman numbers in chronological order in Figs. 3 and 4. An overview of plume origin, coordinates, and main characteristics is given in Table 4.

4.1.2 Aerosol and trace gas enhancement from Canadian BB

Plume I sampled on 8 July (Figs. 3 and 5a) is an example for advection of nearly pure BB pollution out of Canada through the free troposphere towards Greenland. After one week of transport, clear enhancements of submicron aerosol concentration, ozone, and CO were observed over the inland ice in Greenland. The chemical composition of the aerosol is characterised by a mass fraction of 90 ± 12 % organics, an average total mass of 0.82 ± 0.35 µg m^{-3}, while ΔCO is 30 nmol mol^{-1}, and ΔO_3 is 10 nmol mol^{-1} for the period during which the aircraft moved at a constant altitude. The trace gas delta values are calculated by subtracting the average mixing ratio before and after the plume from the peak value during the pollution episode. Between 13:24 and 13:26 UTC all aerosol and trace gas signals drop simultaneously. Potentially, the aircraft shortly moved out of the plume. The CO detector shows no signal during these two minutes due to internal calibrations. Even though according to Fig. 3b and c the ATR-42 flew only through a faint CO and mostly washed-out BC signature, it is obvious from FLEXPART column-integrated emission sensitivity in Fig. 5a that this air mass was influenced by BB in Canada (the red and black dots indicate MODIS fire counts for forest and other land use, respectively). According to back trajectory calculations by the OFFLINE model, most of the air masses picked up BB signatures at 600 hPa and were lifted to about 400 hPa close to the east coast of North America and then travelled between 600 and 500 hPa before interception.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

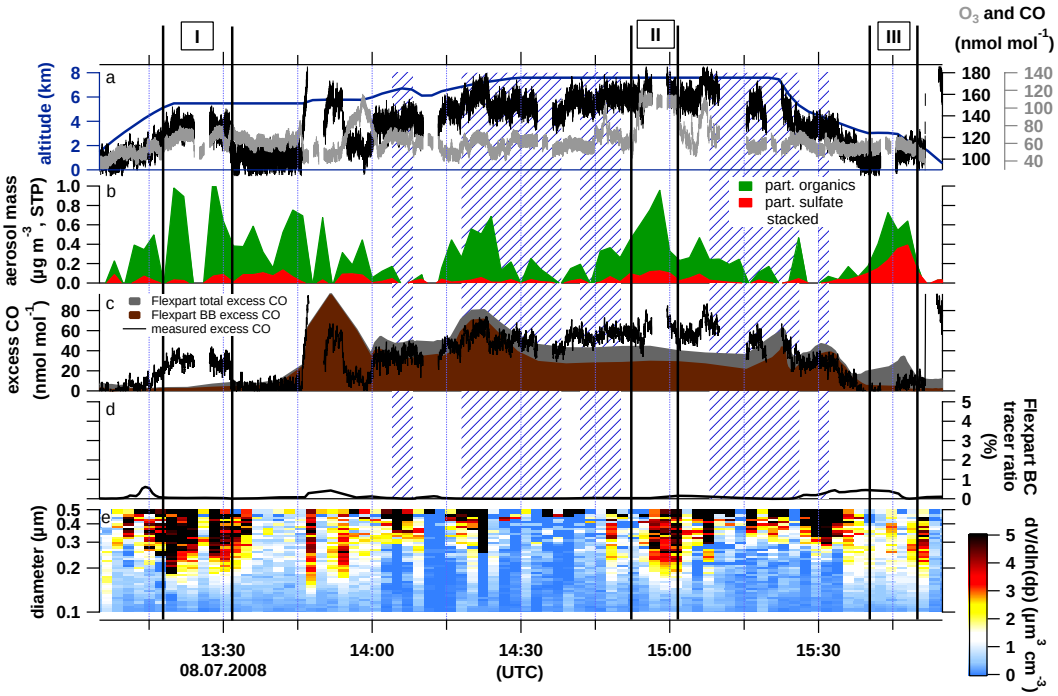


Fig. 3. 8 July, 2008. **(a)** Aircraft altitude (blue) and trace gas mixing ratios (grey O_3, black CO) in one second time resolution, the blue striped areas denote relative humidity equal to or greater than 100 %. **(b)** AMS sulphate and organic aerosol mass concentration (stacked) in two minutes time resolution. **(c)** FLEXPART excess total and biomass burning (BB) CO and measured excess CO (actual concentration minus 100 nmol mol^{-1}), **(d)** ratio of FLEXPART BC aerosol-like and passive tracer, **(e)** SMPS volume size distribution at STP. The areas between the black bars with roman numbers indicate the discussed plumes.

4.1.3 Aerosol enhancement from North American BB and FF pollution with minimal trace gas signature

While in Sect. 4.1.2 both trace gases and particle signatures were elevated, another case from 8 July (Plume III, Figs. 3 and 5c, d) illustrates a situation where BB pollution from Canada mixed with FF outflow from the Ohio Valley was sampled but only aerosol concentrations are markedly elevated. Plume III was sampled between 3.0 and 2.1 km altitude during the descent to Narsarsuaq while traversing a layer of low level clouds. Both aerosol instruments (Fig. 3b and e) indicate a clearly defined particle plume. Organic matter increases steeply from below detection limit to 0.49 µg m^{-3} until 15:44 UTC, while particulate sulphate peaks around 15:48 UTC with 0.39 µg m^{-3}. The occurrence of one peak after another suggests that two distinct sources are intermingled in the 10 min measurement interval occurring over 60 km. The ozone mixing ratio remains constant throughout the encounter, while the CO mixing ratio increases slightly from roughly 100 to 110 nmol mol^{-1} including a period of instrument calibration. It is difficult to determine whether the increase in CO is due to the plume or due to local emissions from Narsarsuaq. The FLEXPART column-integrated emission sensitivity (Fig. 5c) suggests that the first part of this plume encounter was influenced by Canadian BB. The source region and transport of this episode are comparable to Plume I. However, while in both cases organic aerosol is markedly enhanced, CO is not in the second case. This result clearly shows that considering both gas and aerosol phase is important to fully identify pollution events. During the second part of the plume encounter the source region shifts south to the Great Lakes area, the Ohio Valley and the US East Coast (Fig. 5d). Parts of these areas are densely populated and heavily industrialized which may explain the high contribution of sulphate aerosol to this plume. The ratio of FLEXPART SO_2 and CO passive tracers is significantly higher during this episode than during the rest of the flight (not shown). Such enhanced SO_2 emissions indicate pollution contributions from New York and the Ohio Valley area based on the EDGAR 32FT2000 emission inventory. The FLEXPART CO fire tracer contributes less than 5 % during this episode to the total CO. The relative humidity at the start point of this plume is 31 % while it increases steadily and peaks at 86 % together with the particulate sulphate concentration. It is conceivable that the distinct particulate sulphate signature is a result of SO_2 processing in clouds further above. Transport times were longer than one week for the BB contributions, and between 5–8 days for FF (see Fig. 5c, d). Based on the OFFLINE model, the BB air mass trajectories were uplifted from approximately 800 hPa to 550 hPa after

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

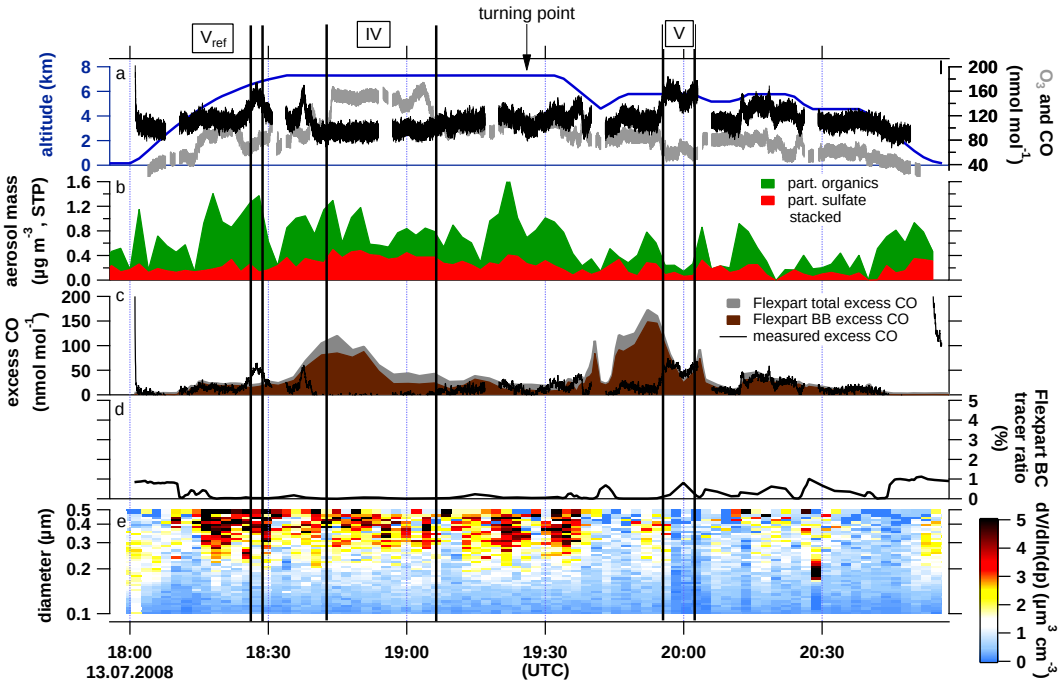


Fig. 4. 13 July 2008. **(a)** Aircraft altitude (blue) and trace gas mixing ratios (grey O_3, black CO) in one second time resolution, the blue striped areas denote relative humidity equal to or greater than 100 %. **(b)** AMS sulphate and organic aerosol mass concentration (stacked) in two minutes time resolution. **(c)** FLEXPART excess total and biomass burning (BB) CO and measured excess CO (actual concentration minus 100 nmol mol^{-1}), **(d)** ratio of FLEXPART BC aerosol-like and passive tracer, **(e)** SMPS volume size distribution at STP. The areas between the black bars with roman numbers indicate the discussed plumes.

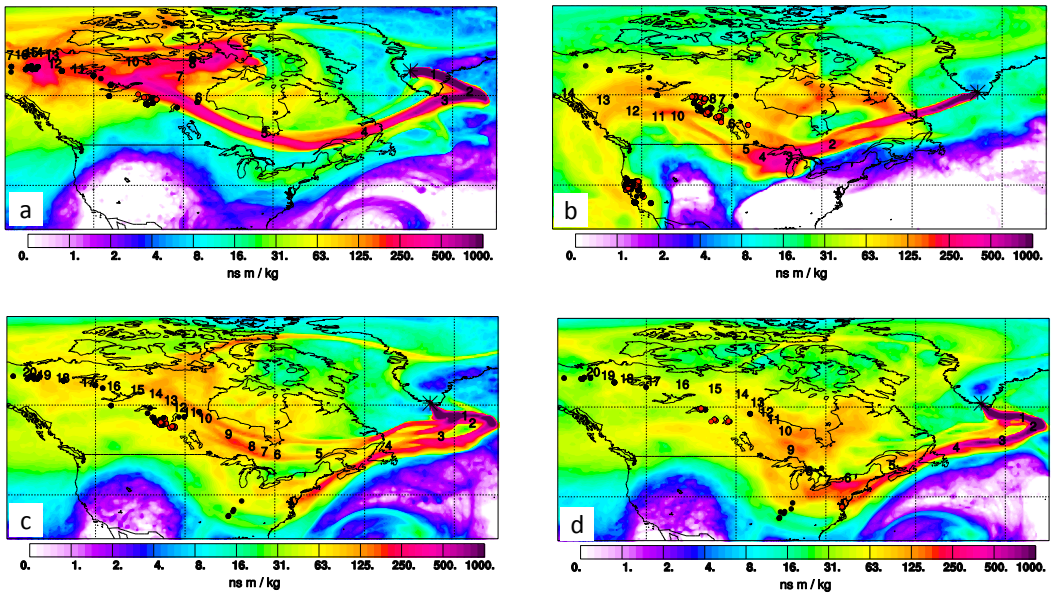


Fig. 5. Column-integrated emission sensitivity on 8 July 2008 for Plume I to III. **(a)** Plume I, 13:27:45–13:31:47 UTC, shows BB contributions from Canada. **(b)** Plume II, 14:56:03–15:01:40 UTC, shows FF influence from the Great Lakes area and BB contributions from Canada and the US West Coast. **(c)** Plume III, 15:39:35–15:44:16 UTC, presents BB influence from Canada and FF contribution from the Ohio Valley and US East Coast. **(d)** Plume III, 15:46:08–15:46:43 UTC, shows contributions of FF from the Ohio Valley, Great Lakes area and the US East Coast and some BB influence from Canada.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

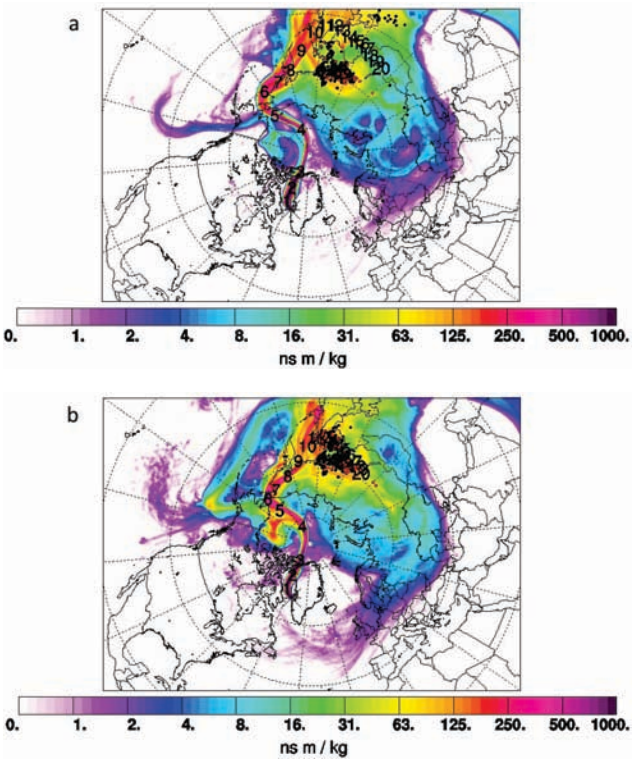


Fig. 6. FLEXPART column-integrated emission sensitivity on 13 July 2008 for **(a)** Plume IV, 18:41:32–18:44:54 UTC, and **(b)** Plume V, 20:02:51–20:03:31 UTC, both showing influences from mixed Asian FF and Siberian BB pollution.

passing over the fires and then descended slowly within 42 hours to 700 hPa before detection over Greenland. The FF trajectories picked up pollution between 1000 and 850 hPa before transport at low level towards Greenland where they were measured between 840 and 710 hPa.

4.1.4 Strong CO enhancement and aerosol wash-out in WCB

In contrast to the case discussed in Sect. 4.1.3, Plume V intercepted on 13 July (Fig. 4) exhibits a strong increase in the CO mixing ratio while ozone concentrations drop and the aerosol signature almost disappears. The CO mixing ratio is enhanced with 154 nmol mol^{-1} on average with a ΔCO of 30 nmol mol^{-1}, while the O_3 mixing ratio drops to 61 nmol mol^{-1}, still slightly elevated, corresponding to a ΔO_3 of -24 nmol mol^{-1}. Both aerosol instruments detect little signal. AMS aerosol total mass is 0.26 ± 0.26 µg m^{-3}. However, the air mass is influenced by Siberian BB and East Asian FF (Beijing region, Korea and Japan) based on the FLEXPART column-integrated emission sensitivity given in Fig. 6b. Considering the vertical extension of the plume by means of the FLEXPART CO passive tracer as shown in Fig. 7 the pollution episode was crossed at its highest concentration. This and the combination of elevated CO mixing ratio and very low signal intensity for aerosol detection suggests that this plume may have been influenced by aerosol wash-out. Thus, the gas phase pollution tracer CO survived transport from East Asia and Siberia while particles were deposited en-route. Roiger et al. (2011) describe the corresponding meteorological situation in detail including the rapid uplift of polluted air masses in a WCB by means of cloud top temperatures over East Asia and the subsequent cross-polar transport towards Greenland. Figure 8a and b display the median values of the meteorological field data along the trajectories calculated with LAGRANTO which are released within the given time frames (see below). In Fig. 8a (19:58:20–20:02:00 UTC) it is clearly visible from the cloud cover and precipitation that aerosol wash-out could have occurred around 110 to 70 h prior to interception during air mass uplift which can be associated to the WCB event. To contrast this period of high CO and low particulate matter abundance, Fig. 8b shows the vertical cross-section along the trajectory for the period 18:26:40–18:28:24 UTC of the same flight with a high CO mixing ratio of 151 nmol mol^{-1} and high total AMS aerosol mass of 1.24 ± 0.40 µg m^{-3} (see label "V_{ref}" in Fig. 4). Even though this plume corresponds primarily to Canadian BB and US anthropogenic emissions we compare it to Plume V in terms of total submicron aerosol mass loading because in both cases the CO mixing ratios are greater than 150 nmol mol^{-1}. Therefore elevated particulate mass concentrations are expected for both events. While Plume V aerosol was very likely scavenged by a precipitation rate near 1 mm h^{-1} (see lower panel in Fig. 8a) during air mass ascent, Plume V_{ref} particles experienced much less precipitation en-route (maximum of 0.2 mm h^{-1}, see Fig. 8b lower panel). Therefore the measured aerosol mass concentration at 150 nmol mol^{-1} CO mixing ratio is rather high within the context of this campaign. This analysis shows that relating enhanced CO mixing ratios to aerosol concentrations

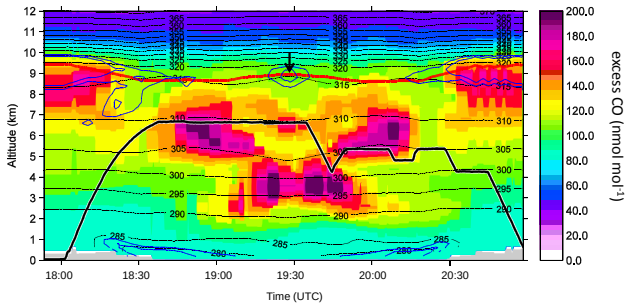


Fig. 7. FLEXPART calculations of excess CO passive tracer concentration in nmol mol^{-1} along the flight track (thick black line). The thin black lines indicate potential temperature in K, the thick red line denotes the 2 PVU isosurface, the thin blue contours show 80 and 90 % relative humidity. The arrow indicates the turning point.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

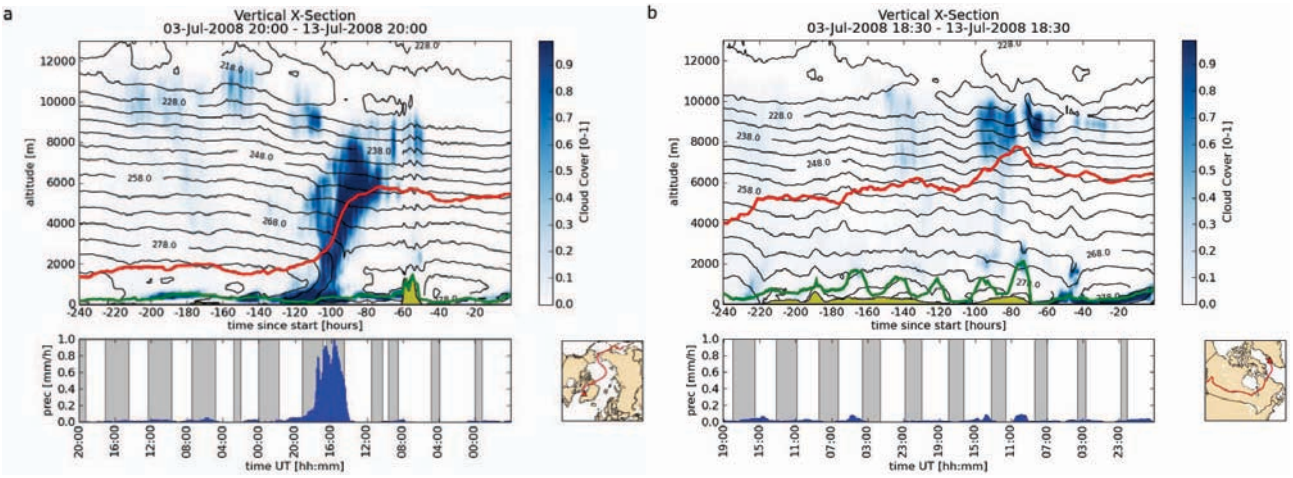


Fig. 8. Median values of the meteorological field data along the trajectories, released between 19:58:20–20:02:00 **(a)** and 18:26:40–18:28:24 **(b)**. Blue shades indicate cloud cover, black contour lines temperature, the green line the boundary layer height, the yellow pattern the orography as given by the ECMWF data, and the red line the median position of the trajectory ensemble. The lower panel shows median precipitation values at the surface (blue columns) and night times along the trajectory pathway (grey shade).

becomes difficult as particulate matter is subject to aqueous removal processes while CO with a lifetime of roughly 1–2 months is more likely to be preserved (see more detailed discussion in Sect. 5.2).

4.1.5 Significant aerosol and trace gas enhancement despite transport associated to WCB

Unlike Plume V, Plume II sampled on 8 July (Figs. 3 and 5b) provides an example in which pollution outflow is uplifted through a WCB and both trace gases and aerosol concentrations remain markedly enhanced over Greenland. ΔO_3 is approximately 45 nmol mol^{-1}, and ΔCO at least 27 nmol mol^{-1} (see Fig. 3). The ΔCO is a lower estimate since internal instrument calibration took place during this period and the highest recorded CO value throughout the plume was used as peak value for the calculation. Outside this defined plume period ΔCO is some 60 nmol mol^{-1} assuming 100 nmol mol^{-1} as background value (Fig. 3c). This implies that the event discussed here was embedded in an extensive polluted area. Both aerosol instruments show clear enhancements during the plume encounter compared to the surroundings. The AMS submicron aerosol mass has a mean of 0.62 ± 0.35 µg m^{-3}, peaks at 0.96 µg m^{-3}, and is composed of 82 ± 14 % organic carbon. Figure 5b shows that this plume is composed of a mixture of anthropogenic emissions from the Great Lakes area and forest fire emissions in Canada and possibly also at the US west coast. Transport times vary significantly depending on the source region: 3–4 days from the Great Lakes, 6–11 days from Canada, and greater than 12 days from the west coast. According to the OFFLINE model all trajectories raised from 900 hPa between 72 and 60 h prior to plume detection at 380 hPa (see Fig. 9 lower panel). Thus

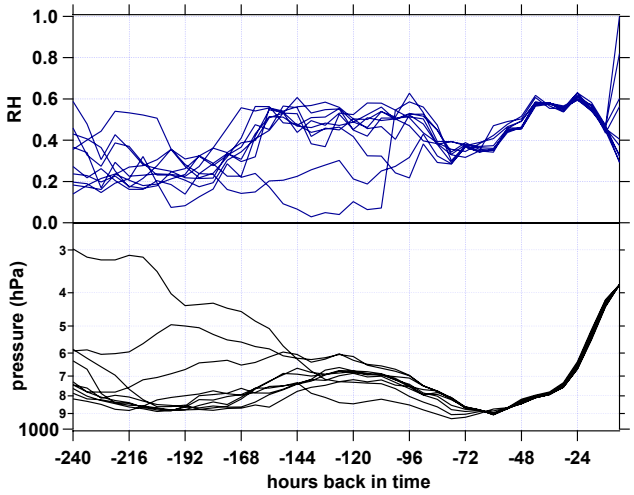


Fig. 9. Pressure and relative humidity along back trajectories calculated with the OFFLINE model for every minute during plume II. The data points at 0 h represent in-situ measurements.

air masses were subject to a strong and rapid uplift within 2–3 days and a humidity loss in the last 24 h. In-situ measured relative humidity was between 29 and 32 % in the maximum of the pollution episode and up to 100 % when entering and leaving the plume (Fig. 9 upper panel). A low pressure system travelled from the North American east coast to the west coast of Greenland between 6 and 8 July (see Fig. 2). The enhanced pollution in the warm sector of the cyclone and the above described trajectory analyses suggest that the pollution plume was carried upwards by a warm conveyor belt (WCB). Since condensation and precipitation are widespread and intense within the ascending air masses of a WCB the question

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

arises, how much of the original particulate pollution remains after the transport to the atmosphere above Greenland. The FLEXPART BC tracer ratio indicates (Fig. 3d) that less than 1 % of the aerosol-like tracer arrived at the point of interception which is true for the entire flight. The detection of Plume II, however, shows that aerosol wash-out in a WCB is not necessarily complete. Also note that the ozone mixing ratio is strongly elevated for the duration of the plume. FLEXPART stratospheric air mass contribution is however <5 % which is in good agreement with the history of the air mass (Fig. 9) suggesting that photochemical production of ozone may have taken place.

4.1.6 Stratospheric air mass intrusion into upper tropospheric Asian pollution plume

While in Plume II the positive ΔO_3 was not due to mixing with stratospheric air masses, the long period of ozone elevation during pollution episode IV on 13 July (Fig. 4) can be associated with a stratospheric air mass intrusion. Even though the modelled 2 PVU isosurface (red line in Fig. 7), an indicator for the location of the dynamical tropopause (Holton et al., 1995), is located at roughly 9 km, FLEXPART calculations show a contribution of 20 to 25 % of stratospheric air masses for this period (not shown). The ozone mixing ratio is clearly enhanced at 145 nmol mol^{-1} with ΔO_3 being 50 nmol mol^{-1}. CO stays relatively low at 95 nmol mol^{-1} on average with a ΔCO of -16 nmol mol^{-1}. It is conceivable that elevated plume CO concentrations might have been cancelled out by the mixing of tropospheric and stratospheric air masses in this case. The in-situ relative humidity drops by 10 % when entering and increases by 10 % when leaving this episode confirming the stratospheric influence. Plume IV forms part of the same pollution episode as Plume V since the aircraft returned along the same coordinates but at different altitudes as can be seen in Fig. 7 by the mirrored structure of the modelled excess CO passive tracer. Therefore, a similar trend in trace gas enhancements is expected. However, the behaviour is opposite. This shows that the same pollution episode can exhibit very diverse characteristics dependent on where measurements were performed. This is not only true for trace gases but also for the aerosol concentration. While in Plume V particles were scavenged, the SMPS shows in Plume IV an enhanced signal of up to 0.25 µm^3 cm^{-3} for accumulation mode particles, and AMS total mass has a mean of 0.98 ± 0.40 µg m^{-3}, 1.45 times higher than the average of mass concentrations of plumes encountered during the campaign (see Sect. 5). The fraction of organic mass is 52 ± 22 %. According to the FLEXPART column-integrated emission sensitivity (Fig. 6a), the sampled air masses arrived from Siberia (BB) and East Asia (FF from the Beijing area, Korea and Japan). The FLEXPART CO passive fire tracer contribution ranges between 54 and 90 % of the total CO contribution during this episode (Fig. 4c). This is only partly consistent with the AMS findings since the large fraction of particulate sulphate (48 ± 22 %) reflects a strong FF contribution rather than BB. The plume age varied over the sampling period from about 11 to 16 days (see Fig. 6a). Air masses extending over the middle and upper troposphere (300 and 700 hPa) moved from southern Siberia and East Asia over the North Pole (Sodemann et al., 2010; Roiger et al., 2011). 72 h prior to the encounter all trajectories were above 430 hPa at 79° N from where they travelled south to the point of interception. As back trajectory analyses with the OFFLINE model suggest, this pollution episode might be related to the case study presented by Roiger et al. (2011). They describe how anthropogenic East Asian polluted air masses were uplifted in a WCB entering the lowermost Arctic stratosphere with subsequent cross-polar transport towards Greenland. The pollutant rich tropospheric streamer and ozone rich stratospheric air masses seem to have irreversibly mixed at the filamented edges of the intrusion. While the latitudinal coordinates of the event described in Roiger et al. (2011) and of Plume IV coincide very well, there is a difference in roughly 5° longitude and up to 200 hPa in the vertical. A comparison of both plumes, however, is out of scope for this paper.

Altogether, this discussion of only six detected plumes shows the large variability in characteristics of pollution reaching Greenland during summer. At the beginning of July 2008, an intense low pressure system moving from North America towards southern Greenland was responsible for the advection of US American and Canadian polluted air masses with transport times between three and nine days. Later, two low pressure systems, one over the East Siberian Sea and another at the east coast of Greenland, facilitated cross-polar transport of East Asian and Siberian air masses towards Greenland where the transport time was roughly between two and three weeks. For the general evaluation of long-range transport pollution the observed cases show that both gaseous and particulate tracers need to be taken into account. Trace gases might not always be elevated when aerosol pollution is present (Plume III). Also, air mass uplift in WCB over East Asia led to nearly complete aerosol scavenging (Plume V) while trace gas mixing ratios remained elevated, whereas WCB transport out of North America was responsible for enhanced particulate and gaseous pollution over southern Greenland (Plume II). The high variability of chemical characteristics was even true within the same pollution episode as cases IV and V show.

5 General characterisation of summertime aerosol over Greenland

5.1 Vertical profiles

Figure 10 shows the campaign average vertical profiles of the total AMS measured aerosol mass, the SMPS detected volume of particles, and the mixing ratio of CO for all flights

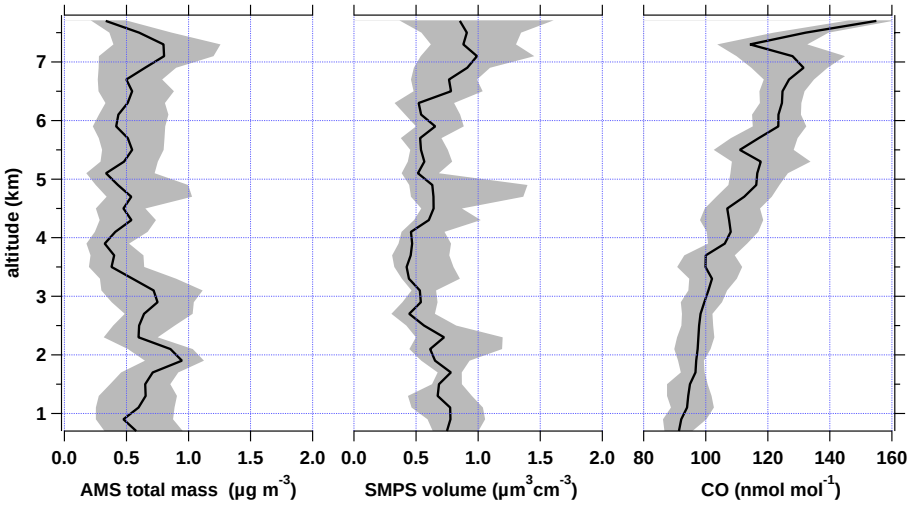


Fig. 10. Vertical profile of total AMS aerosol mass, SMPS aerosol volume, and CO mixing ratio for all 8 POLARCAT flights. The black lines show the median concentration for 200 m altitude bins while the grey shaded areas comprise the inter-quartile concentrations. The data has been smoothed by a sliding average comprising 5 altitude bins. Aerosol mass and volume are given in STP.

indicated in Table 2. The black lines denote the median values of 200 m altitude bins while the grey shaded areas constrain the inter-quartiles. No real boundary layer enhancement in particles over land and inland ice was found as reported previously by other authors for summertime Arctic measurements at the surface (e.g. Engvall et al., 2008), while in the marine boundary layer a maximum of $1.22 \pm 0.30\,\mu g\,m^{-3}$ consisting of 50 % sulphate aerosol was detected. Between 1 and 3 km a slight enhancement in aerosol volume and two distinct elevations in aerosol mass were observed which originated from low-level pollution transport out of North America (see discussion of flight from 8 July in Sect. 4.1). In the free troposphere, from above 3 to 5.5 km aerosol loadings are at a minimum with a mass median mainly below $0.5\,\mu g\,m^{-3}$ and an aerosol volume of below $0.50\,\mu m^3\,cm^{-3}$. Based on the increase of the CO mixing ratio with altitude, advection of polluted air masses can be assumed. Thus, higher aerosol concentrations could be expected. Since this is not the case, wet deposition is a likely explanation for the low aerosol concentration. This finding is comparable to measurements over the UK year-around (Morgan et al., 2009) and Central and Western Europe from May and late October/early November (Schneider et al., 2006a; Schmale et al., 2010) where similar aerosol concentrations were measured. According to these data the free troposphere over Greenland is not significantly cleaner than over Europe in terms of aerosol mass concentrations. Above 5.5 km aerosol mass increases slightly, as well as the CO mixing ratio. This might reflect the high altitude long-range transport of polluted air masses from North America, Siberia/Asia and Europe.

In general, the non-plume aerosol is composed of 29 ± 20 % particulate sulphate and 71 ± 20 % organic carbon, while particulate nitrate, ammonium, and chloride are all below detection limit. Including a maximum estimate of nitrate and ammonium mass concentrations based on the average LOD from all flights, sulphate aerosol would make up approximately 15 % of the particle mass and organics 56 %, not taking into account species like BC or dust which the AMS cannot measure. For pollution episodes with mass loadings greater than $1.00\,\mu g\,m^{-3}$ the organic mass fraction increases to 78 ± 12 % and even to 85 ± 12 % for events with more than $2.00\,\mu g\,m^{-3}$. This means that pollution transport enhances the organic carbon mass loading in the free troposphere above Greenland. In terms of mass concentration, during plume events the median loading increases from 0.48 to $0.58\,\mu g\,m^{-3}$.

If a particle density of $1.7\,g\,cm^{-3}$ is assumed, based on densities of sulphate/sulphuric acid ($1.7–1.8\,g\,cm^{-3}$) and aged organic matter ($1.5–1.7\,g\,cm^{-3}$, Dinar et al., 2006), the SMPS particle volume ($\mu m\,cm^{-3}$) is roughly a factor 2 too high. This can partly be explained by the fraction of particles which the SMPS can detect but which are not accounted for by the AMS. As not 50 % of the mass is composed of BC, mineral dust or refractory organics, the uncertainties in the AMS data due to the total estimated collection efficiency CE_{PCI} of 27 % and the systematic 30 % uncertainty in the PCI inlet transmission are more important. Furthermore, the aerosol number and size distributions were most likely not stable during one SMPS scan of 130 s adding uncertainties to the aerosol volume size distribution (see also Quennehen et al., 2011). The SMPS data quality has been proven (see Quennehen et al., 2011) by the very good consistency of independent data sets of size distributions from SMPS and PCASP, total concentrations from CPC 3010, and light scattering from the TSI nephelometer.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Table 5. Emission ratios of gaseous sulphur and gaseous organic compounds from fossil fuel (FF) and biomass burning (BB) based on several emission inventories and studies.

Reference	Fossil fuel combustion		Biomass burning	
	SO_2/CO	VOC/CO	SO_2/CO	VOC/CO
EDGAR 32FT2000[1]	0.30–0.45	–	–	–
Streets et al. (2003)[2]	0.16	0.19	0.007	0.18
Zhang et al. (2009)[3]	0.16	0.18	–	–
Andreae and Merlet (2001)[4]	–	–	0.009	0.05
Wiedinmyer et al. (2006)[5]	–	–	0.0004	0.004
Yokelson et al. (2009)[6]	–	–	–	0.04
Neto et al. (2009)[7]	–	–	–	0.05

[1] For North America (Great Lakes, Ohio Valley, East Coast) and Asia (Beijing area, Korea, Japan)

[2] Asia, values for FF correspond to combustion, values for BB to open burning, VOC = NMVOC

[3] Asian anthropogenic emissions, VOC = NMVOC

[4] Extratropical forest, VOC = total VOC

[5] Average over all vegetation classes, VOC = NMHC

[6] BB in the Yucatan, VOC = NMHC

[7] Deforestation in Brazil, VOC = NMHC

VOC = volatile organic compounds, NMVOC = non methane volatile organic compounds, NMHC = non methane hydrocarbons

5.2 Chemical plume properties

The FLEXPART analysis revealed that the major source contributions from NA were from BB events in Saskatchewan, Canada, and FF in the Great Lakes area, and Ohio Valley. European sources were mostly of anthropogenic nature, while a second BB influence originated from the Yakutsk area (Paris et al., 2009) in Siberia usually mixed with anthropogenic emissions from East Asia. While European and NA pollution was detected between 60 and 71° N, Siberian/Asian plumes were only observed north of 66°. A total of 48 plumes were detected with the AMS during POLARCAT and categorised into five different classes. The plume identification method was described in Sect. 4. The five categories were established based on a plume by plume analysis in which the FLEXPART column-integrated emission sensitivity, the general footprint tracer, and the CO, CO fire, BC and SO_2 tracer contributions were taken into account. First, 13 subclasses were established and then comprehended in 5 categories to obtain more robust statistics for each class (see Table 3).

5.2.1 Identification of emission sources by aerosol chemical composition

With the AMS chemical composition measurements it was possible to discriminate the different categories of plumes by determining the ratio of particulate sulphate and organic matter to total aerosol mass determined by the AMS measurements. Data from emission studies and inventories (see Table 5) suggest that FF plumes are marked by higher sulphur emissions while BB pollution is characterised by organic vapours which in the process of ageing condense on particles due to their decreasing vapour pressures. FF emissions have more than one order of magnitude higher SO_2/CO emissions ratios than BB while BB organic vapour emission ratios are roughly ten times higher than their SO_2/CO emissions (Streets et al., 2003; Zhang et al., 2009; Andreae and Merlet, 2001; Wiedinmyer et al., 2006). Thus, organic carbon aerosol is expected to dominate in BB plumes whereas sulphate aerosol is associated with FF pollution. Yokelson et al. (2009) report 67 times higher concentration of particulate carbon to sulphate measured by an AMS in relatively young BB plumes. Also Shinozuka et al. (2010) report on high ratios of organics to particulate sulphate for BB plumes measured by an AMS over Alaska during ARCTAS spring 2008. Young BB mass spectra can be identified by the ratio of certain markers (*m/z* 60 and *m/z* 73, Schneider et al., 2006b, Alfarra et al., 2007) for levoglucosan, which is a thermal decomposition product of cellulose (Simoneit et al., 1999). However, the long-range transport plumes observed over Greenland were photochemically processed to a very high degree and thus levoglucosan is expected to be decomposed (Hennigan et al., 2010). Figure 11a shows the derived sulphate and organic carbon ratios for the five different types of plumes. The categories start from the left with "pure" BB while the anthropogenic and Asian factors increase towards the right. At the very right the data for non-plume periods are displayed. The term "pure" is put in quotation marks as we cannot exclude mixtures with other air masses. "Pure" BB plumes, category one, are characterised by a median sulphate fraction of 0.22, which is also true for the second plume type, a mixture of prevailing BB and little FF from NA and Europe with no influence from Asia. This is consistent with findings by Heald et al. (2008) who

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

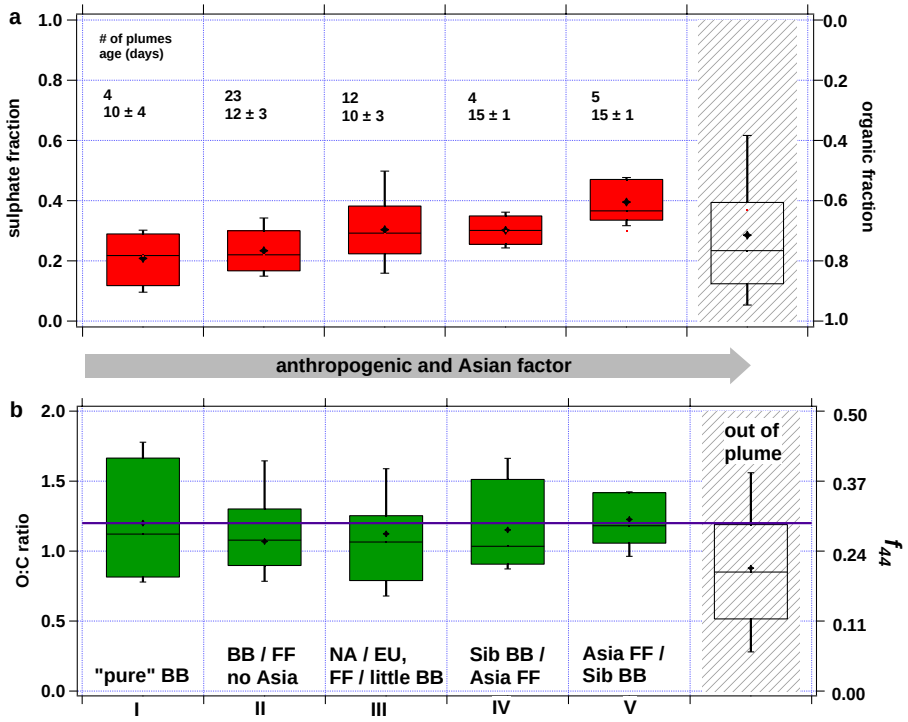


Fig. 11. (a) Fraction of particulate sulphate/organics associated with the type of pollution plume, and measurement periods without plume influence. The boxes denote the 25th and 75th percentiles, the black line within the box represents the median and the error bars show the 10th and 90th percentiles. The black stars denote the average value. **(b)** Oxygen to carbon ratio (O:C ratio), same notation as top panel, f_{44} denotes the fraction of *m/z* 44 of total organic mass. The purple line shows the oxygenation maximum after Ng et al. (2010). The roman numbers identify the plume categories.

also report around 20 % of sulphate for BB plumes, Singh et al. (2010) who found roughly 17 % for aged (1–5 days) BB/FF plumes from North America during ARCTAS spring and summer, and Brock et al. (2010) reporting on 26 % particulate sulphate during ARCPAC (Aerosol, Radiation, and Cloud Processes affecting Arctic Climate) 2008, accounting only for contributions from particulate sulphate and organics. It has been observed that in ageing BB plumes the relative increase in mass of particulate sulphate is higher than of organic carbon (Formenti et al., 2003; Yokelson et al., 2009) which can explain the relatively high percentage of sulphate in the detected BB plumes over Greenland. Enhanced particulate sulphate fractions in aged forest fire plumes have been reported before (Hudson et al., 2004). Within the third class, FF dominated plumes from the same source regions, the median sulphate fraction rises to 0.29, similar to plumes characterised mainly by Siberian BB and little Asian anthropogenic influence (0.30). Asian fossil fuel dominated plumes with little Siberian BB contribution reach a sulphate fraction of 0.37. This shows that the major contribution of particulate sulphate and thus acidic aerosol originates from East Asian anthropogenic activity. The highest concentration of particulate sulphate throughout the POLARCAT campaign was $1.95 \pm 0.12\,\mu g\,m^{-3}$ observed in an Asian fossil fuel influenced plume on 14 July. This is consistent with observations of Asian industrial plume transport and evolution out of NE China (Li et al., 2010). Lu et al. (2010) report that the annual growth rate of SO_2 emissions from China was 7.3 % between 2000 and 2006. The main contribution was from Northern China power plants which almost doubled their SO_2 emissions in this period. During the POLARCAT campaign no "pure" Asian FF plume was observed as East Asian outflow was always mixed with Siberian forest fire influenced air masses. However, it is conceivable that outside of the fire season air masses exclusively characterised by East Asian anthropogenic activity are transported towards Greenland. Therefore, the theoretical composition of a "pure" Asian FF plume can be estimated: The FLEXPART CO passive fire tracer indicates BB contributions between 54 and 85 % for the respective episodes. From the aerosol composition of category I ("pure" BB) we know that the BB contributions contain roughly 22 % particulate sulphate. Based on this, a percentage of 88.7 ± 34.5 % of particulate sulphate is estimated for a "pure" Asian FF plume. Siberian fires are estimated to contribute more than 56 % of Northern Hemispheric CO from extra tropical BB (van der Werf et al., 2006). However, during the POLARCAT-France summer campaign, it was not found that Siberian BB had a stronger influence on aerosol

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

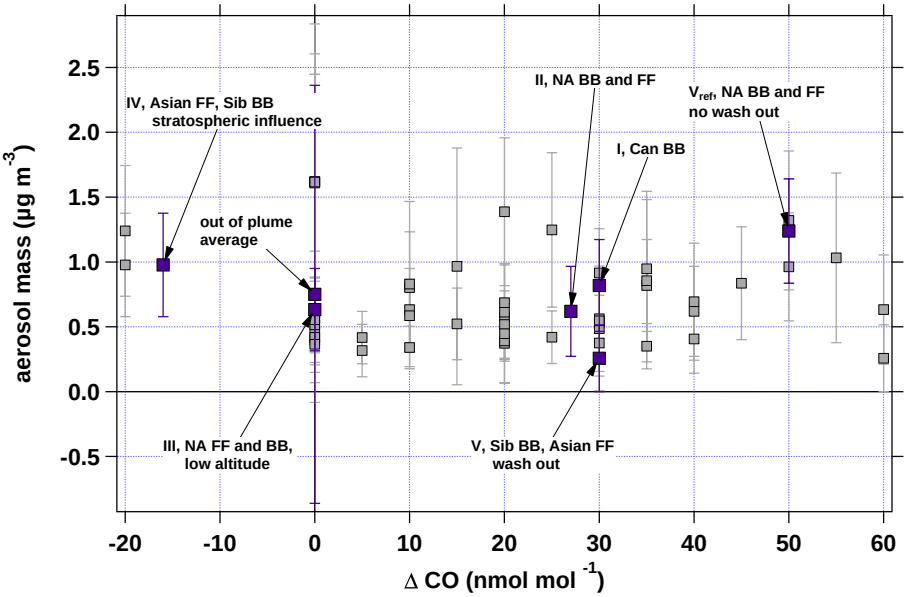


Fig. 12. Total AMS derived aerosol mass versus ΔCO for 48 identified pollution plumes and one average non-plume point. The highlighted plumes are discussed in Sect. 4.1.

composition over Greenland than Canadian BB. This might be due on the one hand to the longer transport pathway from Asia, resulting in more complete removal en-route to Greenland, and on the other hand to the meteorological conditions which favoured transport of NA BB plumes. Biomass burning was more active in Saskatchewan, Canada, at the time of this field experiment. If measurements had been conducted earlier in the year, higher Siberian influence could have been observed (Warneke et al., 2010). The median particulate sulphate fraction for non-plume periods is 0.23 µg m^{-3}, thus similar to category I and II, however with larger variability.

5.2.2 O:C ratio of the organic aerosol

Figure 11a also indicates the average age of a plume class since emission. It was calculated by averaging over the mean age of all individual pollution episodes within one category based on FLEXPART data. FLEXPART calculations derive a so-called age spectrum for each air mass probed by the aircraft for several types of tracers. For the average age calculation of a single plume the CO passive tracer age spectrum was used (Stohl et al., 2003). Each day's contribution (1 to 20 days back from the time of sampling) was weighted based on the excess CO mixing ratio per plume and multiplied by the specific day of contribution. The sum over the weighted daily contributions allows for an estimation of the average age of a pollution plume. The plot shows that long-range transport from North America and Europe took roughly 10 days (compare Fig. 5a–d) while plumes from Siberia and Asia generally travelled 15 days or longer (compare Fig. 6a, b). These periods are comparably long for aerosol transport and make particles subject to a variety of processes along the way. Among others these processes include ageing by photochemical processing. The photochemical state of organic aerosol can be derived from the O:C ratio (oxygen to carbon). The O:C ratio can be approximated with a unit resolution AMS by determining the ratio of the organic contribution of *m/z* 44 to the total organic mass, denoted as f_{44} (Aiken et al., 2008; Ng et al. 2010). For all types of detected plumes the median and average O:C ratio oscillated between 1.0 and 1.2 which corresponds to LV-OOA (low-volatility oxygenated organic aerosol, Jimenez et al., 2009), thus aged, organic matter (see Fig. 11b). No significant difference within the one standard deviation from the mean between the youngest (∼3 day) and oldest (∼16 day) plumes within the categories could be found, meaning the organic aerosol component is already highly processed after roughly one week of transport and additional time spent in the free troposphere does not increase the O:C ratio significantly. The finding is consistent with results from Ng et al. (2010) who found an asymptotic trend to an O:C ratio of 1.2 with age as indicated by the purple line in Fig. 11b. Furthermore, this implies that the characteristics of the organic aerosol advected to Greenland do not differ much in terms of chemical characteristics despite their distinct origins (shorter travelled particles correspond to NA, longer travelled ones to Siberia and East Asia). The non-plume O:C ratio (median: 0.85, mean: 0.88) implies that the aerosol background is less aged. There is not enough information to draw conclusions on the origin of this aerosol. However, a potential contribution might come from marine emissions of the North Atlantic Ocean. Russell et al. (2010) found that organic aerosol accounts for up to 47 % of the

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

submicron particulate mass over the North Atlantic and Arctic Ocean and is dominated by organic hydroxyl groups. As the sea is also a source for sulphur containing aerosol, marine emissions might explain the relatively high sulphate aerosol concentrations for the non-plume periods.

5.2.3 Correlation between aerosol mass and carbon monoxide mixing ratio

Due to transport times between 3 and 16 days, the long distance from the source, and aerosol scavenging during transport, especially in WCB events, it was not possible to derive a correlation of total aerosol mass and CO mixing ratio for plumes arriving at Greenland. In the vicinity of a source, usually a positive correlation between CO or ΔCO and aerosol species, i.e. organic carbon and black carbon, can be observed e.g. (Spackman et al., 2008; Singh et al., 2010; Yokelson et al., 2009). A factor which needs to be taken into account when correlating CO enhancements with aerosol mass concentrations is that this technique works best when the trace gas enhancement is large compared to the background CO value. The plumes studied here do not show an intense increase of the CO mixing ratio and the variability in the background concentrations is difficult to quantify, hence the difficulties in deriving a correlation. Figure 12 displays the measured aerosol mass versus ΔCO for all 48 plumes and an average out-of-plume data point. The individual plumes discussed in Sect. 4.1 are highlighted. ΔCO varies between -20 and 60 nmol mol^{-1} while aerosol concentrations cover values between 0 and 2 µg m^{-3} over the whole range. For negative ΔCO values the ozone mixing ratio is greater than 130 nmol mol^{-1} indicating upper tropospheric and lower stratospheric air mass contribution and thus most likely high altitude transport where wet deposition is less probable. Aerosol mass concentration is always larger than 0.97 µg m^{-3} for these cases. For all other plumes it was observed that the measured submicron aerosol mass was composed of at least 30 % organic carbon for CO mixing ratios between 100 and 140 nmol mol^{-1} and for larger mixing ratios more than 60 % of the mass was organic.

5.3 Aerosol size distributions

Size distributions of aerosol number and volume concentrations measured by the SMPS have been averaged for each of the five plume classes and for all out-of-plume periods (see Fig. 13a and b) and fitted with lognormal functions (see Table 6). All size distributions show clear enhancements in the accumulation mode as expected after transport times of one to two weeks (Jaenicke, 1980). The non-plume and "pure BB" size distributions (Fig. 13a, b black and dark green trace, respectively) show a significant enhancement in Aitken mode particles between 24 ± 1 and 43 ± 1, and 66 ± 1 nm, respectively, based on the volume. An additional accumulation mode with 490 ± 446 nm in background conditions and with 392 ± 17 nm for BB perturbed conditions is present. Mainly BB influenced non-Asian air masses (Fig. 13a, b, brown trace) also present two modes at 72 ± 13 nm and 287 ± 384 nm (volume-based). For a detailed discussion on the North American BB plumes see Quennehen et al. (2011). Air masses with mainly Siberian BB contribution display a broad ($\sigma_g = 1.92$) one-modal volume size distribution (Fig. 13a, b, bright green trace) with 269 ± 1 nm. Asian FF dominated plumes again show two modes (red trace) with 83 ± 9 nm and 321 ± 35 nm. Based on this, the background aerosol appears to have the largest geometrical mean diameter in the accumulation mode followed by the non-Asian FF dominated plume (471 ± 56 nm) signatures while Siberian BB dominated plumes show a rather small mode diameter comparable to non-Asian BB dominated pollution. Mixed BB and FF plume volume size distributions appear more than 100 nm smaller in the accumulation mode than "pure" BB. And, FF dominated particle size distributions are larger than those of BB dominated plumes.

5.4 Plume age and aerosol lifetime

The long transport times raise the question of aerosol lifetime. Ideally, particles from the same source region, i.e. similar chemical and hygroscopic properties, and comparable emission strengths at a variety of ages are measured. However, despite the lack of detailed information on the source region and meteorology at the time of emission and thus source strength, it was possible to relate the total measured aerosol mass to the FLEXPART calculated age for 10 plumes. This results in an exponential distribution from which an aerosol lifetime in the range between 7 and 11 days can be derived (Fig. 14, green line). For this calculation dilution and deposition over time were assumed to be similar for the chosen plumes as they have comparable chemical properties making them similarly hydrophilic/hydrophobic. The 10 selected plumes are characterised by mainly NA FF and little BB influence (see bold writing in Table 3). The red cross in Fig. 14 denotes an outlier. OFFLINE back trajectories suggest that this air mass was uplifted in a WCB event like Plume II as discussed in sect. 4.1.5. Furthermore, in-situ measured relative humidity was around 90 %. Thus, wet deposition along the pathway and/or in-situ is likely for this case. A τ ranging from 7 to 11 days is reasonable and consistent with lifetimes determined by other authors. Paris et al. (2009) found an experimental equivalent black carbon lifetime of 5.1 days for Siberian forest fire emissions, Koch and Hansen (2005) a modelled BC lifetime of 7.3 days, and Farina et al. (2010) modelled 6.8 to 16 days for SOA (secondary organic aerosol) depending on the scenario on a global scale. Exponential fits with lifetimes of 5, 7, 9, 11, and 16 days have been added to Fig. 14.

Table 6. Fit parameters for the log normal number and volume size distributions as shown in Fig. 13.

Parameter*	Out-of-plume	"pure" BB	BB/FF no Asia	NA/EU, FF/little BB	Sib BB/Asia FF	Asia FF/Sib BB
			$dN/d\ln(dp)$			
N_0	2228 ± 67	1275 ± 3	596 ± 252	479 ± 92	855 ± 1	308 ± 48
σ_{g0}	1.12 ± 1.02	1.46 ± 1.02	1.48 ± 1.16	1.46 ± 1.13	1.92 ± 1.01	1.51 ± 1.10
	0.023 ± 0.001	0.043 ± 0.001	0.045 ± 0.012	0.042 ± 0.003	0.075 ± 0.001	0.050 ± 0.009
N_1	1153 ± 171	637 ± 3	530 ± 397	780 ± 72		605 ± 34
σ_{g1}	1.22 ± 1.08	1.76 ± 1.06	1.76 ± 1.90	2.04 ± 1.26		1.78 ± 1.14
	0.039 ± 0.002	0.150 ± 0.017	0.110 ± 0.111	0.102 ± 0.048		0.117 ± 0.033
N_2	1344 ± 913					
σ_{g2}	2.35 ± 2.12					
	0.054 ± 0.083					
			$dV/d\ln(dp)$			
V_0	$0.02 \pm 6\times10^{-4}$	$0.08 \pm 2\times10^{-4}$	0.04 ± 0.02	$0.01 \pm 2\times10^{-3}$	$1.29 \pm 2\times10^{-4}$	$0.03 \pm 4\times10^{-3}$
σ_{g0}	1.12 ± 1.02	1.46 ± 1.02	1.48 ± 1.16	1.46 ± 1.13	1.92 ± 1.01	1.51 ± 1.10
	0.024 ± 0.001	0.066 ± 0.001	0.072 ± 0.013	0.065 ± 0.003	0.269 ± 0.001	0.083 ± 0.009
V_1	$0.05 \pm 7\times10^{-3}$	$4.81 \pm 3\times10^{-2}$	1.55 ± 1.16	4.35 ± 0.40		2.33 ± 0.13
σ_{g1}	1.22 ± 1.08	1.76 ± 1.06	1.76 ± 1.90	2.04 ± 1.26		1.78 ± 1.14
	0.043 ± 0.002	0.392 ± 0.017	0.287 ± 0.384	0.471 ± 0.056		0.321 ± 0.035
V_2	2.99 ± 2.03					
σ_{g2}	2.35 ± 2.12					
	0.490 ± 0.446					

* fit function:

$$\frac{dX}{d\log(dp)} = \sum_{i=0}^{n} \frac{X}{\sqrt{2\pi}\cdot\ln(\sigma_{g_i})} \cdot \exp\left\{-\left(\frac{\left(\ln\frac{dp}{\overline{dp_i}}\right)^2}{2\cdot(\ln(\sigma_{g_i}))^2}\right)\right\}$$

with X standing for either N (number) or V (volume), dp as particle mobility diameter in µm, $\overline{dp_i}$ is the geometrical mean diameter in µm of the respective mode, and σ_{g_i} is the geometric standard deviation of each mode.
Units of $\frac{dN}{d\ln(dp)}$ are cm^{-3}, and for $\frac{dV}{d\ln(dp)}$ μm^{-3} cm^{-3}.

6 Summary and conclusions

Airborne mass spectrometric measurements during POLARCAT-France summer provided new data on the chemical composition of submicron aerosol in the free troposphere over Greenland. During eight flights aboard the ATR-42 a high variety of pollution episodes originating from North America, Siberia and Asia, and Europe were observed. Emissions from extensive biomass burnings in Siberia, and Canada, and fossil fuel combustion in the United States, East Asia and Europe were transported to Greenland. Even though summertime weather conditions facilitate aerosol wash-out, 48 long-range transport pollution plumes were identified. Transport out of eastern North America happened in various weather patterns including low-level transport below 700 hPa reaching southern Greenland, mid-tropospheric transport, and uplift in WCBs. Although WCB events are associated with precipitation, aerosol was not necessarily removed completely as observed during the flight on 8 July. Emissions from Eurasia were transported in the middle and upper troposphere where aerosol scavenging is weaker and thus particle lifetimes increase. Transport times varied from 3 to 16 days whereas emissions from NA arrived roughly within one week and from Siberia/Asia within two weeks. A particle lifetime in the range between 7 to 11 days was calculated.

Depending on the type of emission, a distinct particle chemical composition is expected. AMS measurements confirm previous studies (Heald et al., 2008) and results from ARCTAS and ARCPAC campaigns (Singh et al., 2010; Shinozuka et al., 2010; Brock et al., 2010) by determining an enhancement of the particulate sulphate mass fraction with increasing influence from anthropogenic and Asian emissions of up to 0.37 compared to 0.22 for aged "pure" BB plumes (see Fig. 11a). The organic carbon fraction in aerosol increases from 71 % for non-plume concentrations to 85 % during strong pollution episodes implying that long-range pollution transport contributes significantly to the mass of organic carbon over Greenland. The photochemical age of organic aerosol, determined as O:C ratio, was found to oscillate

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

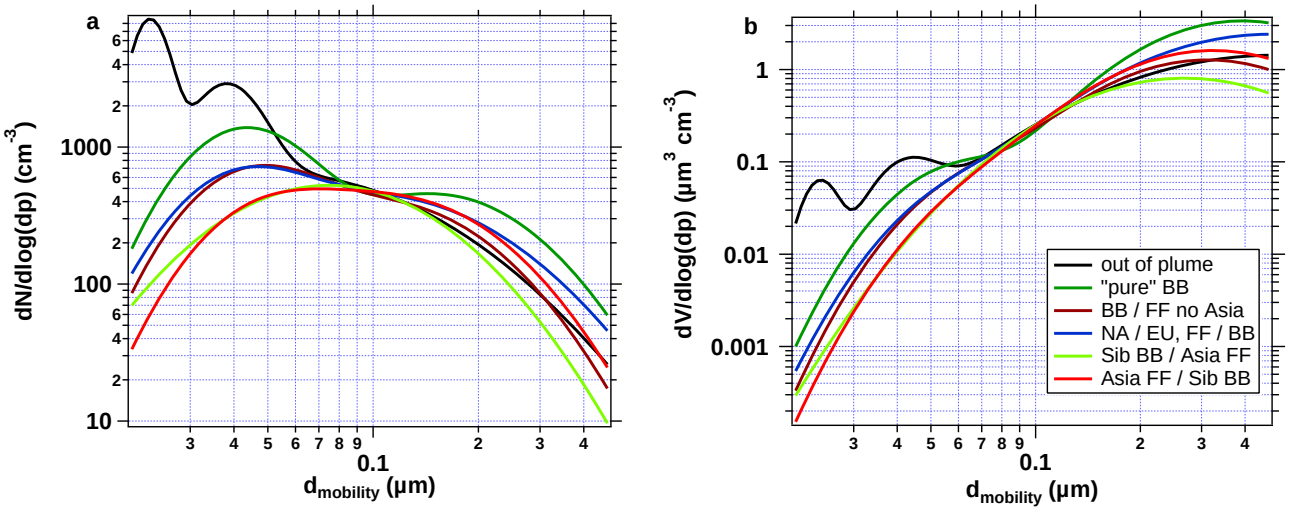


Fig. 13. Lognormal fits for SMPS number **(a)** and volume **(b)** size distributions for all five plume categories and all non-plume periods.

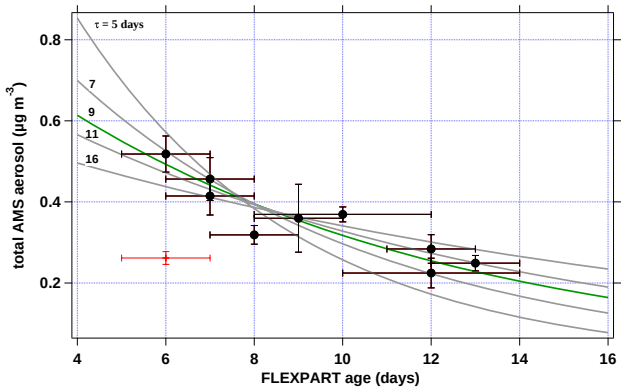


Fig. 14. Lifetime estimation of accumulation mode non-refractory aerosol originating from North American fossil fuel combustion and biomass burning: the horizontal bars represent the standard deviation of the average FLEXPART plume age, the vertical bars the standard deviation within the AMS data of the specific plume. The green line denotes an exponential fit with a τ between 7 and 11 days. The grey lines represent fits to the data with lifetimes as found in other Arctic aerosol studies (Paris et al., 2009; Koch and Hansen, 2005; Farina et al., 2010). The red cross illustrates an outlier.

around 1.0. This means consequently that the ageing process during the long transport times in the free and upper troposphere produces a uniform low-volatility oxygenated organic aerosol despite different emission source types and regions. Snow sample analysis of organic carbon at Summit, Greenland, confirms the high state of oxygenation of long-range transport aerosol. In general, during the POLARCAT summer campaign, submicron non-refractory aerosol mass ($0.5\,\mu g\,m^{-3}$) in the free troposphere did not differ substantially from concentrations over Central and Western Europe, showing that even in summer when aerosol scavenging during long-range transport is expected the Arctic atmosphere is strongly perturbed.

The calculation of number size distributions for each individual plume category showed that "pure" BB aerosol has a dominant contribution from Aitken mode particles.

These results give a valuable insight into the particle chemical composition of the summertime Greenland troposphere. However various questions remain unanswered. Aircraft measurements can only provide very limited data in space and time. Therefore, the detected pollution plumes are highly selective and mass loadings depend on where within a plume they were recorded. Additionally, the composition of advected pollution is highly variable from year to year as biomass burning regions and intensities change annually. Thus, it is difficult to estimate whether Greenland is impacted rather by FF or BB emissions in summer. Furthermore, the distribution of source regions depends strongly on meteorological conditions which influence the transport pathways, and thus arrival altitude, and the precipitation events. Another aspect which was not considered in this work is the question if, where, and how the observed particles will enter and/or leave the Arctic. While it is likely that the measured low-level pollution in clouds on 8 July precipitated in southern Greenland, the fate of upper tropospheric pollution is unknown. Therefore, airborne measurements should be linked with surface atmospheric measurements and used to evaluate modelling studies.

Acknowledgements. We acknowledge funding by the German Research Foundation (DFG) through the SPP 1294, by the State-"Exzellenzcluster Geocycles" of Rheinland-Pfalz, and by the Max Planck Society.

POLARCAT-France gratefully acknowledges funding from the following French research agencies – ANR, CNES, CNRS-INSU, IPEV and EUFAR. French researchers also acknowledge financial

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

support from the CNRS-INSU CLIMSLIP project. NILU researchers were supported by the Norwegian Research Council in the framework of POLARCAT-Norway.

Special thanks go to the SAFIRE team together with DT-INSU and to Marco Brands, Thomas Böttger, Wilhelm Schneider, and Sören Zorn for technical support before and during the campaign. The authors also would like to thank their colleagues Andreas Minikin and Bernadett Weinzierl from DLR for fruitful discussions.

The service charges for this open access publication have been covered by the Max Planck Society.

Edited by: P. Monks

References

Aiken, A. C., Decarlo, P. F., Kroll, J. H., Worsnop, D. R., Huffman, J. A., Docherty, K. S., Ulbrich, I. M., Mohr, C., Kimmel, J. R., Sueper, D., Sun, Y., Zhang, Q., Trimborn, A., Northway, M., Ziemann, P. J., Canagaratna, M. R., Onasch, T. B., Alfarra, M. R., Prevot, A. S. H., Dommen, J., Duplissy, J., Metzger, A., Baltensperger, U., and Jimenez, J. L.: O/C and OM/OC ratios of primary, secondary, and ambient organic aerosols with high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometry, Environ. Sci. Technol., 42, 4478–4485, doi:10.1021/es703009q, 2008.

Allan, J. D., Jimenez, J. L., Williams, P. I., Alfarra, M. R., Bower, K. N., Jayne, J. T., Coe, H., and Worsnop, D. R.: Quantitative sampling using an Aerodyne aerosol mass spectrometer. 1. Techniques of data interpretation and error analysis, J. Geophys. Res., 108, 4090, doi:10.1029/2002jd002358, 2003.

Allan, J. D., Bower, K. N., Coe, H., Boudries, H., Jayne, J. T., Canagaratna, M. R., Millet, D. B., Goldstein, A. H., Quinn, P. K., Weber, R. J., and Worsnop, D. R.: Submicron aerosol composition at Trinidad Head, California, during ITCT 2K2: Its relationship with gas phase volatile organic carbon and assessment of instrument performance, J. Geophys. Res., 109, D23s24, doi:10.1029/2003jd004208, 2004a.

Allan, J. D., Delia, A. E., Coe, H., Bower, K. N., Alfarra, M. R., Jimenez, J. L., Middlebrook, A. M., Drewnick, F., Onasch, T. B., Canagaratna, M. R., Jayne, J. T., and Worsnopf, D. R.: A generalised method for the extraction of chemically resolved mass spectra from aerodyne aerosol mass spectrometer data, J. Aerosol. Sci., 35, 909–922, doi:10.1016/j.jaerosci.2004.02.007, 2004b.

Alfarra, M. R., Prevot, A. S. H., Szidat, S., Sandradewi, J., Weimer, S., Lanz, V. A., Schreiber, D., Mohr, M., and Baltensperger, U.: Identification of the Mass Spectral Signature of Organic Aerosols from Wood Burning Emissions, Environ. Sci. Technol., 41, 5770–5777, 2007.

AMAP Assessment 2006: Acidifying pollutants, arctic haze, and acidification in the Arctic, Arctic Monitoring and Assessment Programm (AMAP), Oslo, Norway, 2006.

Ancellet, G. and Ravetta, F.: On the usefulness of an airborne lidar for O-3 layer analysis in the free troposphere and the planetary boundary layer, J. Environ. Monit., 5, 47–56, doi:10.1039/b205727a, 2003.

Ancellet, G., Leclair de Bellevue, J., Mari, C., Nedelec, P., Kukui, A., Borbon, A., and Perros, P.: Effects of regional-scale and convective transports on tropospheric ozone chemistry revealed by aircraft observations during the wet season of the AMMA campaign, Atmos. Chem. Phys., 9, 383–411, doi:10.5194/acp-9-383-2009, 2009.

Andreae, M. O. and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, Global Biogeochem. Cy., 15, 955–966, 2001.

Bahreini, R., Dunlea, E. J., Matthew, B. M., Simons, C., Docherty, K. S., DeCarlo, P. F., Jimenez, J. L., Brock, C. A., and Middlebrook, A. M.: Design and operation of a pressure-controlled inlet for airborne sampling with an aerodynamic aerosol lens, Aerosol Sci. Technol., 42, 465–471, doi:10.1080/02786820802178514, 2008.

Bond, T. C., Anderson, T. L., and Campbell, D.: Calibration and intercomparison of filter-based measurements of visible light absorption by aerosols, Aerosol Sci. Technol., 30, 582–600, 1999.

Bond, T. C., Streets, D. G., Yarber, K. F., Nelson, S. M., Woo, J. H., and Klimont, Z.: A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, J. Geophys. Res., 109, D14203, doi:10.1029/2003jd003697, 2004.

Brock, C. A., Radke, L. F., Lyons, J. H., and Hobbs, P. V.: Arctic hazes in the summer over Greenland and the North-American Arctic. I. Incidence and origins, J. Atmos. Chem., 9, 129–148, 1989.

Brock, C. A., Radke, L. F., and Hobbs, P. V.: Sulfur in particles in the arctic hazes derived from airborne in situ and lidar measurements, J. Geophys. Res., 95, 22369–22387, 1990.

Brock, C. A., Cozic, J., Bahreini, R., Froyd, K. D., Middlebrook, A. M., McComiskey, A., Brioude, J., Cooper, O. R., Stohl, A., Aikin, K. C., de Gouw, J. A., Fahey, D. W., Ferrare, R. A., Gao, R.-S., Gore, W., Holloway, J. S., Hbler, G., Jefferson, A., Lack, D. A., Lance, S., Moore, R. H., Murphy, D. M., Nenes, A., Novelli, P. C., Nowak, J. B., Ogren, J. A., Peischl, J., Pierce, R. B., Pilewskie, P., Quinn, P. K., Ryerson, T. B., Schmidt, K. S., Schwarz, J. P., Sodemann, H., Spackman, J. R., Stark, H., Thomson, D. S., Thornberry, T., Veres, P., Watts, L. A., Warneke, C., and Wollny, A. G.: Characteristics, sources, and transport of aerosols measured in spring 2008 during the aerosol, radiation, and cloud processes affecting Arctic Climate (ARCPAC) Project, Atmos. Chem. Phys., 11, 2423–2453, doi:10.5194/acp-11-2423-2011, 2011.

Browning, K. A. and G. A. Monk, A simple model for the synoptic analysis of cold fronts, Q. J. Roy. Meteorol. Soc., 108, 435–452, 1982.

Buck, A. L.: Variable-path Lyman-Alpha hygrometer and its operating characteristics, B. Am. Meteorol. Soc., 57, 1113–1118, 1976.

Canagaratna, M. R., Jayne, J. T., Jimenez, J. L., Allan, J. D., Alfarra, M. R., Zhang, Q., Onasch, T. B., Drewnick, F., Coe, H., Middlebrook, A., Delia, A., Williams, L. R., Trimborn, A. M., Northway, M. J., DeCarlo, P. F., Kolb, C. E., Davidovits, P., and Worsnop, D. R.: Chemical and microphysical characterization of ambient aerosols with the aerodyne aerosol mass spectrometer, Mass Spectrom. Rev., 26, 185–222, doi:10.1002/mas.20115, 2007.

Cooper, O. R., Moody, J. L., Parrish, D. D., Trainer, M., Ryerson, T. B., Holloway, J. S., Hubler, G., Fehsenfeld, F. C., and Evans, M. J.: Trace gas composition of midlatitude cyclones over the western North Atlantic Ocean: A conceptual model, J. Geophys.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Res., 107, 4056, doi:10.1029/2001jd000901, 2002.

Crosier, J., Allan, J. D., Coe, H., Bower, K. N., Formenti, P., and Williams, P. I.: Chemical composition of summertime aerosol in the Po Valley (Italy), northern Adriatic and Black Sea, Q. J. Roy. Meteorol. Soc., 133, 61–75, doi:10.1002/qj.88, 2007.

DeCarlo, P. F., Slowik, J. G., Worsnop, D. R., Davidovits, P., and Jimenez, J. L.: Particle morphology and density characterization by combined mobility and aerodynamic diameter measurements. Part 1: Theory, Aerosol Sci. Technol., 38, 1185–1205, doi:10.1080/027868290903907, 2004.

de Villiers, R. A., Ancellet, G., Pelon, J., Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Gayet, J. F., and Law, K. S.: Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic, Atmos. Chem. Phys., 10, 5011–5030, doi:10.5194/acp-10-5011-2010, 2010.

Dickerson, R. R., Li, C., Li, Z., Marufu, L. T., Stehr, J. W., McClure, B., Krotkov, N., Chen, H., Wang, P., Xia, X., Ban, X., Gong, F., Yuan, J., and Yang, J.: Aircraft observations of dust and pollutants over northeast China: Insight into the meteorological mechanisms of transport, J. Geophys. Res., 112, D24S90, doi:D24S90-21-D24S90-D24S90-13, 2007.

Dinar, E., Mentel, T. F., and Rudich, Y.: The density of humic acids and humic like substances (HULIS) from fresh and aged wood burning and pollution aerosol particles, Atmos. Chem. Phys., 6, 5213–5224, doi:10.5194/acp-6-5213-2006, 2006.

Donahue, N. M., Robinson, A. L., and Pandis, S. N.: Atmospheric organic particulate matter: From smoke to secondary organic aerosol, Atmos. Environ., 43, 94–106, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.09.055, 2009.

Dreiling, V. and Friederich, B.: Spatial distribution of the Arctic haze aerosol size distribution in western and eastern Arctic, Atmos. Res., 44, 133–152, 1997.

Drewnick, F., Hings, S. S., DeCarlo, P., Jayne, J. T., Gonin, M., Fuhrer, K., Weimer, S., Jimenez, J. L., Demerjian, K. L., Borrmann, S., and Worsnop, D. R.: A new time-of-flight aerosol mass spectrometer (Tof-AMS) – Instrument description and first field deployment, Aerosol Sci. Technol., 39, 637–658, doi:10.1080/02786820500182040, 2005.

Drewnick, F., Hings, S. S., Alfarra, M. R., Prevot, A. S. H., and Borrmann, S.: Aerosol quantification with the Aerodyne Aerosol Mass Spectrometer: detection limits and ionizer background effects, Atmos. Meas. Tech., 2, 33–46, doi:10.5194/amt-2-33-2009, 2009.

Engvall, A.-C., Krejci, R., Ström, J., Treffeisen, R., Scheele, R., Hermansen, O., and Paatero, J.: Changes in aerosol properties during spring-summer period in the Arctic troposphere, Atmos. Chem. Phys., 8, 445–462, doi:10.5194/acp-8-445-2008, 2008.

Farina, S. C., Adams, P. J., and Pandis, S. N.: Modeling global secondary organic aerosol formation and processing with the volatility basis set: Implications for anthropogenic secondary organic aerosol, J. Geophys. Res., 115, D09202, doi:10.1029/2009jd013046, 2010.

Febvre, G., Gayet, J.-F., Minikin, A., Schlager, H., Shcherbakov, V., Jourdan, O., Busen, R., Fiebig, M., Kärcher, B., and Schumann, U.: On optical and microphysical characteristics of contrails and cirrus, J. Geophys. Res., 114, D02204, doi:10.1029/2008JD010184, 2009.

Flannigan, M. D., Krawchuk, M. A., de Groot, W. J., Wotton, B. M., and Gowman, L. M.: Implications of changing climate for global wildland fire, Int. J. Wildland Fire, 18, 483–507, doi:10.1071/wf08187, 2009.

Formenti, P., Elbert, W., Maenhaut, W., Haywood, J., Osborne, S., and Andreae, M. O.: Inorganic and carbonaceous aerosols during the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000) experiment: Chemical characteristics, physical properties, and emission data for smoke from African biomass burning, J. Geophys. Res., 108, 8488, doi:10.1029/2002jd002408, 2003.

Franke, H., Maser, R., Vinnichenko, N., Dreiling, V., Jaenicke, R., Jaeschke, W., and Leiterer, U.: Adaptation of microphysical and chemical instrumentation to the airborne measuring platform Iljushin II-18 'Cyclone' and flight regime planning during the Arctic haze investigation 1993–95, Atmos. Res., 44, 3–16, 1997.

Frost, G. J., McKeen, S. A., Trainer, M., Ryerson, T. B., Neuman, J. A., Roberts, J. M., Swanson, A., Holloway, J. S., Sueper, D. T., Fortin, T., Parrish, D. D., Fehsenfeld, F. C., Flocke, F., Peckham, S. E., Grell, G. A., Kowal, D., Cartwright, J., Auerbach, N., and Habermann, T.: Effects of changing power plant NOx emissions on ozone in the eastern United States: Proof of concept, J. Geophys. Res., 111, D12306, doi:10.1029/2005jd006354, 2006.

Gayet, J. F., Shcherbakov, V., Mannstein, H., Minikin, A., Schumann, U., Strom, J., Petzold, A., Ovarlez, J., and Immler, F.: Microphysical and optical properties of midlatitude cirrus clouds observed in the southern hemisphere during INCA, Q. J. Roy. Meteorol. Soc., 132, 2719–2748, doi:10.1256/qj.05.162, 2006.

Greenaway, K. R.: Experiences with Arctic flying weather, Royal Meteorological Society Canadian Branch (30 November), Toronto, Ontario, 1950.

Hagler, G. S. W., Bergin, M. H., Smith, E. A., Dibb, J. E., Anderson, C., and Steig, E. J.: Particulate and water-soluble carbon measured in recent snow at Summit, Greenland, Geophys. Res. Lett., 34, L16505, doi:10.1029/2007gl030110, 2007.

Hallquist, M., Wenger, J. C., Baltensperger, U., Rudich, Y., Simpson, D., Claeys, M., Dommen, J., Donahue, N. M., George, C., Goldstein, A. H., Hamilton, J. F., Herrmann, H., Hoffmann, T., Iinuma, Y., Jang, M., Jenkin, M. E., Jimenez, J. L., Kiendler-Scharr, A., Maenhaut, W., McFiggans, G., Mentel, Th. F., Monod, A., Prévôt, A. S. H., Seinfeld, J. H., Surratt, J. D., Szmigielski, R., and Wildt, J.: The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues, Atmos. Chem. Phys., 9, 5155–5236, doi:10.5194/acp-9-5155-2009, 2009.

Heald, C. L., Goldstein, A. H., Allan, J. D., Aiken, A. C., Apel, E., Atlas, E. L., Baker, A. K., Bates, T. S., Beyersdorf, A. J., Blake, D. R., Campos, T., Coe, H., Crounse, J. D., DeCarlo, P. F., de Gouw, J. A., Dunlea, E. J., Flocke, F. M., Fried, A., Goldan, P., Griffin, R. J., Herndon, S. C., Holloway, J. S., Holzinger, R., Jimenez, J. L., Junkermann, W., Kuster, W. C., Lewis, A. C., Meinardi, S., Millet, D. B., Onasch, T., Polidori, A., Quinn, P. K., Riemer, D. D., Roberts, J. M., Salcedo, D., Sive, B., Swanson, A. L., Talbot, R., Warneke, C., Weber, R. J., Weibring, P., Wennberg, P. O., Worsnop, D. R., Wittig, A. E., Zhang, R., Zheng, J., and Zheng, W.: Total observed organic carbon (TOOC) in the atmosphere: a synthesis of North American observations, Atmos. Chem. Phys., 8, 2007–2025, doi:10.5194/acp-8-2007-2008, 2008.

Hennigan, C. J., Sullivan, A. P., Collett, J. L., and Robinson, A. L.: Levoglucosan stability in biomass burning particles ex-

posed to hydroxyl radicals, Geophys. Res. Lett., 37, L09806, doi:10.1029/2010gl043088, 2010.

Hings, S. S., Walter, S., Schneider, J., Borrmann, S., and Drewnick, F.: Comparison of a quadrupole and a time-of-flight aerosol mass spectrometer during the Feldberg aerosol characterization experiment 2004, Aerosol Sci. Technol., 41, 679–691, doi:10.1080/02786820701408483, 2007.

Hirdman, D., Sodemann, H., Eckhardt, S., Burkhart, J. F., Jefferson, A., Mefford, T., Quinn, P. K., Sharma, S., Ström, J., and Stohl, A.: Source identification of short-lived air pollutants in the Arctic using statistical analysis of measurement data and particle dispersion model output, Atmos. Chem. Phys., 10, 669–693, doi:10.5194/acp-10-669-2010, 2010.

Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B., and Pfister, L.: Stratosphere-troposphere exchange, Rev. Geophys., 33, 403–439, 1995.

Hudson, P. K., Murphy, D. M., Cziczo, D. J., Thomson, D. S., de Gouw, J. A., Warneke, C., Holloway, J., Jost, J. R., and Hubler, G.: Biomass-burning particle measurements: Characteristic composition and chemical processing, J. Geosphys. Res., 109, D23s27 doi:10.1029/2003jd004398, 2004.

Huffman, J. A., Jayne, J. T., Drewnick, F., Aiken, A. C., Onasch, T., Worsnop, D. R., and Jimenez, J. L.: Design, modeling, optimization, and experimental tests of a particle beam width probe for the aerodyne aerosol mass spectrometer, Aerosol Sci. Technol., 39, 1143–1163, doi:10.1080/02786820500423782, 2005.

IPCC: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. Cambridge University Press, New York, USA, available at: http://www.ipcc.ch (last access: 1 March 2011), 2007.

Jacob, D. J., Crawford, J. H., Maring, H., Clarke, A. D., Dibb, J. E., Emmons, L. K., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., Russell, P. B., Singh, H. B., Thompson, A. M., Shaw, G. E., McCauley, E., Pederson, J. R., and Fisher, J. A.: The Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS) mission: design, execution, and first results, Atmos. Chem. Phys., 10, 5191–5212, doi:10.5194/acp-10-5191-2010, 2010.

Jaenicke, R.: Atmospheric aerosols and global climate, J. Aerosol. Sci., 11, 577–588, 1980.

Jimenez, J. L., Canagaratna, M. R., Donahue, N. M., Prevot, A. S. H., Zhang, Q., Kroll, J. H., DeCarlo, P. F., Allan, J. D., Coe, H., Ng, N. L., Aiken, A. C., Docherty, K. S., Ulbrich, I. M., Grieshop, A. P., Robinson, A. L., Duplissy, J., Smith, J. D., Wilson, K. R., Lanz, V. A., Hueglin, C., Sun, Y. L., Tian, J., Laaksonen, A., Raatikainen, T., Rautiainen, J., Vaattovaara, P., Ehn, M., Kulmala, M., Tomlinson, J. M., Collins, D. R., Cubison, M. J., Dunlea, E. J., Huffman, J. A., Onasch, T. B., Alfarra, M. R., Williams, P. I., Bower, K., Kondo, Y., Schneider, J., Drewnick, F., Borrmann, S., Weimer, S., Demerjian, K., Salcedo, D., Cottrell, L., Griffin, R., Takami, A., Miyoshi, T., Hatakeyama, S., Shimono, A., Sun, J. Y., Zhang, Y. M., Dzepina, K., Kimmel, J. R., Sueper, D., Jayne, J. T., Herndon, S. C., Trimborn, A. M., Williams, L. R., Wood, E. C., Middlebrook, A. M., Kolb, C. E., Baltensperger, U., and Worsnop, D. R.: Evolution of organic aerosols in the atmosphere, Science, 326, 1525–1529, doi:10.1126/science.1180353, 2009.

Koch, D. and Hansen, J.: Distant origins of Arctic black carbon: A Goddard Institute for Space Studies ModelE experiment, J. Geophys. Res., 110, D04204, doi:10.1029/2004jd005296, 2005.

Lavoue, D., Liousse, C., Cachier, H., Stocks, B. J., and Goldammer, J. G.: Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes, J. Geophys. Res., 105, 26871–26890, 2000.

Law, K. S. and Stohl, A.: Arctic air pollution: Origins and impacts, Science, 315, 1537–1540, doi:10.1126/science.1137695, 2007.

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, 2002.

Li, C., Krotkov, N. A., Dickerson, R. R., Li, Z. Q., Yang, K., and Chin, M.: Transport and evolution of a pollution plume from northern China: A satellite-based case study, J. Geophys. Res., 115, 11, D00k03, doi:10.1029/2009jd012245, 2010.

Lu, Z., Streets, D. G., Zhang, Q., Wang, S., Carmichael, G. R., Cheng, Y. F., Wei, C., Chin, M., Diehl, T., and Tan, Q.: Sulfur dioxide emissions in China and sulfur trends in East Asia since 2000, Atmos. Chem. Phys., 10, 6311–6331, doi:10.5194/acp-10-6311-2010, 2010.

Matsui, H., Kondo, Y., Moteki, N., Takegawa, N., Sahu, L. K., Zhao, Y., Fuelberg, H. E., Sessions, W. R., Diskin, G., Blake, D. R., Wisthaler, A., and Koike, M.: Seasonal variation of the transport of black carbon aerosol from the Asian continent to the Arctic during the Arctas aircraft campaign, J. Geophys. Res., 116, D05202, doi:05201D.01029/02010JD015067, 2011.

Matthew, B. M., Middlebrook, A. M., and Onasch, T. B.: Collection efficiencies in an aerodyne aerosol mass spectrometer as a function of particle phase for laboratory generated aerosols, Aerosol Sci. Technol., 42, 884–898, doi:10.1080/02786820802356797, 2008.

McConnell, J. R., Edwards, R., Kok, G. L., Flanner, M. G., Zender, C. S., Saltzman, E. S., Banta, J. R., Pasteris, D. R., Carter, M. M., and Kahl, J. D. W.: 20th-century industrial black carbon emissions altered Arctic climate forcing, Science, 317, 1381–1384, doi:10.1126/science.1144856, 2007.

McNaughton, C. S., Clarke, A. D., Howell, S. G., Pinkerton, M., Anderson, B., Thornhill, L., Hudgins, C., Winstead, E., Dibb, J. E., Scheuer, E., and Maring, H.: Results from the DC-8 Inlet Characterization Experiment (DICE): Airborne versus surface sampling of mineral dust and sea salt aerosols, Aerosol Sci. Technol., 41, 136–159, doi:10.1080/02786820601118406, 2007.

Methven, J.: Offline trajectories: Calculations and accuracy, Dept. of Meteorolo., Univ. of Reading, UK, 1997.

Methven, J., Arnold, S. R., O'Connor, F. M., Barjat, H., Dewey, K., Kent, J., and Brough, N.: Estimating photochemically produced ozone throughout a domain using flight data and a lagrangian model, J. Geophys. Res., 108, 4271, doi:10.1029/2002jd002955, 2003.

Mitchell, M.: Visual range in the polar regions with particular reference to the Alaskan Arctic, J. Atmos. Terrestrial Phys., Special Suppl., 17, 195–211, 1956.

Morgan, W. T., Allan, J. D., Bower, K. N., Capes, G., Crosier, J., Williams, P. I., and Coe, H.: Vertical distribution of sub-micron

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

aerosol chemical composition from North-Western Europe and the North-East Atlantic, Atmos. Chem. Phys., 9, 5389–5401, doi:10.5194/acp-9-5389-2009, 2009.

Nedelec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoeur, F., Cayez, G., and Marizy, C.: An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme, Atmos. Chem. Phys., 3, 1551–1564, doi:10.5194/acp-3-1551-2003, 2003.

Neto, T. G. S., Carvalho, J. A., Veras, C. A. G., Alvarado, E. C., Gielow, R., Lincoln, E. N., Christian, T. J., Yokelson, R. J., and Santos, J. C.: Biomass consumption and CO_2, CO and main hydrocarbon gas emissions in an Amazonian forest clearing fire, Atmos. Environ., 43, 438–446, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.07.063, 2009.

Ng, N. L., Canagaratna, M. R., Zhang, Q., Jimenez, J. L., Tian, J., Ulbrich, I. M., Kroll, J. H., Docherty, K. S., Chhabra, P. S., Bahreini, R., Murphy, S. M., Seinfeld, J. H., Hildebrandt, L., Donahue, N. M., DeCarlo, P. F., Lanz, V. A., Prévôt, A. S. H., Dinar, E., Rudich, Y., and Worsnop, D. R.: Organic aerosol components observed in Northern Hemispheric datasets from Aerosol Mass Spectrometry, Atmos. Chem. Phys., 10, 4625–4641, doi:10.5194/acp-10-4625-2010, 2010.

Olivier, J. G. and Berdowski, J. J. M.: Global emissions sources and sinks, in: The climate system, edited by: Berdowski, J., Guicherit, R., and Heij, B. J., A. A. Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers, Lisse, The Netherlands, 33–78, 2001.

Paris, J.-D., Stohl, A., Nédélec, P., Arshinov, M. Yu., Panchenko, M. V., Shmargunov, V. P., Law, K. S., Belan, B. D., and Ciais, P.: Wildfire smoke in the Siberian Arctic in summer: source characterization and plume evolution from airborne measurements, Atmos. Chem. Phys., 9, 9315–9327, doi:10.5194/acp-9-9315-2009, 2009.

Park, R. J., Jacob, D. J., Palmer, P. I., Clarke, A. D., Weber, R. J., Zondlo, M. A., Eisele, F. L., Bandy, A. R., Thornton, D. C., Sachse, G. W., and Bond, T. C.: Export efficiency of black carbon aerosol in continental outflow: Global implications, J. Geophys. Res.-Atmos., 110, D11205, doi:10.1029/2004jd005432, 2005.

Petzold, A., Weinzierl, B., Huntrieser, H., Stohl, A., Real, E., Cozic, J., Fiebig, M., Hendricks, J., Lauer, A., Law, K., Roiger, A., Schlager, H., and Weingartner, E.: Perturbation of the European free troposphere aerosol by North American forest fire plumes during the ICARTT-ITOP experiment in summer 2004, Atmos. Chem. Phys., 7, 5105–5127, doi:10.5194/acp-7-5105-2007, 2007.

Quennehen, B., Schwarzenboeck, A., Schmale, J., Stohl, A., Jourdan, O., Ancellet, G., Crummeyrolle, S., and Law K. S.: North American transported pollution plume properties during the POLARCAT summer campaign in Greenland, to be submitted to Atmos. Chem. Phys. Discuss., 2011.

Quinn, P. K., Bates, T. S., Coffman, D., Onasch, T. B., Worsnop, D., Baynard, T., de Gouw, J. A., Goldan, P. D., Kuster, W. C., Williams, E., Roberts, J. M., Lerner, B., Stohl, A., Pettersson, A., and Lovejoy, E. R.: Impacts of sources and aging on submicrometer aerosol properties in the marine boundary layer across the Gulf of Maine, J. Geophys. Res., 111, D23s36, doi:10.1029/2006jd007582, 2006.

Quinn, P. K., Shaw, G., Andrews, E., Dutton, E. G., Ruoho-Airola, T., and Gong, S. L.: Arctic haze: Current trends and knowledge gaps, Tellus B, 59, 99–114, doi:10.1111/j.1600-0889.2006.00238.x, 2007.

Quinn, P. K., Bates, T. S., Baum, E., Doubleday, N., Fiore, A. M., Flanner, M., Fridlind, A., Garrett, T. J., Koch, D., Menon, S., Shindell, D., Stohl, A., and Warren, S. G.: Short-lived pollutants in the Arctic: their climate impact and possible mitigation strategies, Atmos. Chem. Phys., 8, 1723–1735, doi:10.5194/acp-8-1723-2008, 2008.

Rahn, K. A. and McCaffrey, R. J.: On the origin and transport of the winter Arctic aerosol, Ann. N. Y. Acad. Sci., 388, 486–503, 1980.

Rahn, K. A., Borys, R. D., and Shaw, G. E.: Asian source of Arctic haze bands, Nature, 268, 713–715, 1977.

Reid, J. S., Koppmann, R., Eck, T. F., and Eleuterio, D. P.: A review of biomass burning emissions part II: intensive physical properties of biomass burning particles, Atmos. Chem. Phys., 5, 799–825, doi:10.5194/acp-5-799-2005, 2005.

Reitz, P.: Aerosol mass spectrometry on cloud condensation nuclei and ice nuclei, PhD, Fachbereich Physik, Mathematik und Informatik, Johannes Gutenberg-Universität, Mainz, 2011.

Roiger, A., Schlager, H., Schäfler, A., Huntrieser, H., Scheibe, M., Aufmhoff, H., Cooper, O. R., Sodemann, H., Stohl, A., Burkhart, J., Lazzara, M., Schiller, C., Law, K. S., and Arnold, F.: In-situ observation of Asian pollution transported into the Arctic lowermost stratosphere, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 11, 16265–16310, doi:10.5194/acpd-11-16265-2011, 2011.

Russell, L. M., Hawkins, L. N., Frossard, A. A., Quinn, P. K., and Bates, T. S.: Carbohydrate-like composition of submicron atmospheric particles and their production from ocean bubble bursting, P. Natl. Acad. Sci. USA, 107, 6652–6657, doi:10.1073/pnas.0908905107, 2010.

Schmale, J., Schneider, J., Jurkat, T., Voigt, C., Kalesse, H., Rautenhaus, M., Lichtenstern, M., Schlager, H., Ancellet, G., Arnold, F., Gerding, M., Mattis, I., Wendisch, M., and Borrmann, S.: Aerosol layers from the 2008 eruptions of mount okmok and mount kasatochi: In situ upper troposphere and lower stratosphere measurements of sulfate and organics over europe, J. Geophys. Res., 115, D00L07, doi:10.1029/2009JD013628, 2010.

Schneider, J., Hings, S. S., Hock, B. N., Weimer, S., Borrmann, S., Fiebig, M., Petzold, A., Busen, R., and Karcher, B.: Aircraft-based operation of an aerosol mass spectrometer: Measurements of tropospheric aerosol composition, J. Aerosol. Sci., 37, 839–857, doi:10.1016/j.jaerosci.2005.07.002, 2006a.

Schneider, J., Weimer, S., Drewnick, F., Borrmann, S., Helas, G., Gwaze, P., Schmid, O., Andreae, M. O., and Kirchner, U.: Mass spectrometric analysis and aerodynamic properties of various types of combustion-related aerosol particles, Int. J. Mass Spectrom., 258, 37–49, doi:10.1016/j.ijms.2006.07.008, 2006b.

Schnell, R. C.: Arctic haze and the Arctic Gas and Aerosol Sampling Program (agasp), Geophys. Res. Lett., 11, 361–364, 1984.

Shaw, G. E.: The arctic haze phenomenon, B. Am. Meteorol. Soc., 76, 2403–2413, 1995.

Shindell, D. T., Chin, M., Dentener, F., Doherty, R. M., Faluvegi, G., Fiore, A. M., Hess, P., Koch, D. M., MacKenzie, I. A., Sanderson, M. G., Schultz, M. G., Schulz, M., Stevenson, D. S., Teich, H., Textor, C., Wild, O., Bergmann, D. J., Bey, I., Bian, H., Cuvelier, C., Duncan, B. N., Folberth, G., Horowitz, L. W., Jonson, J., Kaminski, J. W., Marmer, E., Park, R., Pringle,

K. J., Schroeder, S., Szopa, S., Takemura, T., Zeng, G., Keating, T. J., and Zuber, A.: A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic, Atmos. Chem. Phys., 8, 5353–5372, doi:10.5194/acp-8-5353-2008, 2008.

Shinozuka, Y., Redemann, J., Livingston, J. M., Russell, P. B., Clarke, A. D., Howell, S. G., Freitag, S., O'Neill, N. T., Reid, E. A., Johnson, R., Ramachandran, S., McNaughton, C. S., Kapustin, V. N., Brekhovskikh, V., Holben, B. N., and McArthur, L. J. B.: Airborne observation of aerosol optical depth during ARCTAS: vertical profiles, inter-comparison and fine-mode fraction, Atmos. Chem. Phys., 11, 3673–3688, doi:10.5194/acp-11-3673-2011, 2011.

Simoneit, B. R. T., Schauer, J. J., Nolte, C. G., Oros, D. R., Elias, V. O., Fraser, M. P., Rogge, W. F., and Cass, G. R.: Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles, Atmos. Environ., 33, 173–182, 1999.

Singh, H. B., Anderson, B. E., Brune, W. H., Cai, C., Cohen, R. C., Crawford, J. H., Cubison, M. J., Czech, E. P., Emmons, L., Fuelberg, H. E., Huey, G., Jacob, D. J., Jimenez, J. L., Kaduwela, A., Kondo, Y., Mao, J., Olson, J. R., Sachse, G. W., Vay, S. A., Weinheimer, A., Wennberg, P. O., and Wisthaler, A.: Pollution influences on atmospheric composition and chemistry at high northern latitudes: Boreal and california forest fire emissions, Atmos. Environ., 44, 4553–4563, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.08.026, 2010.

Sodemann, H., Pommier, M., Arnold, S. R., Monks, S. A., Stebel, K., Burkhart, J. F., Hair, J. W., Diskin, G. S., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Schlager, H., Blechschmidt, A.-M., Kristjánsson, J. E., and Stohl, A.: Episodes of cross-polar transport in the Arctic troposphere during July 2008 as seen from models, satellite, and aircraft observations, Atmos. Chem. Phys., 11, 3631–3651, doi:10.5194/acp-11-3631-2011, 2011.

Spackman, J. R., Schwarz, J. P., Gao, R. S., Watts, L. A., Thomson, D. S., Fahey, D. W., Holloway, J. S., de Gouw, J. A., Trainer, M., and Ryerson, T. B.: Empirical correlations between black carbon aerosol and carbon monoxide in the lower and middle troposphere, Geophys. Res. Lett., 35, L19816, doi:10.1029/2008gl035237, 2008.

Stocks, B. J., Mason, J. A., Todd, J. B., Bosch, E. M., Wotton, B. M., Amiro, B. D., Flannigan, M. D., Hirsch, G. K., Logan, K. A., Martell, D. L., and Skinner, W. R.: Large forest fires in Canada, 1959–1997, J. Geophys. Res., 108, 8149, doi:10.1029/2001JD000484, 2002.

Stohl, A.: A 1-year lagrangian "climatology" of airstreams in the Northern Hemisphere troposphere and lowermost stratosphere, J. Geophys. Res., 106, 7263–7279, 2001.

Stohl, A.: Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere, J. Geophys. Res., 111, 17, D11306, doi:10.1029/2005jd006888, 2006.

Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Spichtinger, N., Huntrieser, H., Heland, J., Schlager, H., Wilhelm, S., Arnold, F., and Cooper, O.: A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements, J. Geophys. Res., 108, 4370, doi:10.1029/2002jd002862, 2003.

Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, Atmos. Chem. Phys., 5, 2461–2474, doi:10.5194/acp-5-2461-2005, 2005.

Stohl, A., Andrews, E., Burkhart, J. F., Forster, C., Herber, A., Hoch, S. W., Kowal, D., Lunder, C., Mefford, T., Ogren, J. A., Sharma, S., Spichtinger, N., Stebel, K., Stone, R., Strom, J., Torseth, K., Wehrli, C., and Yttri, K. E.: Pan-arctic enhancements of light absorbing aerosol concentrations due to North American boreal forest fires during summer 2004, J. Geophys. Res., 111, D22214, doi:10.1029/2006jd007216, 2006.

Stohl, A., Berg, T., Burkhart, J. F., Fjæraa, A. M., Forster, C., Herber, A., Hov, Ø., Lunder, C., McMillan, W. W., Oltmans, S., Shiobara, M., Simpson, D., Solberg, S., Stebel, K., Ström, J., Tørseth, K., Treffeisen, R., Virkkunen, K., and Yttri, K. E.: Arctic smoke – record high air pollution levels in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe in spring 2006, Atmos. Chem. Phys., 7, 511–534, doi:10.5194/acp-7-511-2007, 2007.

Streets, D. G., Bond, T. C., Carmichael, G. R., Fernandes, S. D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S. M., Tsai, N. Y., Wang, M. Q., Woo, J. H., and Yarber, K. F.: An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, J. Geophys. Res., 108, 8809, doi:10.1029/2002jd003093, 2003.

Talbot, R. W., Vijgen, A. S., and Harriss, R. C.: Soluble species in the Arctic summer troposphere – acidic gases, aerosols, and precipitation, J. Geophys. Res., 97, 16531–16543, 1992.

van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and Arellano Jr., A. F.: Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, Atmos. Chem. Phys., 6, 3423–3441, doi:10.5194/acp-6-3423-2006, 2006.

Villani, P., Picard, D., Marchand, N., and Laj, P.: Design and validation of a 6-volatility tandem differential mobility analyzer (VTDMA), Aerosol Sci. Technol., 41, 898–906, doi:10.1080/02786820701534593, 2007.

Voigt, C., Schumann, U., Jurkat, T., Schäuble, D., Schlager, H., Petzold, A., Gayet, J.-F., Krämer, M., Schneider, J., Borrmann, S., Schmale, J., Jessberger, P., Hamburger, T., Lichtenstern, M., Scheibe, M., Gourbeyre, C., Meyer, J., Kübbeler, M., Frey, W., Kalesse, H., Butler, T., Lawrence, M. G., Holzäpfel, F., Arnold, F., Wendisch, M., Döpelheuer, A., Gottschaldt, K., Baumann, R., Zöger, M., Sölch, I., Rautenhaus, M., and Dörnbrack, A.: In-situ observations of young contrails – overview and selected results from the CONCERT campaign, Atmos. Chem. Phys., 10, 9039–9056, doi:10.5194/acp-10-9039-2010, 2010.

von Schneidemesser, E., Schauer, J. J., Hagler, G. S. W., and Bergin, M. H.: Concentrations and sources of carbonaceous aerosol in the atmosphere of Summit, Greenland, Atmos. Environ., 43, 4155–4162, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.05.043, 2009.

Warneke, C., Froyd, K. D., Brioude, J., Bahreini, R., Brock, C. A., Cozic, J., De Gouw, J. A., Fahey, D. W., Ferrare, R., Holloway, J. S., Middlebrook, A. M., Miller, L., Montzka, S., Schwarz, J. P., Sodemann, H., Spackman, J. R., and Stohl, A.: An important contribution to springtime Arctic aerosol from biomass burning in Russia, Geophys. Res. Lett., 37, L01801, doi:10.1029/2009GL041816, 2010.

Wernli, H. and Davies, H. C.: A lagrangian-based analysis of extratropical cyclones .1. The method and some applications, Q. J. Roy. Meteorol. Soc., 123, 467–489, 1997.

Wiedinmyer, C., Quayle, B., Geron, C., Belote, A., McKenzie, D., Zhang, X. Y., O'Neill, S., and Wynne, K. K.: Estimating emissions from fires in North America for air quality modeling, Atmos. Environ., 40, 3419–3432,

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

doi:10.1016/j.atmosenv.2006.02.010, 2006.

Yokelson, R. J., Crounse, J. D., DeCarlo, P. F., Karl, T., Urbanski, S., Atlas, E., Campos, T., Shinozuka, Y., Kapustin, V., Clarke, A. D., Weinheimer, A., Knapp, D. J., Montzka, D. D., Holloway, J., Weibring, P., Flocke, F., Zheng, W., Toohey, D., Wennberg, P. O., Wiedinmyer, C., Mauldin, L., Fried, A., Richter, D., Walega, J., Jimenez, J. L., Adachi, K., Buseck, P. R., Hall, S. R., and Shetter, R.: Emissions from biomass burning in the Yucatan, Atmos. Chem. Phys., 9, 5785–5812, doi:10.5194/acp-9-5785-2009, 2009.

Zhang, Q., Streets, D. G., Carmichael, G. R., He, K. B., Huo, H., Kannari, A., Klimont, Z., Park, I. S., Reddy, S., Fu, J. S., Chen, D., Duan, L., Lei, Y., Wang, L. T., and Yao, Z. L.: Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission, Atmos. Chem. Phys., 9, 5131–5153, doi:10.5194/acp-9-5131-2009, 2009.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Annexe C

Analyse des propriétés optiques des particules d'aérosols transportés depuis l'Asie durant la campagne printemps par Adam de Villiers et al.(2010)

Atmos. Chem. Phys., 10, 5011–5030, 2010
www.atmos-chem-phys.net/10/5011/2010/
doi:10.5194/acp-10-5011-2010
© Author(s) 2010. CC Attribution 3.0 License.

Atmospheric Chemistry and Physics

Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the Arctic

R. A. de Villiers[1], G. Ancellet[1], J. Pelon[1], B. Quennehen[2], A. Schwarzenboeck[2], J. F. Gayet[2], and K. S. Law[1]

[1]UPMC Univ. Paris 06; Université Versailles St-Quentin; CNRS/INSU, LATMOS-IPSL, France
[2]Laboratoire de Météorologie Physique, Université B. Pascal, CNRS, France

Received: 1 December 2009 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 23 December 2009
Revised: 13 April 2010 – Accepted: 12 May 2010 – Published: 1 June 2010

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Abstract. Airborne lidar and in-situ measurements of the aerosol properties were conducted between Svalbard Island and Scandinavia in April 2008. Evidence of aerosol transport from Europe and Asia is given. The analysis of the aerosol optical properties based on a multiwavelength lidar (355, 532, 1064 nm) including volume depolarization at 355 nm aims at distinguishing the role of the different aerosol sources (Siberian wild fires, Eastern Asia and European anthropogenic emissions). Combining, first aircraft measurements, second FLEXPART simulations with a calculation of the PBL air fraction originating from the three different mid-latitude source regions, and third level-2 CALIPSO data products (i.e. backscatter coefficient 532 nm,volume depolarization and color ratio between 1064 and 532 nm in aerosol layers) along the transport pathways, appears a valuable approach to identify the role of the different aerosol sources even after a transport time larger than 4 days. Optical depth of the aerosol layers are always rather small (<4%) while transported over the Arctic and ratio of the total attenuated backscatter (i.e. including molecular contribution) provide more stable result than conventional aerosol backscatter ratio. Above Asia, CALIPSO data indicate more depolarization (up to 15%) and largest color ratio (>0.5) for the northeastern Asia emissions (i.e. an expected mixture of Asian pollution and dust), while low depolarization together with smaller and quasi constant color ratio (≈0.3) are observed for the Siberian biomass burning emissions. A similar difference is visible between two layers observed by the aircraft above Scandinavia. The analysis of the time evolution of the aerosol optical properties revealed by CALIPSO between Asia and Scandinavia shows a gradual decrease of the aerosol backscatter, depolarization ratio and color ratio which suggests the removal of the largest particles in the accumulation mode. A similar study conducted for a European plume has shown aerosol optical properties intermediate between the two Asian sources with color ratio never exceeding 0.4 and moderate depolarization ratio being always less than 8%, i.e. less aerosol from the accumulation mode.

Correspondence to: G. Ancellet
(gerard.ancellet@upmc.fr)

1 Introduction

Radiative effects of aerosols can be quite different in the Arctic compared to elsewhere (Quinn et al., 2008). Weakly absorbing aerosol layers can be effective for heating the earth-atmosphere system considering the high surface albedo (Pueschel and Kinne, 1995). Frequent haze and cloud layers in the winter-spring period contributes also to surface heating by their infrared emission (Garrett and Zhao, 2006). Cloud formation processes are also very sensitive to the aerosol properties as Arctic clouds often contain low droplet concentrations. Shindell et al. (2008) have examined multi-model results to assess the aerosol and CO transport to the Arctic. They underline in their work the major role played by European and East Asian emissions especially in winter. There is also a very significant altitude dependence of the Arctic sensitivity to emission change. The relative influence of the different mid-latitude aerosol sources was already discussed by Rahn (1981) who concluded using meteorological considerations and observations about the relative importance of the Eurasian transport pathway. The review of Law and Stohl (2007) has also stressed the seasonal change of the air pollution transport into the Arctic with a faster winter circulation implying a stronger influence of the southerly sources.

Published by Copernicus Publications on behalf of the European Geosciences Union.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Because of the strong low level winter transport barrier, these emissions are found in the middle and upper troposphere.

Two measurement campaigns in the Arctic took place during the spring season: TOPSE (Atlas et al., 2003) over the North American sector and ASTAR over the European sector (Engvall et al., 2008). Over the European Arctic sector, the ASTAR results have shown low level of aerosol particles even in layers with elevated CO, suggesting aerosol removal in clouds. Occurrence of layers of non volatile and aged aerosol however increases with altitude in this region. The conditions during the ASTAR-2007 experiment were however exceptionally clean and other studies show events with large amount of polluted air masses in the lower troposphere, e.g. in spring 2006 (Stohl et al., 2007a).

Over the North American Arctic sector, little evidence was found for new particle formation (Weber et al., 2003) during TOPSE. The question of the relative influence on condensation nuclei of this low production rate and import from mid-latitudes could not be clearly assessed. Sulphate aerosol particles and more generally haze layers became more prevalent at higher altitudes across the winter to spring transition period during the TOPSE experiment (Scheuer et al., 2003). The aerosol lidar data during TOPSE (Browell et al., 2003) were mainly used to establish a link between the ozone and aerosol trends during the winter-spring transition, but some evidence was given of the role of the Eurasian sources on the observed aerosol optical properties.

Considering the crucial role of European and Asian emission suggested by the model studies and a significant altitude dependence of the occurrence of aerosol layers, new aircraft observations were conducted in 2008 at the same time over the European Arctic and North American sector to clarify questions raised during the previous campaigns (Jacob et al., 2009).

The purpose of this paper is to discuss how a backscatter lidar, in-situ aerosol and CO observations obtained over the European Arctic sector can be combined with a transport model and spaceborne measurements by the CALIOP lidar in order to get a better understanding of the aerosol source attribution in this region. This kind of methodology is also very useful for studying the aerosol evolution during the long range transport. Therefore, we focus on a given flight (11 April 2008), which is a very good example of the meteorological conditions encountered during the POLARCAT-France spring campaign. A short description of the POLARCAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) campaign is given in Sect. 2. A more detailed description of the campaign achievements is planned in a forthcoming publication by Law et al. (2010). Our paper focuses on lidar data as they are especially useful to describe the vertical layering of the atmosphere and to derive the optical properties of the aerosol layers. We will analyze the complementarity of optical aerosol characterization and transport modeling studies for making source attribution of Arctic tropospheric aerosol. A Lagrangian approach using aircraft observations and a model for the study of the long range transport is indeed a well established method for the analysis of observations at mid-latitudes (Fehsenfeld et al., 2006; Stohl et al., 2007b). But the main advantage of the POLARCAT campaign is to rely also on range resolved satellite observations by the CALIOP lidar providing aerosol layers optical properties at two different wavelength (532 nm, 1064 nm). Our airborne lidar data must be analyzed using aerosol layer products similar to the CALIOP observations (Liu et al., 2009). This work also contributes to check how meaningful the CALIOP operational aerosol layer products are.

2 Aircraft data and meteorological context

2.1 The POLARCAT spring campaign

In 2008, two aircraft field campaigns have been successfully performed: the first one in Kiruna (68° N, 20° E, North Sweden) in March–April and the second one in Kangerlussuaq (Greenland) in July. The ATR-42 was equipped with remote sensing instruments (lidar, radar), in-situ measurements of gas (O_3, CO) and aerosols (Aerosol Mass Spectrometers, optical counters, size distribution). Cloud properties were analysed using a Counterflow Virtual Impactor (CVI). The flight strategy was often designed to collect data nearby satellite observations (Aqua-Train, Metop/IASI).

During the spring campaign the objectives were (i) characterization of the pollution transport, (ii) analysis of the aerosol/cloud interaction, (iii) satellite validation, and (iv) studies of the artic haze. The latter could not be addressed as sampling of the air masses North of the Arctic front was not possible with the limited range of the ATR-42. A set of 12 scientific flights was performed from 30 March to 11 April 2008 following more or less a South-North axis near 20° E. A first contribution of POLARCAT was to combine aerosols and cloud droplets characterization to understand the aerosol/cloud interaction. The second major achievement was to identify numerous well defined aerosol layers in the free troposphere related to long range pollution transport. The third important result is the large number of flights conducted near the CALIPSO tracks. In the present paper, the second and third topics, will be addressed. Generally speaking this period was characterized by frequent northward transport of the European pollution and even the sampling of Asian pollution transported across the pole from 9 April to 11 April. To discuss the methodology developed in the paper, (i.e. a joint analysis of the aerosol airborne lidar data with CALIOP observations and FLEXPART modelling), we will focus on the results of 11 April 2008, because they include the two kinds of aerosol layers encountered during the POLARCAT spring campaign.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

2.2 Flight description and meteorological context

On April 11, 2008, the ATR-42 flew from Kiruna to the latitude circle at 73° N. The purpose of this flight was to sample two kinds of air masses: one transported across the North Pole to Northern Scandinavia and the other one exported from Europe by mid-latitude weather systems. The Lagrangian FLEXPART model, used in a forecast mode (Stohl et al., 2004), indeed showed a well defined CO plume at 72° N and suggested long range transport of mid-latitude emissions. The meteorological situation can be described using the wind field at 700 hPa and the vertical cross section of the specific humidity at 20° E along the flight pattern (Fig. 1). It shows that the aircraft measurements were collected between two frontal zones at 68° N and 74° N. The wind field indicates a weak southerly flow in the southern part of the domain but then a well defined northerly flow at latitudes higher than 70° N. Assuming advection along the isentropic surfaces in the free troposphere, the northerly flow also corresponds to a downward motion in the 3–6 km altitude range. We can also notice that, further east at 30° E, the flow at northern latitudes remains southerly and intensifies. The corresponding flow curvature is related to the positive vorticity anomaly located at 25° E south of Spitzbergen. A flight in the latitude band 68° − 72° N is then interesting as its southern section characterizes an upward and northward flow corresponding to a fast and direct export from Europe, while its northern section samples the downward branch of the Arctic outflow with aged mid-latitude emissions according to the FLEXPART forecast. The red solid line in Fig. 1 corresponds to the aircraft vertical profile. During the first part of the flight between 10:00 UT and 11:30 UT, the aircraft flew above 3 km before a descent to explore the Arctic planetary boundary layer (PBL) at 72.5° N. During the second part of the flight, i.e. the return to Kiruna, the aircraft stayed within the PBL for aerosol-cloud interaction studies and made a second exploration of the free troposphere for latitude below 70.5° N. So, in addition to lidar data below the aircraft, four complete vertical profiles of the aerosol concentrations are derived from the in-situ measurements between 0 and 5.5 km.

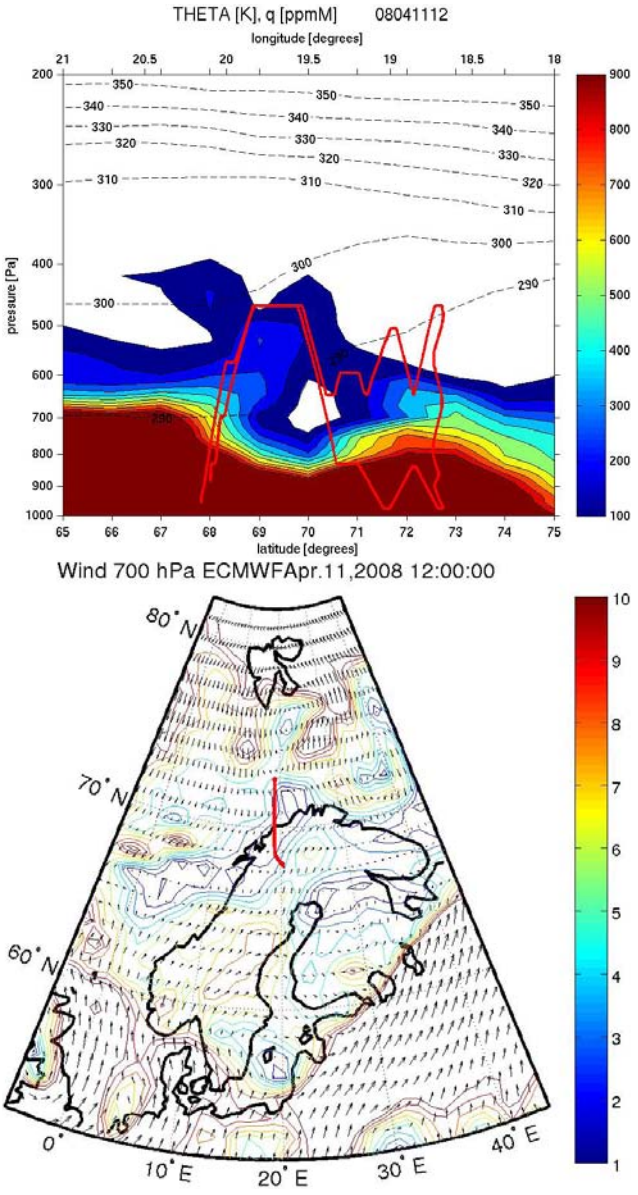


Fig. 1. Vertical cross section of ECMWF specific humidity showed by the color coded contour in ppmM, potential temperature in K showed by black dashed lines (top panel) and ECMWF wind field at 700 hPa (bottom panel) on 11/04/2008 at 12:00 UT. The colored lines show the windspeed in m s^{-1}. The flight vertical and horizontal pattern are showed in red line.

2.3 Lidar measurements

2.3.1 Description of the lidar system

The new version of the LEANDRE airborne backscatter lidar currently used for atmospheric dynamics studies (Flamant et al., 1996) and aerosol characterization (Pelon et al., 2002) is now providing measurements of total attenuated backscatter vertical profiles at three wavelengths (355, 532 and 1064 nm). The additional channel at 355 nm is now used to measure cross-polarization attenuated backscatter profiles. The main lidar characteristics are summarized in Table 1.

The 355-nm pseudo depolarization ratio, δ_{355}, i.e. the ratio of the the total perpendicular- to the total parallel-polarized backscatter coefficient (see Appendix A) is calculated in order to have a parameter comparable with the CALIOP volume depolarization ratio which is also based on the ratio of the total backscatter coefficient (Winker et al., 2009). The latter is however given at 532-nm and one must account for the spectral variation of this ratio from 355 nm to 532 nm

Table 1. Airborne Lidar data characteristics.

Operation Wavelengths (nm)	355 (Parallel and PP)	532	1064
Emitted energy (rep rate 20 Hz)	50 mJ	10 mJ	80 mJ
Laser Divergence (FWHM)	0.16 mrd	4 mrd	6.5 mrd
Spot size @5 km	0.8 m	20 m	33 m
Filter Width (FWHM)	5 nm	0.2 nm	1 nm
Max. Filter Transmission (%)	25	25	30
Telescope diameter	30 cm		
Time Sampling and vertical resolution	20 MHz or 7.5 m		
Vertical resolution used	30 m (4 points)		
Horizontal separation (shot-to-shot)	4–5 m (at ATR 42 cruise speed)		
Horizontal resolution used	∼450 m (100 shots)		

when comparing aircraft and satellite observations . For example, we can assume that the aerosol depolarization values weakly vary between 355 and 532 nm as explained in Appendix A (Freudenthaler et al., 2009; Sugimoto and Lee, 2006).

The pseudo depolarization ratio is calibrated on molecular scattering. From the values reported in Table 1, one can see that the interference filter width at 355 nm is much larger than the Cabannes line of the molecular backscattered signal and includes all Raman rotational lines due to nitrogen and oxygen which are the main scattering gases in the atmosphere (see Fig. 2 of Radlach et al. , 2008). Consequently, we will use the total Rayleigh+Raman depolarization value in clean air. We have adopted the value of $1.5\,10^{-2}$ (Hostetler et al., 2006). Due to noise in normalization and possible biases, the error on the derived values is estimated to be 20%.

For the same reason, i.e. a comparison with the CALIOP aerosol layer products, the pseudo color ratio which is the ratio of the 1064-nm to the 532-nm total backscatter coefficient, is calculated as it is a mean to identify aerosol type. Although this ratio is comparable to the CALIOP aerosol layer products (Winker et al., 2009), it will requires further correction for attenuation above the altitude of the aircraft as discussed later. The pseudo color ratio can be related to the aerosol color ratio more currently used for such a purpose (Cattrall et al., 2005). Details are given in Appendix A.

For the relative comparison between the aerosol layers properties seen by the airborne lidar and the comparison with the CALIOP observations, we will use the pseudo ratios.The main advantage of the pseudo ratios is to provide quasi-direct comparisons. As it accounts for molecular scattering, it leads to more stable values for weak aerosol layers and therefore relative comparisons are more robust. It however introduces a dependence with the scattering ratio (see Appendix A), which may in some cases lead to difficulties in interpretation. We thus have also given values of the standard parameters in the next sections for the strongest aerosol layers, which helps our analysis to be more comparable to previous studies.

2.3.2 Aerosol lidar data on 11 April 2008

A vertical cross section of the total attenuated backscatter in the infra-red (IR) channel is shown in Fig. 2. The areas with very large backscatter in the altitude range 1–2 km correspond to cloud layers developing at the top of the Planetary Boundary Layer (PBL). The cloud top reaches 3 km as the aircraft approaches the Arctic front. In the cloud free area, the layer from 0 to 1 km with larger aerosol backscatter values corresponds to the PBL. Well defined layers with enhanced aerosol backscatter are also detected in the free troposphere. The layer with a depth less than 1 km and with a meridian extent between 70° N and 72.5° N has the strongest relative signal compared to the background aerosol in the IR. This layer has also a slight vertical tilt, probably corresponding to the tilt of the isentropic surface. Another aerosol plume is also seen at latitudes less than 69.2° N, but with a much larger altitude range between 3.5 and 5.5 km and weaker backscatter at 1064 nm.

To further characterize these two layers, four 20-s averages of lidar profiles were analyzed: the first one corresponds to the thick layer at 68.9° N (named layer I hereafter), the second and third ones are through the longest and thin layer at 69.6° N and 71.7° N (layer II-A and II-B) and the last one at 70.6° N samples the cloud free marine PBL over the Arctic ocean. The attenuated backscatter ratio, $R(z)$, is defined in this paper as the Rayleigh normalized total volume backscatter, only attenuated by the aerosol extinction (see Appendix A). It was derived from vertical profiles averaged over the 4 selected regions, and applying a calibration factor to reference the scattering ratio to 1 in clean air. This factor was calculated using areas with mainly Rayleigh contribution to the IR lidar signal in the altitude range close to the aircraft (e.g. at 69.6° N above 5 km or at 70.3° N near 3 km). This was done independently for each wavelength and the consistency of the calibration factor is checked using different aerosol free areas whenever possible. This is the major source of error in the calculation of $R(z)$, and the uncertainty was assumed to be less than 10% at 532 nm and 355 nm, less than 20% at 1064 nm. The latter was derived

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

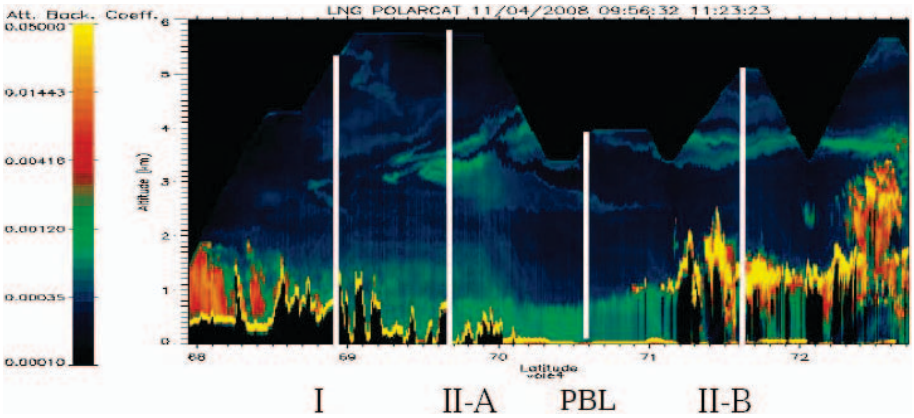


Fig. 2. Vertical cross section of the attenuated 1064 nm backscatter measured by downward looking lidar between 68° N and 72.5° N. The white vertical lines represent the four profiles, I, II-A, PBL, and II-B.

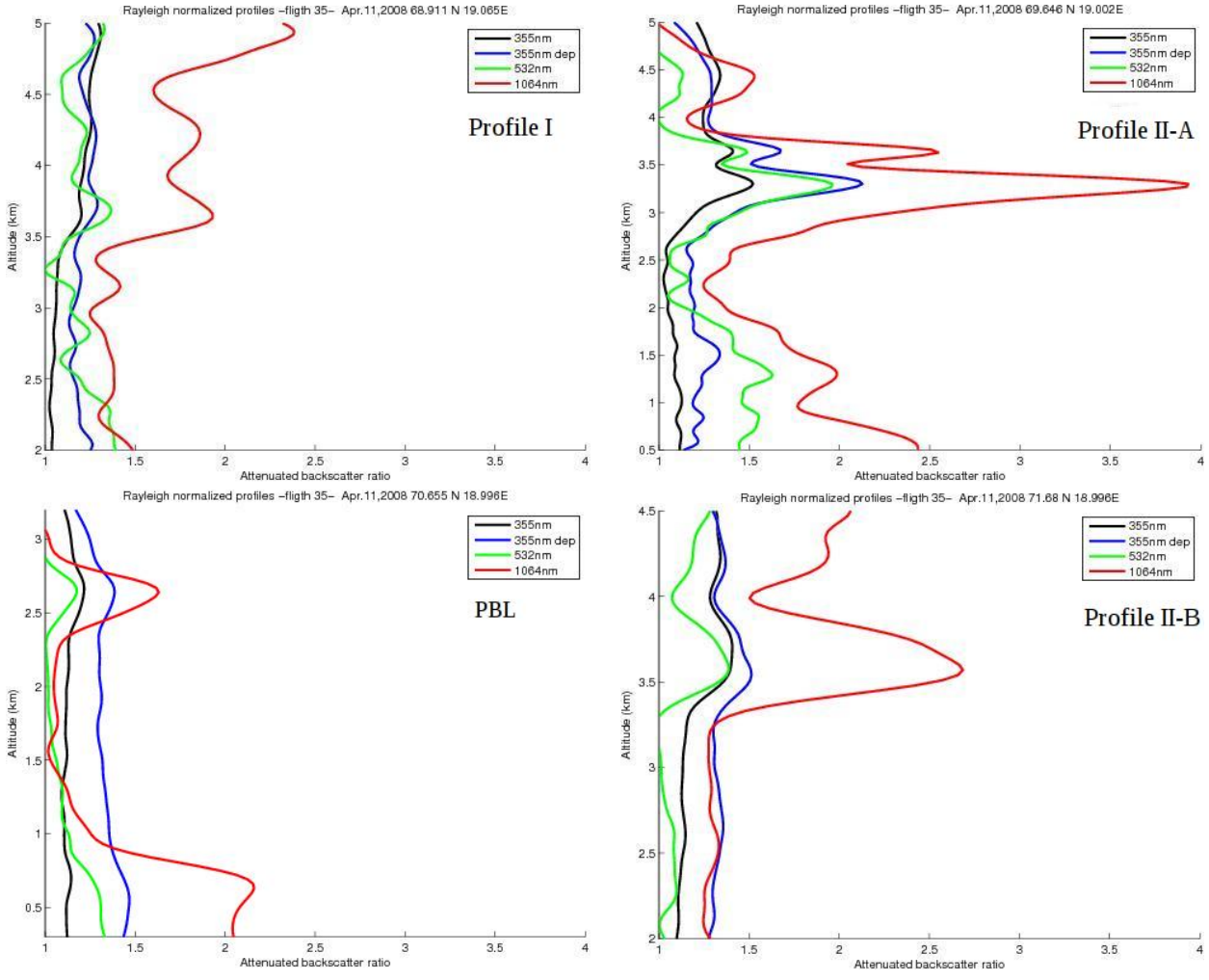


Fig. 3. Lidar vertical profiles of the 20-s averages of the attenuated backscatter ratio at 355, 355 depolarized, 532 and 1064 nm for the 4 lidar profiles listed in Table 2.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

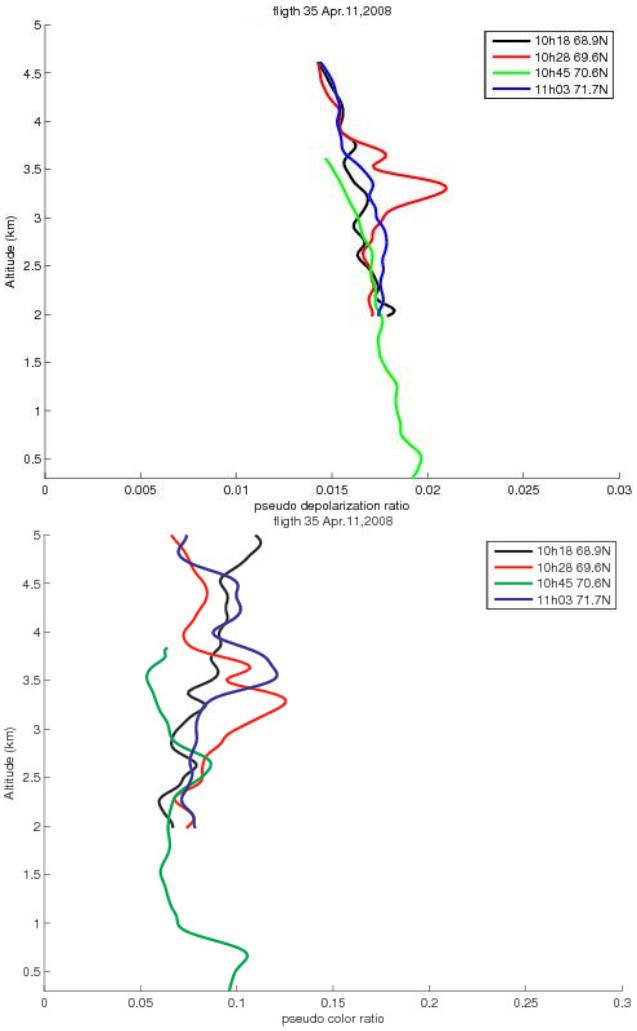


Fig. 4. Vertical profiles of the 355 nm pseudo depolarization ratio δ_{355} and the pseudo color ratio between 1064 and 532 nm for the 4 lidar profiles listed in Table 2 and showed by the white bar in Fig. 2

from a sensitivity study using different possible calibration factors and different flights.

The $R(z)$ vertical profiles for each wavelength and the 4 selected latitudes are given in Fig. 3. For the strongest aerosol layer at 69.6° N (layer II-A), the R increase is present in the three wavelength channels. The maximum R value at 532 nm is of the order of 2 and it corresponds to a 532-nm aerosol backscatter coefficient of the order of 10^{-3} km^{-1} sr^{-1} and therefore a small optical depth for layer II-A ($\approx$ 3-4 10^{-2}) assuming a 532-nm lidar ratio of the order of 70 sr (Cattrall et al., 2005), i.e. considering for example biomass burning aerosol. For the other layers (I and II-B), R is of the order of 2 at 1064 nm and between 1.3–1.4 at 532 nm. Layers with IR values of R less than 1.5 will not be considered in the following discussion.

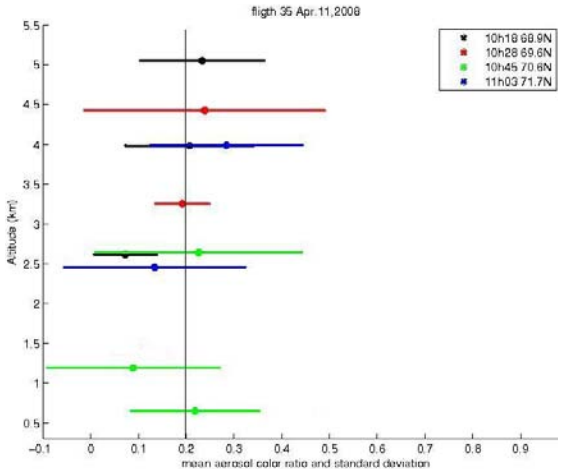


Fig. 5. Vertical profiles of the aerosol color ratio between 1064 and 532 nm and its standard deviation for the largest layers observed by the airborne lidar at 68.6° N 68.9° N 70.6° N and 71.7° N.

The pseudo depolarization ratios δ_{355} are shown for the four profiles (Fig. 4a) and it becomes significantly larger than the molecular depolarization only for the layer II-A at 69.6° N near 3.2 km where it is of the order of 0.021. Notice that it is also larger than the Rayleigh depolarization in the Arctic PBL (0.019). For the layer II-A, the aerosol depolarization ratio, corresponding to a δ_{355} of 0.021, is of the order of 3.3%, i.e. a value much smaller than the 532-nm aerosol depolarization ratio reported by Gobbi et al. (2003) for a mountain site in Italy. This would be consistent with a significant fraction of spherical aerosol even though we are able to detect some depolarization in layer II-A.

The pseudo color ratio plot for the four profiles shows also largest values (0.13±0.01) in layer II-A at 69.6° N (Fig. 4b). The smaller values (0.08±0.02) in the southern layer are consistent with the hypothesis of smaller aerosol size in layer I. The pseudo color ratio in layer II-B at 71.7° N near 3.5 km (0.11±0.02) is intermediate between the two previous cases. The main characteristics of the aerosol layers identified in Fig. 3 are listed in Table 2 with the expected uncertainty on the pseudo color and depolarization ratio. The aerosol color ratio, which is proportional to $(R_{1.06}-1)/(R_{0.53}-1)$, is also listed in Table 2 as it is generally directly linked to the aerosol backscatter wavelength dependency and reported in previous studies on tropospheric aerosols (see Appendix A for differences between the two ratios).

For all the layers,our values of color ratios are much smaller than the reported values of Cattrall et al. (2005). In their work, the color ratios are calculated using data from the AERONET photometer worldwide network at 550 and 1020 nm, and for larger aerosol optical depths (>0.1). Their values are ranging between 0.5 (polluted layers) to 1 (dust layers), whereas the Angstrom coefficient determined from

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Table 2. Aerosol layer characteristics from the airborne lidar observations.

Lidar layer	Layer latitude	Altitude range, km	β_{532} km^{-1} sr^{-1}	Aerosol color ratio	Pseudo color ratio	Aerosol δ_{355}	Pseudo δ_{355}
I	68.9° N	3.5–4.5	$1.2\pm0.1\ 10^{-3}$	0.21 ± 0.14	$8.5\pm1.8\ 10^{-2}$	$2.1\pm1.8\%$	$1.6\pm0.3\%$
II-A	69.6° N	2.8–3.8	$2.2\pm0.2\ 10^{-3}$	0.19 ± 0.03	$12.5\pm1.3\ 10^{-2}$	$3.3\pm0.9\%$	$2.1\pm0.3\%$
PBL	70.6° N	<0.8	$1.8\pm0.2\ 10^{-3}$	0.24 ± 0.12	$10.4\pm1.7\ 10^{-2}$	$5.4\pm5.3\%$	$1.9\pm0.3\%$
II-B	71.7° N	3.5–4.5	$1.3\pm0.1\ 10^{-3}$	0.20 ± 0.06	$11\pm1.6\ 10^{-2}$	$2.1\pm1\%$	$1.6\pm0.2\%$

extinction coefficients decreases from 2 to 0. This is comparable to calculations made from the Optical Properties of Aerosols and Clouds (OPAC) package (Hess et al., 1998; Liu et al., 2004). For our observations, corresponding to smaller aerosol optical depths (<0.04) and small backscatter coefficients (1–2 10^{-3} km^{-1} sr^{-1}), the color ratio is about 0.2, for all the layers, as reported in Table 2 and in Fig. 5. This corresponds to a wavelength dependence in the backscatter coefficient larger than 2, indicative of small particle sizes. The pseudo color ratio shows slightly smaller values for layer I, with respect to the other ones, but looking at the variability, it does not appear to be fully significant, and no major difference is seen on color ratio (Fig. 5). The overall results of Table 2 however show that the apparently homogeneous layer II may be formed of several aerosol sources since layer II-A and II-B have different optical characteristics. To sumarize, the airborne lidar data show that:

- aerosol layers are identified in the mid-troposphere having very low optical depths (<0.04).
- two layers (I and II) are detected with markedly different vertical structure and backscatter values implying different aerosol sources and probably different transport processes
- layer I has low depolarization and lowest pseudo color ratio related to a very small fraction of coarse size particles
- layer II is not homogeneous with, according to the pseudo color ratio values, larger particles than layer I and even some depolarization in layer II-A.
- pseudo color ratio and aerosol color ratio are smaller than values derived from the AERONET network, mainly because of larger Angstrom coefficient in our study.

To get more insight in the airborne lidar data indications, we have taken advantage of the flight pattern to analyze the in-situ measurements when the aircraft has crossed the layers observed by the lidar.

2.4 In-situ measurements

Ozone and carbon monoxide (CO) were measured on the ATR-42 (Nedelec et al., 2003). The CO is especially useful as it can indicate if an air mass has been influenced by combustion processes less than 10–20 days before. Regarding the aerosol concentrations, an optical counter (CPC-3010) measured the number of submicronic particles with sizes larger than 10 nm and a Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe (PCASP SPP-200) provided the number of particles in 30 size bins between 0.1–3 µm. Uncertainties up to 10% have to be taken in account because of difficulties to estimate the correct probe volumic sample flow. In this paper the PCASP data are summed over all the size bins to get a concentration number comparable to the optical counter. Differences between the two numbers are mostly related to a large fraction of small particles (<100 nm) detected by the optical counter but not seen by the PCASP.

The CO and the aerosol concentrations from the PCASP and the CPC are shown in Fig. 6 for latitudes lesser and greater than 70° N, respectively the second plot corresponding to the numerous crossing of the layer II identified by the lidar. The CO variability is generally well correlated with the aerosol concentrations is of the order of 100 ppb. It is not very different for the southerly flow and the Artic outflow. This variability can be explained by the highly stratified aerosol and chemical composition of the free troposphere as shown by the lidar. The smallest CO values around 130 ppb correspond to the cleanest and oldest air masses, sampled on this flight.

When comparing the PCASP and the optical counter data, one can notice higher concentrations of small particles in the southern section of the flight. This is related to either the removal of larger particles during the transport from mid-latitudes or to the generation of new smaller particles. The two hypotheses imply differences for layer I and II in the air mass age since exposure to emissions or in the nature of the emissions (e.g. more SO_2 concentrations, Weber et al. (2003) or more organic emissions from continental regions over Northern Europe, Sellegri et al., 2005). A more direct way to demonstrate the larger fraction of very small particles is to plot the size spectrum measured along the flight by a Scanning Mobility Particle Sizer (SMPS) for particle smaller than 300 nm and the PCASP for larger particles (Fig. 7).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

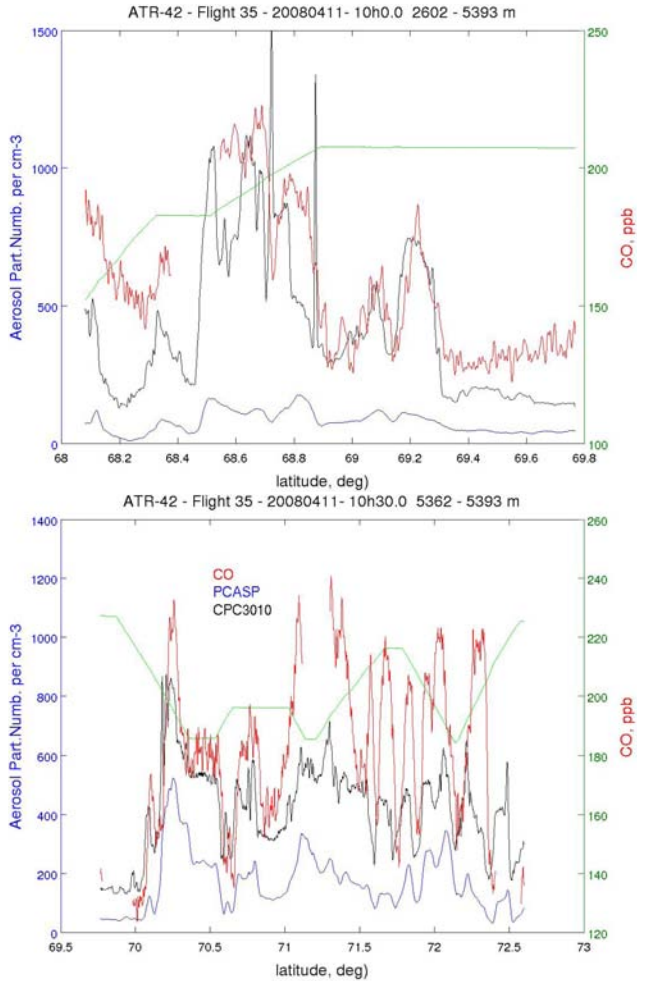


Fig. 6. CO (red) and aerosol concentrations for the PCASP (blue) and CPC (black) along the fligth track for latitudes $<70°$ N (top panel) and latitudes $>70°$ N(bottom panel). Aircraft altitude divided by a factor 5 (green) is plotted in m using the left vertical axis.

It shows indeed smaller particle sizes (30–200 nm) for the southern section of the flight, while the Artic outflow corresponds to larger particles (100–300 nm). This is consistent with the interpretation of the differences between the PCASP and the optical counter. It is also noticeable that the fraction of particles with a diameter exceeding 300 nm are increasing in the layer II-A at 69.6° N, i.e. where the pseudo color and depolarization ratio are maximum in the lidar data.

The analysis of the in-situ data therefore sheds light on interpretation of the lidar data and we can say that:

– the lidar aerosol layers are mostly related to either biomass burning or urban/industrial sources considering the good correlation between aerosol and CO concentrations. This was already reported in Kampe and Sokolik (2007) and Capes et al. (2008).

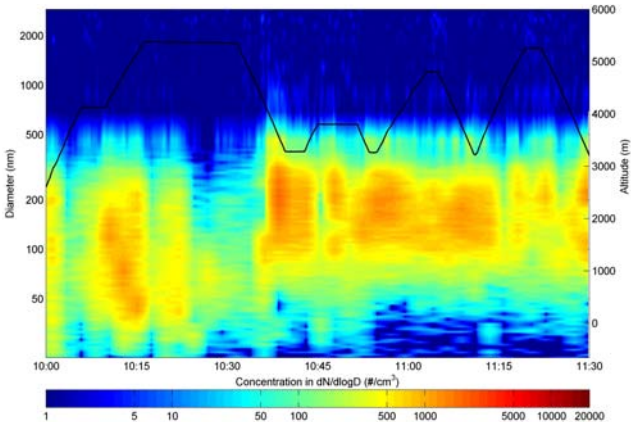


Fig. 7. Size spectrum (nm) measured as a function of time along the flight track by the SMPS (0.01 and 0.4 µm) and PCASP (0.4–3 µm). The vertical flight pattern is showed for comparaison with latitude cross-section (black line) in Figs. 13 and 2.

– the pseudo color ratio analysis is consistent with the observed aerosol size distribution showing the largest aerosol size for the layer II-A, even though the aerosol optical depth is small and the variability of this ratio is weak.

To understand the respective influence of the aging and the nature of the sources, air mass origins were investigated using transport modeling.

3 Modeling of the transport to the Arctic

3.1 Description of the FLEXPART simulations

The origin of the observed air masses was studied using the Lagrangian Particle Dispersion Model (LPDM) FLEXPART version 6 (Stohl et al., 1998, 2002) driven by 6-hourly ECMWF analyses (T213L91) interleaved with operational forecasts every 3 h. In addition to classical advection, the LPDM includes turbulent diffusion, parameterizations of sub-grid scale convection and of topographic processes, as well as online computation of potential vorticity (PV) for each air parcel. The fraction of particles with PV >2 PVU (1 PVu$=10^{-6}$ kg^{-1} m^2) is calculated as a function of time to estimate the probability of transport from or into the stratosphere. Previous studies have shown that a fraction larger than 20% corresponds to a significant influence of the stratosphere-troposphere exchange (STE) processes. We modified the FLEXPART model to introduce the calculation of the fraction of particles originating below an altitude of 3 km, for three areas corresponding to different emissions of particulate matter and CO: Europe (latitude $<55°$ N, longitude $\in [-10°$ W $30°$ E]), Asia (latitude $<55°$ N, longitude

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

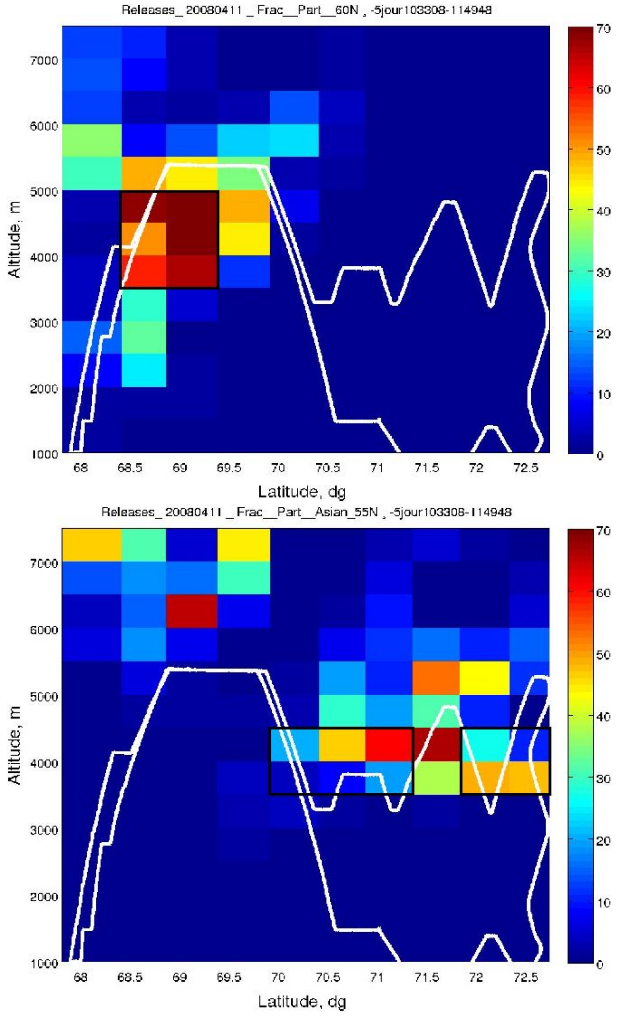


Fig. 8. Meridional vertical cross section of air mass origins calculated by Flexpart for 500 m×0.5°×0.5° boxes. The color scale indicates the fraction of particles in % being in the European (first figure) and Asian (second figure) lower troposphere ($z \leqslant 3$ km), 5 days before the observations. Aircraft altitude is shown in white.

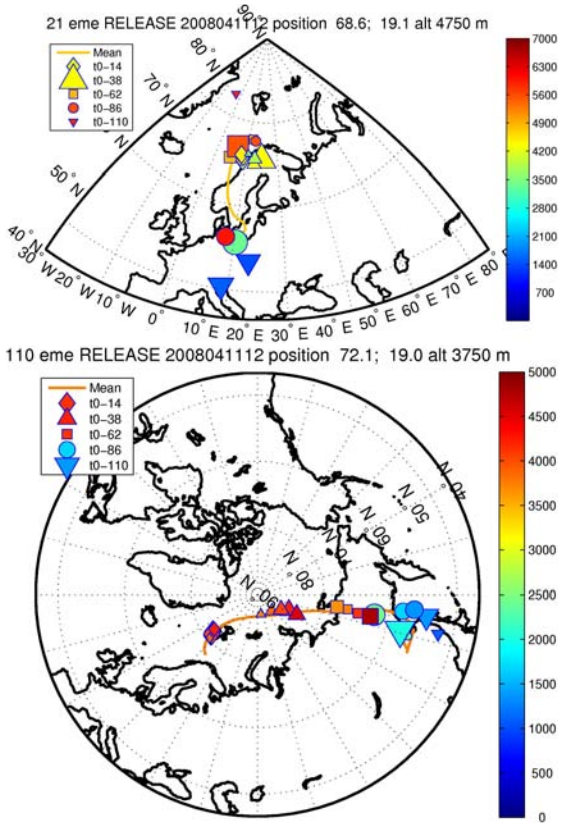


Fig. 9. 5-days FLEXPART backward time position of five clusters of the 2000 particles released between 4 and 4.5 km at 68.6° N (top panel) and between 3.5 and 4 km at 72.1° N (bottom panel) on 11/04/2008 at 12:00 UT. The clusters are plotted every 24 h from 14 h before observation, the color corresponds to their altitude, and the size of each cluster is proportional to the number of particles.

∈ [30° E 180° E], North America (latitude <55° N, longitude ∈ [−180° W −30° W]).

Next we divided the lidar vertical cross-section of Fig. 2 in 130 boxes with the following size: depth of 500 m and horizontal size of 0.5°×0.5°. For each box, 2000 particles were released during 60 min and the dispersion computed for 7 days backward in time. As we focus on layers, our aim is to document their history as long as they remain coherent, i.e. before they undergo strong mixing which, as reported by Methven et al. (2006), becomes significant after 4 days for trajectories arriving above western Europe. The vertical cross-section of the air mass origin can be reconstructed using a plot of the fraction of particles being in the lower troposphere of a given region 5 days before the lidar observations (Fig. 8). Comparison of the cross-sections for different transport times showed that the cross sections of the air mass origins 4 to 6 days before the observations.

The transport pathway for the ensemble of 2000 particles released in a given box can also be described by the position of 5 clusters identified among the particle plume every 24 h. Two examples are given in Fig. 9 for a box in the southern section of the flight mainly influenced by the European emissions and a box in the northern section where air masses were coming from Asia. The size of the clusters corresponds to the number of particles included in the cluster and the color to its altitude. The color of the mean trajectory of the particles is the altitude of the ending point. If the layer remains coherent the 5 clusters (or at least the largest ones) stay close to each other. Often the dispersion of the clusters is too large after 4–5 days to identify a direct link with a single source region or to be able to establish a Lagrangian connection between two different observations.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

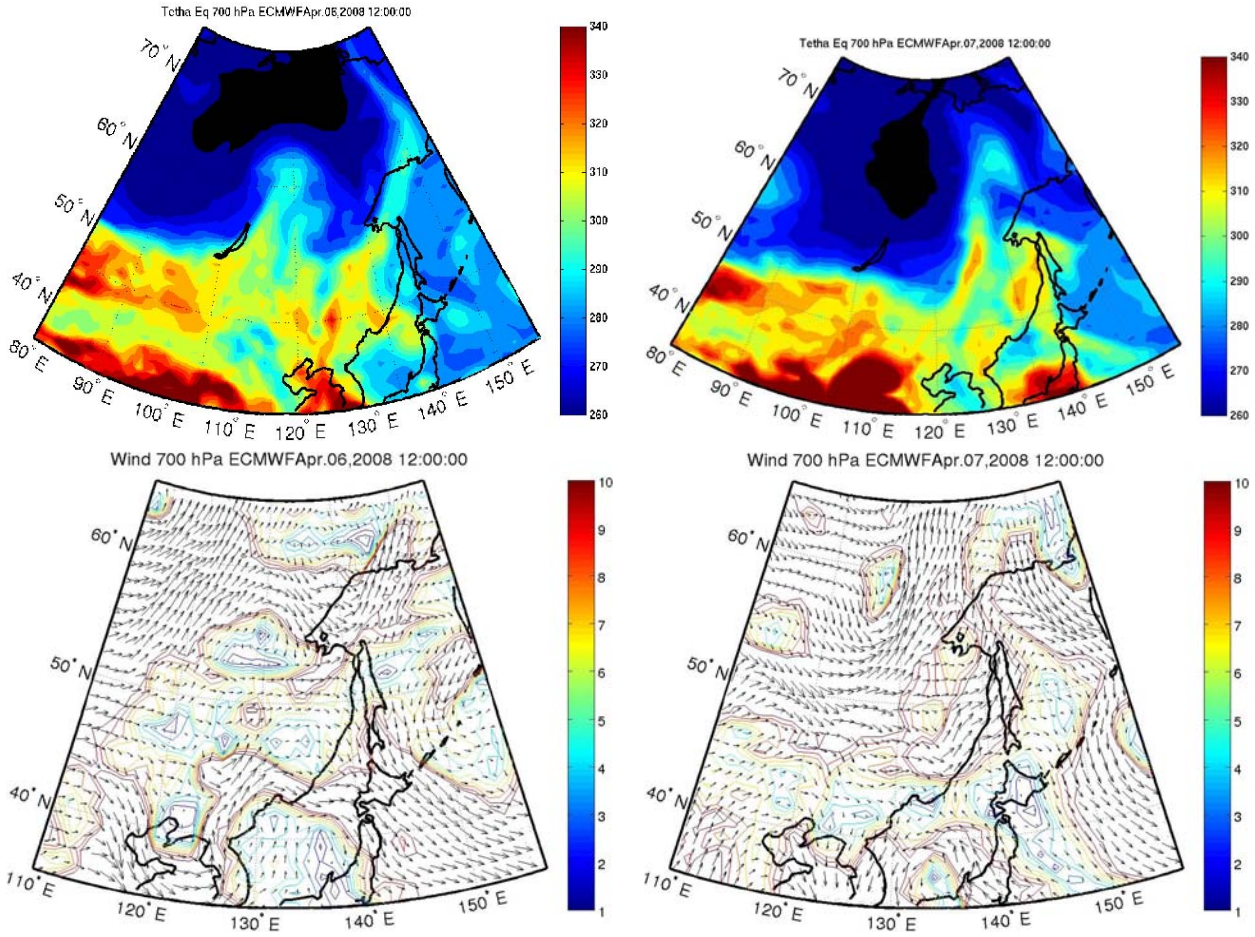


Fig. 10. ECMWF 700 hPa equivalent potential temperature in K (top row) and ECMWF 700 hPa wind field (bottom row) for the 06/04/2008 (left column) and 07/04/2008 (right column) at 12:00 UT. Colored isolines are wind speed in m s^{-1}.

3.2 Air mass origins and CALIPSO overpasses

The cross-section in Fig. 8 nicely shows that the measurement area between 3.5 and 5 km in the southern section ($<70°$ N) is mainly related to European emissions with a fraction of particles larger than 30% coming from the European PBL. The area corresponding to the largest lidar signal comes from central Europe with a significant upward motion from the PBL (altitude <2 km) to the 4 km altitude range above Denmark (Fig. 9a). This took place over 3.5 days because of the combined influence of two Low pressure systems: one over the North Sea and the other one over the Western Mediterranean sea. Central European emissions first transported by the cold conveyor belt of the southernmost low were then further uplifted in the warm conveyor belt of the northernmost Low.

The aerosol layer observed in the northern section of the flight was transported from Asia as shown by the cross-section of the Asian fraction where boxes with fraction larger than 30% matches exactly the sawtooth motion of the aircraft between 70.5° N and 72.5° N. An example of a trajectory for the box at 72° N, 3.7 km (Fig. 9b) shows that the upward motion took place in a frontal system developing above North Eastern China from 5 April to 7 April (see the θ_e map showing the position of the low level front and the advection of warm and humid air mass toward the Arctic in Fig. 10).

The influence of STE below 6 km remains negligible (the PV fraction in the FLEXPART runs are always less than 10%) and the clean region of the lidar section above 3.5 km between 69.5° N and 70° N remains influenced by the European emission but uplifting is mainly driven by the April 7 low pressure over the North Sea. The dominant European sources are then from the southern coast of the Baltic sea, where lower CO emissions are expected. Aerosols were probably washed out in the northern part of the warm conveyor belt where heavy precipitation is often encountered at low level (Bethan et al., 1996).

To be more specific about the geographical extent of the Asian and European sources responsible for the aerosol and CO increase, we have also used the map of the potential

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

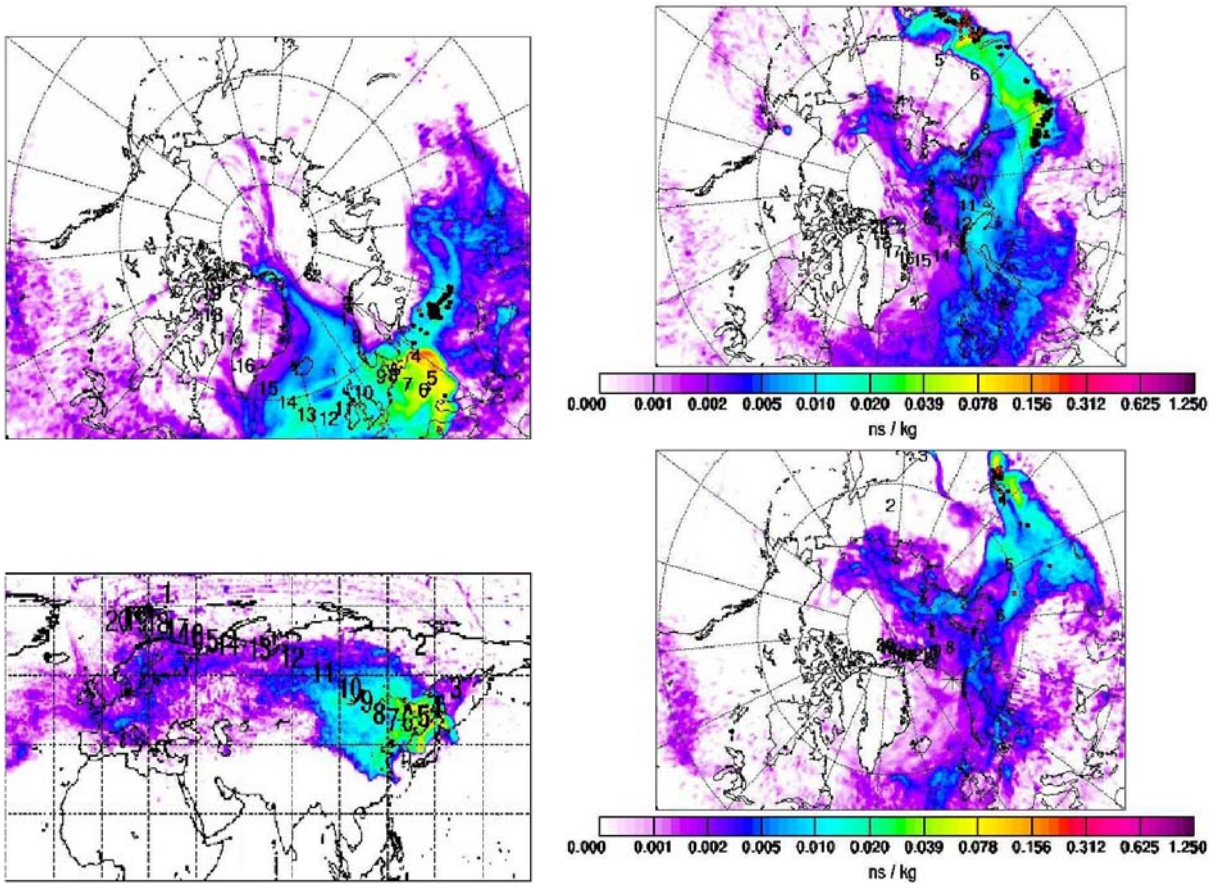


Fig. 11. Potential Emission Sensivity (PES) in ns/kg for 4 points of the flight track 68.8° N–4500 m, 70.2° N–4200 m, 72° N–3600 m and 72.4° N–5250 m. Numbers indicate elapsed time in days since emission along the mean trajectory. (see http://transport.nilu.no/flexpart-projects?cmp=POLARCAT_FRANCE).

emission sensitivity (PES) described in Seibert and Frank (2004) and calculated for different positions along the aircraft track by John Burkhart for the POLARCAT project (web site http://transport.nilu.no/flexpart-projects). The PES is shown in Fig. 11 for 4 different latitudes along the flight cross-section: 68.6° N (European plume), 70.2° N, 72° N, 72.4° N (Asian plume).The 72.4° N and 72° N air masses correspond to respectively the aerosol layer at 5 km and at 3.7 km in the northernmost part of the lidar cross-section. We can see that the European emissions related to our observations are mainly from Eastern Europe and that the air mass lifetime is of the order of 4–5 days. For the Asian plume, we can see that it cannot be regarded as a single layer with a similar history but most likely to two different plumes: one is related to the fire emissions which took place in April 2008 over Siberia (see the 10-day mean fire map plot measured by MODIS from 31/03/2008 to 09/04/2008 in Fig. 12) east of Lake Baïkal and the other one is related to the anthropogenic emissions from North Eastern Asia (Streets and Waldhoff, 2000). The strong impact of the spring 2008 Siberian fires on the atmospheric composition have been already observed over Alaska (Warneke et al., 2009) and by the satellite observations (Coheur et al., 2009).

Using air mass trajectory estimates similar to the results shown in Fig. 9, one can look for the CALIPSO satellite tracks coinciding with the transport of these aerosol layers to the region of the aircraft measurements. This was done for three groups of trajectories corresponding to the boxes of Fig. 8 which are within the black rectangles indicated in this figure: (i) the first area near 69° N (six trajectories) matches the European plume (layer I in the lidar data), (ii) the second one at 4 km near 70.5° N (six trajectories) matches the southern part of the Asian plume (layer II-A) and (iii) the last rectangle at 4 km near 72° N (four trajectories) corresponds to the northern part of the Asian plume (layer II-B). A CALIPSO track was selected if the time and horizontal position of the satellite overpass was less than, respectively 2 h and 200 km, from the air mass positions in the FLEXPART runs. The track sections (line) and the FLEXPART air mass positions (stars) are shown in Fig. 13 where the color scale

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

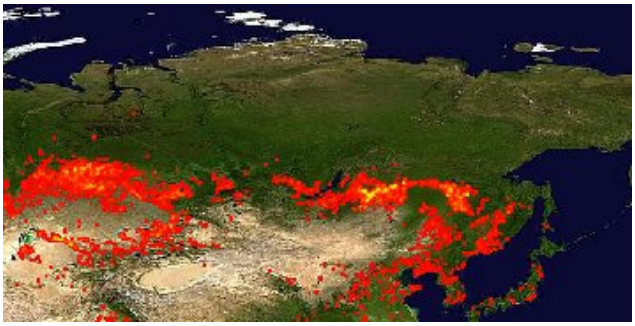


Fig. 12. Fires detected by MODIS over a 10-day period 31/03/2008 to 09/04/2008. Each colored dot indicates a location with at least one fire during the compositing period. Color ranges from low (red) to high (yellow) fire counts.

corresponds to the elapsed time between the CALIPSO observations and the aircraft observations. One can see that the evolution of the aerosol content of the 3 selected groups can be analysed for a 6 day period for the Asian plume and a 4 day period for the European plume, i.e. the time corresponding to the transport from the source region. The selected CALIPSO observations are coming from the same source region for group (ii) and (iii) but the pathways are slightly different. The air masses and the corresponding CALIPSO observations remain over the continent with the northward transport near 135° E three days before for group (iii), i.e. the northern section of the plume. The group (ii) shows a longer pathway with the northward transport more often over the Pacific ocean and even toward Alaska before coming back west to Scandinavia. Several CALIPSO overpasses are indeed above Alaska for group (ii).

Even though there are different pathways for group (ii) and (iii), we will not distinguish the two groups any further as their air masses are both connected to the position of the Siberian fires and north-east Asian emissions. The use of CALIPSO to distinguish aerosol layers related to these two sources will have to be deduced from the actual latitude/longitude of the detected layers in the CALIPSO observations over Asia.

Notice that there is a likely Lagrangian connection between aircraft observations made in Alaska between 4 and 7 April and the lidar observations of group (ii). This will be studied in a future paper using a Lagrangian model for aerosol aging.

4 Optical properties of the aerosol plumes using CALIOP

The level-2.1 version 2.01 CALIOP aerosol data products have been analysed along the selected CALIPSO track using the 5-km horizontal average profiles (Liu et al., 2009).

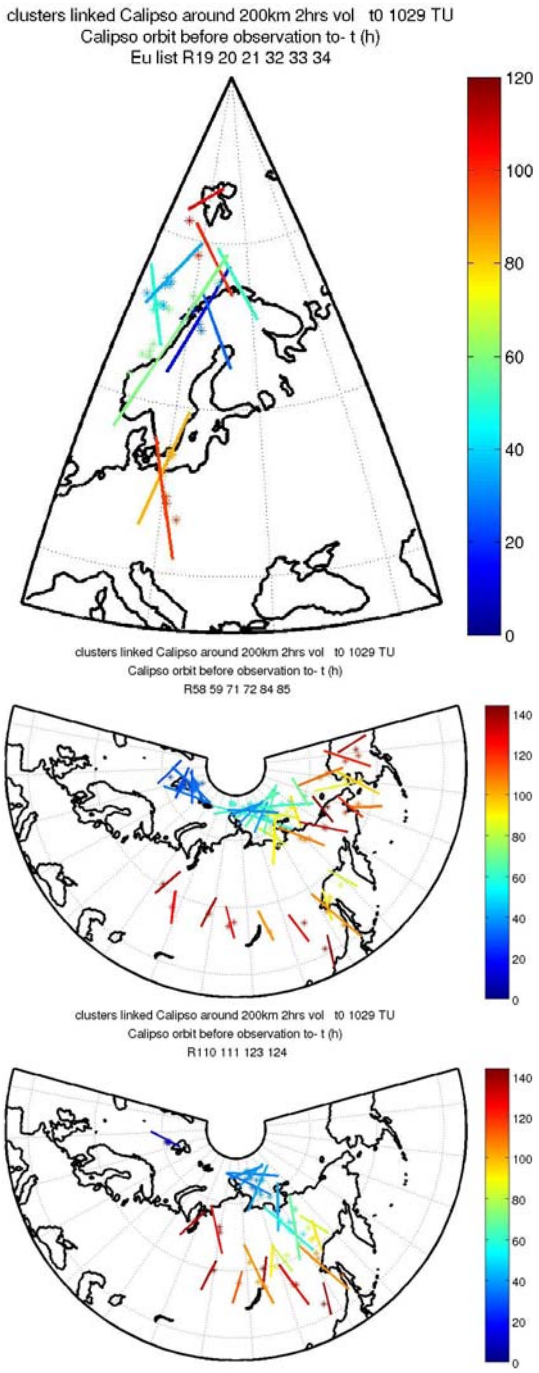


Fig. 13. Calipso track sections (line) and FLEXPART air mass positions (*) along FLEXPART trajectories initialized in the black rectangles of Fig. 8 (top left panel for 69 5° N, top right and bottom panel for respectively the 70.5° N and 72° N rectangles). The colors scale indicates the elapsed time in hour between the CALIPSO observation and the aircraft observation.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Table 3a. Aerosol layer characteristics from the CALIPSO observations for the backward FLEXPART model run initialized at 69.5° N–72.5° N, 3.5–4.5 km (Layer II-A and II-B). Lines are colored to indicate Siberian fires (light brown), mixed Asian sources south of 52N (gold and red to indicate when dust are expected to influence the mixture) from trajectory analysis.

Date	Time UT	CALIOP Start Lat./Lon	End Lat./Lon	Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} km^{-1} sr^{-1}	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	Aerosol Color ratio	FCF
05/04	03:21	51.3/135.8	52.4/135.4	5.2-7.2	22 ± 4.10^{-4}	0.36±0.16	0.12±0.17	0.54±0.51	D
05/04	05:00	51.73/110.94	52.38/110.63	2.2–4.2	18 ± 3.10^{-4}	0.33±0.16	0.10±0.11		
05/04	12:28	61.81/−146.33	63.65/−144.88	2.1–4.1	39 ± 22.10^{-4}	0.38±0.45	0.11±0.15		
05/04	17:25	42.55/130.16	47.77/132.06	1–2.2	39 ± 12.10^{-4}	0.39±0.18	0.07±0.06	0.55±0.71	P.D.
05/04	19:04	56.34/111.3	61.41/114.49	3.7–5.7	14 ± 3.10^{-4}	0.27±0.19	0.04±0.04	0.72±1.28	P.D.
05/04	20:43	56.26/86.54	57.09/87	3.2–5.2	16 ± 3.10^{-4}	0.3±0.14	0.06±0.04	0.7±0.87	P.D.
05/04	22:21	59.06/63.46	62.42/65.8	5.3–7.3	12 ± 2.10^{-4}	0.32±0.15	0.09±0.05		
05/04	22:21	68.55/71.74	69.83/73.41	5.5–7.5	13 ± 3.10^{-4}	0.26±0.17	0.11±0.06		
06/04	04:05	50.26/125.48	51.4/124.98	1.5–3.5	25 ± 3.10^{-4}	0.33±0.16	0.06±0.11	0.58±0.52	P.D.
06/04	07:22	56.41/73.06	57.06/72.7	5–7	15 ± 2.10^{-4}	0.3±0.17	0.11±0.11	0.59±0.65	D
06/04	13:12	65.12/−154.4	67.1/-152.42	3.7–6.5	15 ± 5.10^{-4}	0.05±0.4	0.07±0.07		
06/04	14:50	65.59/−178.68	65.72/-178.56	4.8–6.8	15 ± 3.10^{-4}	0.53±0.35	0.10±0.08		
06/04	19:47	57.97/101.42	58.62/101.81	4.7–6.7	10 ± 1.10^{-4}	0.13±0.1	0.04±0.02	0.54±1.2	D
06/04	23:51	58.61/−175.44	59.43/-175.96	4.9–6.9	21 ± 4.10^{-4}	0.22±0.18	0.09±0.11		
07/04	03:09	47.42/140.54	50.5/139.28	1-3.4	40 ± 12.10^{-4}	0.55±0.18	0.13±0.18	0.76±0.82	D
07/04	03:09	50.81/139.14	51.78/138.71	1-2.8	35 ± 12.10^{-4}	1.02±0.61	0.11±0.17	1.59±2.39	D
07/04	04:48	52.78/113.53	53.26/113.3	2.7–4.7	32 ± 7.10^{-4}	0.33±0.14	0.00±0.08	0.47±0.48	S
07/04	16:20	72.81/155.56	73.83/157.66	4.7–7	13 ± 2.10^{-4}	0.27±0.13	0.02±0.02		
07/04	17:13	52.04/136.95	56.15/139.01	1–3.3	27 ± 6.10^{-4}	0.31±0.25	0.04±0.03		
07/04	17:13	59.11/140.74	64.18/144.49	1–3.4	27 ± 8.10^{-4}	0.31±0.15	0.02±0.03		
07/04	17:59	75.09/136.02	76.98/141.93	5–7.3	13 ± 2.10^{-4}	0.27±0.14	0.03±0.04		
07/04	18:52	58.94/115.92	59.59/116.33	5–7	11 ± 1.10^{-4}	0.24±0.13	0.07±0.04	0.88±1.06	D
08/04	00:35	76.26/150	76.8/148.18	5–7.4	17 ± 4.10^{-4}	0.27±0.2	0.16±0.11		
08/04	02:14	61.95/146.76	63.27/145.72	1–3	25 ± 4.10^{-4}	0.3±0.1	0.04±0.11		
08/04	17:56	59.82/130.39	64.89/134.3	2.1–6.6	17 ± 3.10^{-4}	0.25±0.14	0.04±0.03		
08/04	20:21	80.38/126.27	80.71/129.88	4.8–7.4	13 ± 2.10^{-4}	0.28±0.13	0.00±0.08		
08/04	22:00	81.3/113.75	81.52/118.4	4.8–7.4	15 ± 2.10^{-4}	0.3±0.14	0.03±0.09		

D: Dust. C.C.: Clean Continental. P.D.: Polluted Dust. S: Smoke.

We have considered the aerosol layer properties when the aerosol layer altitude is less than 1 km away from the air mass altitudes calculated by FLEXPART. Two additional conditions are: a minimum horizontal averaging of 80 km and a 3% minimum threshold value for the layer optical depth at 532 nm to be faithfully analyzed. The last two conditions are necessary considering the small aerosol optical depths of the layers revealed by the airborne lidar observations. For a given CALIPSO track, the average position of all the nearby FLEXPART air masses is calculated and the track is analysed over a ±300 km distance around this average position. The mean 532-nm attenuated backscatter, the pseudo color ratio between 1064 and 532 nm and the 532-nm volume depolarization ratio are reported for all the layers which fullfilled the previous conditions in Tables 3a and 3b for the FLEXPART trajectories of group (ii) and (iii) and in Table 4 for the group (i). The comparison between the CALIPSO tracks in Fig. 13 and the time and position of the detected layers show that 65% and 50% of the CALIOP data exhibit aerosol layers with optical depths >0.03 for the Asian plumes (Table 3a, 3b) and the European plume (Table 4) respectively. We can notice that the uncertainties in the color ratio and the depolarization ratio are often very large and cannot be used for a truly quantitative analysis of the aerosol composition and evolution. The largest possible ratios (i.e. the mean+the standard deviation) still contain a meaningful indication about the possible source and the rough evolution of the optical properties (see Omar et al. (2009) for interpretation of the color ratio and the depolarization ratio for aerosol classification). The Cloud Aerosol Discrimination (CAD) score have been calculated for the aerosol layers listed in Tables 3a, 3b, 4. They are always larger than 50% and 3/4 of the CAD values are even

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Table 3b. continue from Table 3a, layers in the area where the aircraft flew are indicated in green.

Date	Time UT	CALIOP Start Lat./Lon	End Lat./Lon	Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $km^{-1}sr^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	Aerosol Color ratio	FCF
09/04	02:57	67.82/130.51	68.44/129.77	4–6.9	21 ± 5.10^{-4}	0.5±0.19	0.08±0.20		
09/04	17:47	71.9/132.25	75.98/141.63	3.8–5.8	21 ± 6.10^{-4}	0.29±0.12	0.03±0.03		
09/04	19:26	78.32/126.06	80.65/143.1	3–6.3	16 ± 2.10^{-4}	0.32±0.12	0.03±0.07		
09/04	21:05	80.89/121.22	81.16/125.21	4.1–6.1	14 ± 2.10^{-4}	0.35±0.18	0.00±0.06		
10/04	02:02	77.56/23.72	79.66/35.26	4.6–7.4	14 ± 2.10^{-4}	0.26±0.15	0.03±0.07	0.55±0.65	C.C.
10/04	03:40	81.71/39.83	81.81/47.08	3.7–7.4	20 ± 4.10^{-4}	0.68±0.36	0.03±0.12		
10/04	05:19	81.8/20.22	81.82/24.04	3.7–6.7	17 ± 2.10^{-4}	0.15±0.09	0.03±0.09	0.25±0.3	C.C.
10/04	06:58	81.32/19.38	81.68/10.17	3.7–7.4	15 ± 2.10^{-4}	0.25±0.17	0.05±0.11	0.46±0.56	C.C.
11/04	02:45	73.66/1.25	75.67/6.29	3–5.6	16 ± 2.10^{-4}	0.27±0.12	0.02±0.03	0.62±0.62	S

D: Dust. C.C.: Clean Continental. P.D.: Polluted Dust. S: Smoke.

larger than 75% for the layers discussed in this work. This is a good indication that the features detected by CALIOP are indeed aerosol layers (Eguchi et al., 2009).

Like for the airborne lidar analysis, the aerosol color ratio is also reported in Tables 3a, 3b, 4. The error on this ratio is larger than the error on the pseudo ratio, with values ranging between 100% and 200%. This ratio varies between 0.25 and 0.7 for the smallest error (100%), and is close to 0.5 on average for layers identified in Table 3a. It is larger than the airborne lidar values of 0.2 reported in Table 2.

We however have to consider attenuation above the aircraft to more directly compare both values. Assuming clean air, considering 5 km as an average altitude flight, and neglecting molecular scattering at 1064 nm leads to a overestimation of about 15% of space values with respect to aircraft ones. Including upper level aerosols would lead to an additional increase of the same order, which would make the corrected color ratio derived from space measurements to be about 0.35. This is also the same correction for the comparison of the pseudo color ratios. This appears acceptable due to the large error bar (mostly linked to calibration error) on this quantity, but also because CALIOP can hardly detect layers with small optical depths (>0.03) and Angstrom coefficient larger than 2. The CALIOP aerosol color ratio are more comparable to the work of Cattrall et al. (2005) near the Asian sources where there are backscatter ratio ($R>3$) and where the aerosol color ratio are of the order of 0.6–0.7 (see layers colored in gold Table 3a and discussion hereafter on source attribution). This is consistent with a mixture of pollution (color ratio of 0.5) and dust aerosol (color ratio of 1).

The analysis of the two tables shows that the CALIOP layers detected in the region 65–85° N, 10–30° E (i.e. in the vicinity of the aircraft measurement zone and colored in green in table 3b exhibit moderate 532-nm backscatter values (1.4–1.7 10^{-3} km^{-1} sr^{-1}, i.e. a backscatter ratio R between 1.6–1.9), low color ratio ($\leq$0.25) and almost no depolarization ($\approx$3%). This is consistent with the properties of the layers measured by the aircraft (Table 2). The depolarization values measured at 355 nm by the aircraft (2%) are slightly smaller than the expected δ_{355} (2.5%) for a δ_{532} of 3%, but the CALIOP volume depolarization values in this region are nevertheless smaller than all the CALIOP data reported in Tables 3a and 3b. The good correspondence between the aerosol properties of the CALIOP layers and the airborne lidar layers for a time scale of 1 day, is the first necessary condition if one aims at using the CALIOP observations further upwind in order to unsderstand the sources of the aerosol layers seen by the aircraft.

The analysis of Table 3a and 3b focused on layers with backscatter values, $\beta_{532} \geq 2\ 10^{-3}$ km^{-1} sr^{-1} ($R \geq 2$) i.e. with an intensity strong enough to be able to discuss the optical properties. The position of the layers must also be considered in the interpretation of this table as three Asian sources are known to dominate the aerosol composition at this time of the year: the desert dust advected from the Gobi and Taklamakan desert (Duce et al., 1980) in the latitude band 40° N–50° N, the industrial emissions from the Heilongjiang region further east in the same latitude band, and the forest fires from the Lake Baikal region in the latitude band 50° N–55° N. Therefore four main results can be underlined from this table:

– Looking at the strongest aerosol layers prior to April 8, two kinds of aerosol properties can be found in the 45°–52° N where several sources influence the aerosol properties (layers colored in gold in table 3a): one with low pseudo color ratio (near 0.3) and low δ_{532} (0–7%) for longitude <125° E (text in black Table 3a), and the other one with larger pseudo color ratio (0.5 to 1) and larger δ_{532} (10–14%) for longitude > 135° E (i.e. near the Pacific coast, text in red in Table 3a).

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Table 4. Aerosol layer characteristics from the CALIPSO observations for the backward FLEXPART model run initialized at 68.5° N–69° N, 3.5–5 km (Layer I).

Date	Time UT	CALIOP Start Lat./Lon	End Lat./Lon	Flexpart layer alt, km	Mean β_{532} $km^{-1}\,sr^{-1}$	Pseudo Color ratio	Pseudo Mean δ_{532}	Aerosol Color ratio	FCF
08/4	01:27	52.05/13.36	55.86/15.24	1.7–5.4	27 ± 1.10^{-4}	0.44±0.28	0.08±0.06	0.7±0.54	D
09/4	02:11	58.45/5.91	62.72/8.87	3.1–5.3	17 ± 4.10^{-4}	0.23±0.21	0.05±0.06	0.47±0.91	C.C.
10/4	02:54	66.26/1.21	70.21/5.97	2.5–5.3	16 ± 4.10^{-4}	0.23±0.18	0.04±0.03	0.51±0.97	P.D.
10/4	10:16	64.76/23.94	64.88/23.82	2.6–5.0	39 ± 13.10^{-4}	0.40±0.50	0.10±0.14	0.53±1.13	P.D.
11/4	01:58	65.94/14.79	68.41/17.49	2.7–5.2	16 ± 3.10^{-4}	0.10±0.17	0.03±0.02	0.18±0.71	C.C.

D: Dust. C.C.: Clean Continental. P.D.: Polluted Dust. S: Smoke.

- Near the Siberian fire sources (55°–60° N, 90°–120° E), $\beta_{532} \leq 2\ 10^{-3}\,km^{-1}\,sr^{-1}$ ($R \approx 1.5$) with a 0.3 pseudo color ratio and a weak δ_{532} (4–7%), i.e. with probably small aerosol which did not have time to grow as when transported through a very humid frontal system (layers colored in light brown in Table 3a)

- At latitude larger than 60° N (i.e. in the Arctic region), one can distinguish two regions: (i) the layers detected above Alaska with a color ratio of 0.3–0.4 and some depolarization (9–10%) although smaller than the values for lower latitudes near the Asian Pacific coast, (ii) the layers in the Eurasian Arctic with a variable color ratio 0.3–0.5 and lower δ_{532} (2–8%)

- As the air masses are transported from Asia to Scandinavia across the Arctic, there is a general tendency for decreasing β_{532} from 3 to 1.5 $10^{-3}\,km^{-1}\,sr^{-1}$ (i.e. R from 3 to 1.7) and fewer air masses with elevated pseudo color ratio or pseudo depolarization ratio. Notice also that there is not a very clear dependency of the optical properties with altitude in the detected layers considered in this study.

The CALIOP aerosol feature classification flag (FCF) derived from the operational products is also reported in Tables 3a, 3b, 4. This classication is mainly based on the depolarization and color ratio, the attenuated backscatter amplitude and layer altitude (Liu et al., 2004) . This can be compared with our own interpretation of the aerosol source influencing the layers. One can see that the agreement is certainly good for the layers where we suspect the desert dust to be mixed with the polluted emissions from north-east Asia (gold). The main discrepancies are for the layers in the Siberian fire region where the CALIOP operational products assumed mainly dust sources, while our analysis suggest a dominant influence from boreal fires. The CALIOP analysis is mainly related to the weak increase of δ_{532}, but it does not take into account the likely small size of the aerosols and the large number of fires in this region in April 2008. Also the CALIOP FCF tends to define layers encountered after several days of transport as clean continental, while our analysis shows a connection between the Asian polluted sources and the area above Scandinavia. This is probably a limit of the CALIOP FCF for making a precise continental source attribution after several days of transport which resulted on a large decrease of the attenuated backscatter.

One plausible hypothesis for explaining the largest δ_{532} and elevated pseudo color ratio for the CALIPSO layers in the area (45°–52° N, 135°–140° E) is that the southernmost CALIPSO tracks near the coast are influenced both by the desert dust and north-east Asian emissions. The higher color ratio is consistent with larger aerosol particles resulting from a remaining influence of dust but also from the likely growth of the pollution aerosol in the frontal system responsible for the northward transport which develops near the Pacific coast on 5–7 April (Fig. 10). Airborne in-situ aerosol measurements of the ratio of ultrafine (3–70 nm) to fine particles (70–200 nm) over Siberia in Spring 2006 by Paris et al. (2009) have shown, for similar meteorological conditions, that this ratio decreases for polluted air masses from north-east Asia.

Further west, where northward motion is less efficient, the Siberian boreal fires gradually become the main aerosol source (Warneke et al., 2009), explaining a significant decrease in both the pseudo color ratio and δ_{532}, as expected for biomass burning aerosol according to the work of Cattrall et al. (2005). This means that the three sources have influenced the aerosol composition over Scandinavia and that the depolarization ratio should provide a way to separate the biomass burning plume from the north-east Asian emissions because of the remaining influence of the desert emissions in the 40° N–50° N latitude band.

Above 60° N, the Alaskan layers can be considered as aged Asian layers being transported across the Pacific to Alaska as reported in the analysis of the 2008 spring period transport pathways described in Fuelberg et al. (2009), but also from the modeling work of Fisher et al. (2009)

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

showing the widespread influence Asian CO sources including Alaska. This can explain the values of the depolarization ratio which are intermediate between the low values above Scandinavia and the large values above North Eastern Asia. Considering all the layers in the Arctic region the slight decrease of the color ratio which is concomitant with the lower β_{532}, would indicate the gradual removal of the largest aerosol particles due either to mixing of the different aerosol type being present above Asia or to the wet removal of the largest hydrophilic aerosol particles during the transport processes.

Finally the CALIPSO analysis of the aerosol layer properties above Asia would now suggest that the source attribution of the different layers observed by the lidar in the Asian plume could be the following: remaining influence of north-east Asian emissions mixed with dust for the layer II-A at 69.7° N and more predominantly Siberian fire influence for the layer II-B further north. The combined use of FLEXPART together with analysis of the CALIPSO data allows more robust conclusions to made regarding the different sources influencing observed aerosol layers north of Scandinavia after more than 5 days of transport from source regions.

When it is compared with the analysis of the Asian plume, the results of Table 4 show smaller changes of the aerosol properties during the transport from central Europe. The pseudo color ratio and the depolarization ratio are less than 0.4 and 8%, respectively, above the sources in central Europe. These values are intermediate between the ones observed for the two types of Asian layers discussed previously . This is not so surprising since industrial European emissions dominate the aerosol composition where larger aerosols from the accumulation modes are less numerous. Episodic transport from the Sahara in the exported air mass from Europe is possible (Hamonou et al., 1999), Fuelberg et al. (2009) showed that 10-day trajectories reaching 70° N and originating from Sahara were almost negligible during the 2008 spring season compared to the potential export of Asian dust.

5 Conclusions

In this paper we have analysed airborne and spaceborne lidar aerosol data related to the transport of two different sources into the Arctic during April 2008: a European plume and an Asian plume. In the case studied here both plumes exhibit elevated CO concentrations indicating a significant fraction of either biomass burning or anthropogenic pollution sources. Although the aerosol optical depths are similar for both layers, their optical properties are quite different. We used mainly the pseudo volume depolarization at 355 nm and pseudo color ratio between 1064 and 532 to distinguish both layers because they are more stable quantities when looking at relative variations of the optical properties of layers with low aerosol optical depths ($<$4%), as encountered in this study. These ratios are also more comparable to CALIOP version 2.1 aerosol layer properties than other parameters, e.g. the aerosol color ratio or the aerosol depolarization ratio.

The European plume (layer I) contains smaller particles with very low 355 nm depolarization (1.6±0.3%) and low pseudo color ratios (0.009±0.002%). The Asian plume is characterized by larger particles and some 355nm depolarization (2.1±0.3%) in one layer (layer II-A, i.e. with a larger fraction of dust particles). Measurements of the aerosol size spectrum along the flight have also shown that the variability of the pseudo color ratio can be related to the actual change of the aerosol size distribution even for layers where the optical depth is small and consequently an increase of the pseudo color ratio error. This also gives confidence in the possibility of using the same kind of information in the CALIOP aerosol data products (pseudo color ratio between 1064 and 532 nm, pseudo volume depolarization at 532 nm). in the analysis of aerosol layers of moderate intensity when transported across the Arctic, even considering the expected larger error bar (30–100%) in the CALIOP data compared to the errors in the aircraft observations.

The comparison of the CALIOP data with the airborne data over northern Scandinavia showed that the pseudo color ratio and the volume depolarization ratio are in a reasonable agreement considering the error bar on the CALIOP data and the fact that time and spatial coincidences of the measurements are only possible in a 1-day time frame and a 500 km by 800 km longitude/latitude band. Nevertheless, these results show that CALIOP aerosol data products can be used to study the evolution of layer aerosol properties over a period of several days.

To understand the variability of the airborne observations, the transport of the air masses was investigated using specific FLEXPART simulations including calculation of the PBL air fraction originating from three different mid-latitude source regions: Asia, North America and Europe. Results from the transport model were combined with the CALIPSO overpasses to link our observations with CALIOP results obtained near the remote sources (Asia, Central Europe), consequently improving the identification of the aerosol sources responsible for the aerosol layers observed by the aircraft after a transport time of more than 4–5 days.

For example, above Asia, the CALIOP data indeed suggest more 532 nm pseudo depolarization (up to 15%) and the largest pseudo color ratio ($>$0.5) for north-east Asian emissions where there is a mixture of Asian pollution and dust, while low depolarization together with smaller and quasi constant pseudo color ratio ($\approx$0.3) are observed for the Siberian biomass burning emissions. A similar difference is visible between layer II-A and II-B observed by the aircraft above Scandinavia. It means that distinct signatures of the three aerosol sources (biomass burning, industrial emissions and desert) are still visible after being transported across the Arctic with the influence of the mixture of Asian pollution and dust being stronger for layer II-A. Of course the analysis

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

remains qualitative considering the difficulty in quantifying the different processes modifying the aerosol properties. This would require specific Lagrangian modeling of the aerosol evolution which is not within the scope of this paper. Notice however that it would have been difficult to discuss the remaining influence of different aerosol sources using the trajectory model alone which is less able to distinguish source regions after several days of transport.

The analysis of the time evolution of the aerosol optical properties revealed by CALIOP between the source regions and northern Scandinavia after 4–5 days of transport over the Arctic, suggests a gradual decrease in the 532-nm attenuated backscatter, the volume depolarization ratio and the pseudo color ratio which can be related to the removal of the largest particles in the accumulation mode (e.g. by wet removal in the frontal system responsible for the northward transport). A mixture of the three Asian aerosol sources also contributes to reductions in the volume depolarization and pseudo color ratio towards their lowest values, respectively 2% and 0.1.

The analysis of the European plume showed aerosol optical properties intermediate between the two Asian sources with pseudo color ratios never exceeding 0.4 and moderate volume depolarization ratios being always less than 8%, i.e. less aerosol from the accumulation mode. In common with the Asian plume, the time evolution of the European plume suggests the removal of the largest particles, thus explaining the aerosol spectrum observed by the aircraft in this case.

Finally, one conclusion of this paper is that CALIOP aerosol products have indeed a large error bar when dealing with quantities like the pseudo color and volume depolarization ratio, but are however valuable tools making source attribution of aerosol layers when used in conjunction with a Lagrangian transport model. It works also for aerosol layers of moderate intensity far away from the major aerosol sources. The comparison with the CALIOP operational FCF aerosol classification indeed show a good agreement for dust source identification, but also differences with our analysis where we include more information (air mass transport, positions of forest fires back in time, pseudo color ratio) than the CALIOP methodology based on the depolarization ratio, the local surface type and the attenuated backscatter intensity.

Appendix A

Backscatter lidar parameter definition

In this appendix, we are aiming at defining the parameters derived from a backscatter lidar and more precisely from the knowledged of the total volume backscatter coefficient at wavelength λ which can be split into the molecular (Rayleigh) and aerosol contribution:

$$\beta_\lambda(z) = \beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z) \tag{A1}$$

where the subscripts m and a specify, respectively, molecular, and aerosol contributions to the scattering process. A backscatter lidar measures the range corrected lidar signal, $P_\lambda(z)$, at range z, which can be related to $\beta_\lambda(z)$ by the following equation:

$$P_\lambda(z) = K_\lambda(\beta_{\lambda,m}(z) + \beta_{\lambda,a}(z)).T_{\lambda,m}(z)^2.T_{\lambda,a}(z)^2. \tag{A2}$$

where K_λ the range independent calibration coefficient of the lidar system and T^2 is the two-way transmittance due to any scattering (or absorbing) species along the optical path between the scattering volume at range z and the lidar. The two-way transmittance for any constituent, x, is

$$T_x(z)^2 = \exp(-2\tau_x(z)) = exp(-2\int_0^z \sigma_x(z')dz'). \tag{A3}$$

where $\tau_x(z)$ specifies the optical depth and $\sigma_x(z)$ is the volume extinction coefficient. Molecular contribution can be estimated with a good accuracy using either a density model or meteorological radiosonde data available for the measurement area. When the aerosol contribution is negligible at a range z_0 near the lidar (i.e. where $\tau_x(z_0)$ is small), one can determinate the lidar system constant K from the value of $P(z_0)$. If we divide $P(z)$ by this value and normalize to the Rayleigh contribution, we obtain the attenuated backscatter ratio, $R(z)$, given by:

$$R(z) = \frac{P(z)}{K\beta_{\lambda,m}(z).exp(-2\tau_{\lambda,m}(z))} \approx 1 + \frac{\beta_{\lambda,a}(z)}{\beta_{\lambda,m}(z)} \tag{A4}$$

if $\tau_{\lambda,a}$ remains small (this is the case for this study).

When a linear polarized laser beam is emitted, depolarization related to backscattering in the atmosphere can be measured by a receiving lidar system with an optical selection of the parallel- and cross-polarized signal.The backscatter ratios, R, for perpendicular- and parallel-polarized light are defined as

$$R_\perp(z) = 1 + \frac{\beta_{\perp,a}(z)}{\beta_{\perp,m}(z)} \quad R_\parallel(z) = 1 + \frac{\beta_{\parallel,a}(z)}{\beta_{\parallel,m}(z)} \tag{A5}$$

and the ratio of the aerosol cross- to parallel-polarized backscatter coefficient is called the linear volume depolarization ratio, δ_a, given by:

$$\delta_a(z) = \frac{\beta_{\perp,a}(z)}{\beta_{\parallel,a}(z)} = \frac{R_\perp(z)-1}{R_\parallel(z)-1}.\delta_m \quad \delta_m = \frac{\beta_{\perp,m}}{\beta_{\parallel,m}} \tag{A6}$$

The Rayleigh depolarization and its wavelength dependency can be found in Bucholtz (1995), e.g. $\delta_m = 0.015$ at 355 nm. Since this ratio depends critically on the absolute accuracy of the backscatter ratio retrieval, the ratio of the total cross- to the total parallel-polarized backscatter coefficient is also used and called hereafter the pseudo depolarization ratio δ given by:

$$\delta(z) = \frac{\beta_\perp(z)}{\beta_\parallel(z)} = \frac{R_\perp(z)}{R_\parallel(z)} = \delta_a(z)(1 - \frac{1}{R_\parallel(z)}) + \frac{\delta_m}{R_\parallel(z)}. \tag{A7}$$

The pseudo depolarization ratio, δ, tends to δ_m only in a clean region where $R_{\|}$ tends to 1. Notice that in a thick aerosol layer where the aerosol depolarization is less than the molecular depolarization, δ could tend to zero. The pseudo depolarization ratio δ has the advantage of being less unstable when the aerosol layer is weak and it is also less dependent on instrumental parameters (Cairo et al., 1999). According to Freudenthaler et al. (2009), the aerosol depolarization ratio δ_a has only a small spectral variation between 532 nm and 355 nm for dust particles, i.e. for aerosol with a large depolarization value. For example, they found that δ_a is 0.3 at 532 nm and 0.28 at 355 nm for saharan dust plume. However the wavelength dependency of δ is related also to the spectral change of the backscatter ratio. This will have to taken into account when comparing δ_{355} and δ_{532}. For example, the layer II-A discussed in this paper has a δ_a value of the order of 3%, while $R_{355} = 1.5$ and $R_{532} = 2$. Assuming no spectral variation of δ_a implies a δ variation from 2% to 2.2% when switching the wavelength from 355 to 532 nm.

The ratio of aerosol backscatter at 1064 nm to the aerosol backscatter at 532 nm is called the color ratio, CR, given by

$$\mathrm{CR}(z) = \frac{\beta_{a,1.06}(z)}{\beta_{a,0.53}(z)} = \frac{R_{1.06}(z)-1}{R_{0.53}(z)-1}.\frac{1}{16} \quad \text{(A8)}$$

where 1/16 is the ratio of the 1064-nm to the 532-nm molecular backscatter. The ratio of total backscatter at 532 nm and the total backscatter at 1064 nm can also be calculated for the same reasons which lead us to use the pseudo depolarization ratio. This new ratio, called hereafter the pseudo color ratio, is related to CR by the following equation:

$$\mathrm{CR}^*(z) = \frac{\beta_{1.06}(z)}{\beta_{0.53}(z)} = \mathrm{CR}(z)(1-\frac{1}{R_{0.53}(z)})+\frac{1}{16R_{0.53}(z)} \quad \text{(A9)}$$

The pseudo ratio CR* can be as small as 1/16, when the aerosol contribution is small (i.e. R much less than 1.5). The CR ratio provides a better representation of the size influence on the aerosol optical properties variation with the wavelength (O'Neill et al., 2003) as it is more directly related to the Angström coefficient which is the standard parameter for discussing this spectral dependency and which is defined as:

$$k = -\frac{dln\tau_a}{dln\lambda}. \quad \text{(A10)}$$

Since k depends on aerosol extinction and not on aerosol backscatter coefficients, the relation between k and CR depends on the ratio of these two coefficient, also called the lidar ratio B. The ratio CR is related to k by the equation:

$$\mathrm{CR}(z) = \frac{B_{0.5,a}(z)}{B_{1.06,a}(z)}.2^{-k}. \quad \text{(A11)}$$

When the fine mode aerosol contribution decreases, k varies from values around 2 to values near 0 and CR increases from values near 0.5 to values near 1, assuming that the corresponding $\frac{B_{0.53,a}}{B_{1.06,a}}$ changes goes from 2 to 1 according to Cattrall et al. (2005). The change of the pseudo ratio CR* goes in the same direction, but with a smaller amplitude as R decreases. For example, CR* does not exceeds 0.5 even for the largest CR values when R remains around 2. Notice also that for small optical depths and small values of the coarse mode fraction, the model calculation of (O'Neill et al., 2003) suggests that k can be larger than 2 and therefore the smallest CR* may become less than 0.2 even when R does not become too small (i.e. above 1.5).

Acknowledgements. The UMS SAFIRE is acknowledged for supporting the ATR-42 aircraft deployment and for providing the aircraft meteorological data. The POLARCAT-FRANCE project was supported by ANR, CNES, CNRS/INSU and IPEV. F. Blouzon and D. Bruneau are acknowledged for their contribution to the lidar operation during flights, and Ariane Bazureau for her work on FLEXPART modeling. John Burkhart from NILU is acknowledged for providing FLEXPART products on the POLARCAT web site. The NASA data center in charge of the CALIPSO data is greatfully acknowledged for providing the CALIOP lidar data.

Edited by: A. Stohl



The publication of this article is financed by CNRS-INSU.

References

Atlas, E. L., Ridley, B. A., and Cantrell, C.: The Tropospheric Ozone Production about the Spring Equinox (TOPSE) Experiment: Introduction, J. Geophys. Res., 108(D4), 8353, doi:10.1029/2002JD003172, 2003.

Bethan, S., Vaughan, G., and Reid, S.: A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere, Q. J. Roy. Meteorol. Soc., 122, 929–944, 1996.

Browell, E. V., Hair, J., Butler, C., Grant, W., DeYoung, R., Fenn, M., Brackett, V., Clayton, M., Brasseur, L., Harper, D., Ridley, B., Klonecki, A., Hess, P., Emmons, L., Tie, X., Atlas, E., Cantrell, C., Wimmers, A., Blake, D., Coffey, M., Hannigan, J., Dibb, J., Talbot, R., Flocke, F., Weinheimer, A., Fried, A., Wert, B., Snow, J., and Lefer, B.: Ozone, aerosol, potential vorticity, and trace gas trends observed at high-latitudes over North America from February to May 2000, J. Geophys. Res., 108(D4), 8369, doi:10.1029/2001JD001390, 2003.

Bucholtz, A.: Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, Appl. Opt., 34, 2765–2773, doi:10.1364/AO.34.002765, http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-34-15-2765, 1995.

Cairo, F., Donfrancesco, G. D., Adriani, A., Pulvirenti, L., and Fierli, F.: Comparison of Various Linear Depolarization Parameters Measured by Lidar, Appl. Opt., 38, 4425–4432, http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-38-21-4425, 1999.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Capes, G., Johnson, G., G.McFiggans, Williams, P., Haywood, J., and Coe, H.: Aging of biomass burning aerosols over West Africa: Aircraft measurements of chemical composition, microphysical properties, and emission ratios, J. Geophys. Res., 113, D00C15, doi:10.1029/2008JD009845, 2008.

Cattrall, C., Reagan, J., Thome, K., and Dubovik, O.: Variability of aerosol and spectral lidar and backscatter and extinction ratios of key aerosol types derived from selected Aerosol Robotic Network locations, J. Geophys. Res., 110, D10S11, doi: 10.1029/2004JD005124, 2005.

Coheur, P.-F., Clarisse, L., Turquety, S., Hurtmans, D., and Clerbaux, C.: IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, Atmos. Chem. Phys., 9, 5655–5667, doi:10.5194/acp-9-5655-2009, 2009.

Duce, R. A., Unni, C. K., Ray, B. J., Prospero, J. M., and Merrill, J. T.: Long-Range Atmospheric Transport of Soil Dust from Asia to the Tropical North Pacific: Temporal Variability, Science, 209, 1522–1524, http://www.jstor.org/stable/1684974, 1980.

Eguchi, K., Uno, I., Yumimoto, K., Takemura, T., Shimizu, A., Sugimoto, N., and Liu, Z.: Trans-pacific dust transport: integrated analysis of NASA/CALIPSO and a global aerosol transport model, Atmos. Chem. Phys., 9, 3137–3145, doi:10.5194/acp-9-3137-2009, 2009.

Engvall, A., Krejci, R., Ström, J., Minikin, A., Treffeisen, R., Stohl, A., and Herber, A.: In-situ airborne observations of the microphysical properties of the Arctic tropospheric aerosol during late spring and summer, Tellus B, 60 (3), 392–404, doi:10.1111/j.1600–0889.2008.00348.x, 2008.

Fehsenfeld, F. C., Ancellet, G., Bates, T. S., Goldstein, A. H., Hardesty, R. M., Honrath, R., Law, K. S., Lewis, A. C., Leaitch, R., McKeen, S., Meagher, J., Parrish, D. D., Pszenny, A. A. P., Russell, P. B., Schlager, H., Seinfeld, J., Talbot, R., and Zbinden, R.: International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation (ICARTT): North America to Europe Overview of the 2004 summer field study, J. Geophys. Res., 111, D23S01, doi:10.1029/2006JD007829, 2006.

, Flamant, C. and Pelon, J.: Atmospheric boundary layer structure over the Méditerranée during a Tramontane event, Q. J. Roy. Met. Soc., 122, 1741–1778,1996.

Fisher, J. A., Jacob, D. J., Purdy, M. T., Kopacz, M., Le Sager, P., Carouge, C., Holmes, C. D., Yantosca, R. M., Batchelor, R. L., Strong, K., Diskin, G. S., Fuelberg, H. E., Holloway, J. S., Hyer, E. J., McMillan, W. W., Warner, J., Streets, D. G., Zhang, Q., Wang, Y., and Wu, S.: Source attribution and interannual variability of Arctic pollution in spring constrained by aircraft (ARCTAS, ARCPAC) and satellite (AIRS) observations of carbon monoxide, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 9, 19035–19080, doi:10.5194/acpd-9-19035-2009, 2009.

Freudenthaler, V., Esselborn, M., Wiegner, M., Heese, B., Tesche, M., Ansmann, A., Müller, D., Althausen, D., Wirth, M., Fix, A., Ehret, G., Knippertz, P., Toledano, C., Gasteiger, J., Garhammer, M., and Seefeldner, M.: Depolarization ratio profiling at several wavelengths in pure Saharan dust during SAMUM 2006, Tellus, 61B, 165–179, doi:10.1111/j.1600-0889.2008.00396.x, http://dx.doi.org/10.1111/j.1600-0889.2008.00396.x, 2009.

Fuelberg, H. E., Harrigan, D. L., and Sessions, W.: A meteorological overview of the ARCTAS 2008 mission, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 9, 18417–18478, doi:10.5194/acpd-9-18417-2009, 2009.

Garrett, T. and Zhao, C.: Increased Arctic cloud longwave emissivity associated with pollution from mid-latitudes, Nature, 440, 787–789, 2006.

Gobbi, G. P., Barnaba, F., Van Dingenen, R., Putaud, J. P., Mircea, M., and Facchini, M. C.: Lidar and in situ observations of continental and Saharan aerosol: closure analysis of particles optical and physical properties, Atmos. Chem. Phys., 3, 2161–2172, doi:10.5194/acp-3-2161-2003, 2003.

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.

Hess, M., P. Koepke, and I. Schult: Optical properties of aerosols and clouds: The software package OPAC, B. Am. Meteor. Soc., 79, 831–844, 1998.

Hostetler C. A., Z. Liu, J. Reagan, M. Vaugahn, D. Winker, M. Osborn, W. Hunt, K. A. Powell, C. Trepte: Cloud-Aerosol Lidar Infrared Pathfinder Satellite Observations CALIOP Algorithm Theoretical Basis Document, NASA-CNES Document No: PC-SCI-201, 66 pp., available at http://www-calipso.larc.nasa, 2006.

Jacob, D. J., Crawford, J. H., Maring, H., Clarke, A. D., Dibb, J. E., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., Russell, P. B., Singh, H. B., Thompson, A. M., Shaw, G. E., McCauley, E., Pederson, J. R., and Fisher, J. A.: The ARCTAS aircraft mission: design and execution, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 9, 17073–17123, doi:10.5194/acpd-9-17073-2009, 2009.

Kampe, T. and Sokolik, I.: Remote sensing retrievals of fine mode aerosol optical depth and impacts on its correlation with CO from biomass burning, Geophys. Res. Lett., 34, L12806, doi:10.1029/2007GL029805, 2007.

Law, K. and Stohl, A.: Arctic Air Pollution: Origins and Impacts, Science, 315(5818), 1537–1540, doi:10.1126/science.1137695, 2007.

Liu, Z., Omar, A. H., Hu, Y., Vaughan, M. A., and Winker, D. M.: CALIOP Algorithm Theoretical Basis Document Part 3: Scene Classification Algorithms, 2004.

Liu, Z., Vaughan, M., Winker, D., Kittaka, C., Getzewich, B., Kuehn, R., Omar, A., Powell, K., Trepte, C., and Hostetlerd, C.: The CALIPSO Lidar Cloud and Aerosol Discrimination: Version 2 Algorithm and Initial Assessment of Performance, J. Atmos. Ocean. Tech., 26, 1198–1213, doi:10.1175/2009JTECHA1229.1, 2009.

Liu Z., Vaughan, M. A., Winker, D. M., Hostetler, C. A., Poole, L. R., Hlavka, D., Hart, W., and McGill, M.: Use of probability distribution functions for discriminating between cloud and aerosol in lidar backscatter data, J. Geophys. Res., 109, 1502, doi:10.1029/2004JD004732, 2004

Mattis, I., Ansmann, A., Müller, D., Wandinger, U., and Althausen, D.: Multiyear aerosol observations with dual-wavelength Raman lidar in the framework of EARLINET, J. Geophys. Res., 109, D13203, doi:10.1029/2004JD004600, 2004.

Methven, J., Arnold, S. R., Stohl, A., Avery, M., Law, K., Lewis, A., Parrish, D., Reeves, C., Schlager, H., Atlas, E., Blake, D., and Rappenglück, B.: Establishing Lagrangian connections between observations within air masses crossing the Atlantic during the ICARTT experiment, J. Geophys. Res., 111, D23S62, doi:10.1029/2006JD007 540, 2006.

Nedelec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoeur, F., Cayez, G., and Marizy,

C.: An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme, Atmos. Chem. Phys., 3, 1551–1564, doi:10.5194/acp-3-1551-2003, 2003.

Omar, A., Winker, D., Kittaka, C., Vaughan, M., Liu, Z., Hu, Y., Trepte, C., Rogers, R., Ferrare, R., Lee, K., Kuehn, R., and Hostetler, C.: The CALIPSO Automated Aerosol Classification and Lidar Ratio Selection Algorithm, J. Atmos. Ocean. Tech., 26, 1994–2014, doi:10.1175/2009JTECHA1231.1, 2009.

OŃeill, N., Eck, T., Smirnov, A., Holben, B., and Thulasiraman, S.: Spectral discrimination of coarse and fine mode optical depth, J. Geophys. Res., 108, 4559, doi:10.1029/2002JD002975, 2003.

Paris, J.-D., Arshinov, M. Y., Ciais, P., Belan, B. D., and Nédélec, P.: Large-scale aircraft observations of ultra-fine and fine particle concentrations in the remote Siberian troposphere: New particle formation studies, Atmos. Environ., 43, 1302–1309, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.11.032, 2009.

Pelon, J., Flamant, C., Chazette, P., Léon,J. F., Tanré, D., Sicard, M., and Satheesh, S. K.: Characterization of aerosol spatial distribution and optical properties over the Indian Ocean from airborne lidar and radiometry during INDOEX'99, J. Geophys. Res., 107(D19), 8029, doi:doi:10.1029/2001JD000402, 2002.

Pueschel, R. and Kinne, S.: Physical and radiative properties of Arctic atmospheric aerosols, Science of The Total Environment, 160–161, 811–824, doi:10.1016/0048-9697(95)04414-V, 1995.

Quinn, P. K., Bates, T. S., Baum, E., Doubleday, N., Fiore, A. M., Flanner, M., Fridlind, A., Garrett, T. J., Koch, D., Menon, S., Shindell, D., Stohl, A., and Warren, S. G.: Short-lived pollutants in the Arctic: their climate impact and possible mitigation strategies, Atmos. Chem. Phys., 8, 1723–1735, doi:10.5194/acp-8-1723-2008, 2008.

Radlach, M., Behrendt, A., and Wulfmeyer, V.: Scanning rotational Raman lidar at 355 nm for the measurement of tropospheric temperature fields, Atmos. Chem. Phys., 8, 159–169, doi:10.5194/acp-8-159-2008, 2008.

Rahn, K. A.: Relative importances of North America and Eurasia as sources of arctic aerosol, Atmospheric Environment, 15, 1447–1455, doi:10.1016/0004-6981(81)90351-6, 1981.

Scheuer, E., Talbot, R. W., Dibb, J. E., Seid, G. K., DeBell, L., and Lefer, B.: Seasonal distributions of fine aerosol sulfate in the North American Arctic basin during TOPSE, J. Geophys. Res., 108(D4), 8370, doi:10.1029/2001JD001364, 2003.

Seibert, P. and Frank, A.: Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode, Atmos. Chem. Phys., 4, 51–63, doi:10.5194/acp-4-51-2004, 2004.

Sellegri, K., Hanke, M., Umann, B., Arnold, F., and Kulmala, M.: Measurements of organic gases during aerosol formation events in the boreal forest atmosphere during QUEST, Atmos. Chem. Phys., 5, 373–384, doi:10.5194/acp-5-373-2005, 2005.

Shindell, D. T., Chin, M., Dentener, F., Doherty, R. M., Faluvegi, G., Fiore, A. M., Hess, P., Koch, D. M., MacKenzie, I. A., Sanderson, M. G., Schultz, M. G., Schulz, M., Stevenson, D. S., Teich, H., Textor, C., Wild, O., Bergmann, D. J., Bey, I., Bian, H., Cuvelier, C., Duncan, B. N., Folberth, G., Horowitz, L. W., Jonson, J., Kaminski, J. W., Marmer, E., Park, R., Pringle, K. J., Schroeder, S., Szopa, S., Takemura, T., Zeng, G., Keating, T. J., and Zuber, A.: A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic, Atmos. Chem. Phys., 8, 5353–5372, doi:10.5194/acp-8-5353-2008, 2008.

Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G.: Validation of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, Atmos. Environ., 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, Atmos. Environ., 36, 4635–4648, 2002.

Stohl, A., Cooper, O. R., Damoah, R., Fehsenfeld, F. C., Forster, C., Hsie, E. Y., Hübler, G., Parrish, D. D., and Trainer, M.: Forecasting for a Lagrangian aircraft campaign, Atmos. Environ., 4, 2405–2433, 2004.

Stohl, A., Berg, T., Burkhart, J. F., Fjae'raa, A. M., Forster, C., Herber, A., Hov, Ø., Lunder, C., McMillan, W. W., Oltmans, S., Shiobara, M., Simpson, D., Solberg, S., Stebel, K., Ström, J., Tørseth, K., Treffeisen, R., Virkkunen, K., and Yttri, K. E.: Arctic smoke – record high air pollution levels in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe in spring 2006, Atmos. Chem. Phys., 7, 511–534, doi:10.5194/acp-7-511-2007, 2007a.

Stohl, A., Forster, C., Huntrieser, H., Mannstein, H., McMillan, W. W., Petzold, A., Schlager, H., and Weinzierl, B.: Aircraft measurements over Europe of an air pollution plume from Southeast Asia – aerosol and chemical characterization, Atmos. Chem. Phys., 7, 913–937, doi:10.5194/acp-7-913-2007, 2007b.

Streets, D. and Waldhoff, S.: Present and future emissions of air pollutants in China:: SO2, NOx, and CO, Atmos. Environ., 34, 363–374, doi:10.1016/S1352-2310(99)00167-3, 2000.

Sugimoto, N. and Lee, C. H.: Characteristics of dust aerosols inferred from lidar depolarization measurements at two wavelengths, Appl. Opt., 45, 7468–7474, http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-45-28-7468, 2006.

Warneke, C., Bahreini, R., Brioude, J., Brock, C., de Gouw, J., Fahey, D., Froyd, K., Holloway, J., Middlebrook, A., Miller, L., Montzka, S., Murphy, D., Peischl, J., Ryerson, T., Schwarz, J., Spackman, J., and Veres, P.: Biomass burning in Siberia and Kazakhstan as an important source for haze over the Alaskan Arctic in April 2008, Geophys. Res. Lett., 36, L02813, doi:10.1029/2008GL036194, 2009.

Weber, R., Orsini, D., Wang, B., Scheuer, E., Talbot, R., Dibb, J., Seid, G., DeBell, L., Mauldin, R., Kosciuch, E., Cantrell, C., and Eisele, F.: Investigations into free tropospheric new particle formation in the central Canadian arctic during the winter/spring transition as part of TOPSE, J. Geophys. Res., 108(D4), 8357, doi:10.1029/2002JD002239, 2003.

Winker, D. M., Vaughan, M., Omar, A., Hu, Y., Powell, K., Liu, Z., Hunt, W., and Young, S.: Overview of the CALIPSO Mission and CALIOP Data Processing Algorithms, J. Atmos. Oceanic Technol., 26, 2310–2323, doi:10.1175/2008JTECHA1221.1, 2009.

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

tel-00697014, version 1 - 14 May 2012

Résumé : Ces travaux, effectués dans le cadre de la 4^e année polaire internationale et à partir des mesures in-situ obtenues durant le projet POLARCAT-France, ont pour objectifs de fournir, dans un premier temps, une climatologie des panaches de pollution transportés depuis les continents sources (Amérique du Nord, Europe et Asie) vers l'Arctique. La climatologie contient des informations sur les propriétés physique, chimique et optique des particules d'aérosols, l'origine des panaches ayant été déterminée à l'aide du modèle lagrangien de rétro-trajectoire FLEXPART. Dans un second temps, les processus qui influent sur les propriétés des particules de pollution durant leur transport vers l'Arctique ont été étudiées. Si au cours de la campagne d'été au Groenland, il a été montré que la totalité des panaches rencontrés ont subits un processus de dépôt humide durant leur transport vers l'Arctique, la campagne de printemps au nord de la Suède a permis de mettre en avant l'évolution d'un même panache échantillonnés lors de 3 vols consécutifs ainsi que des propriétés de mélange entre les contributions anthropiques et naturelles de deux panaches asiatiques.
Mots clés : Aérosols, mesures in-situ, Arctique, vieillissement

Abstract : The aims of this thesis were, in a first step, to build a climatology of pollution plumes transported from source continents to the Arctic as measured during the POLARCAT-France campaigns performed in spring and summer 2008, in the frame of the 4^{th} International Polar Year. The climatology is including informations on aerosol particle physical, chemical and optical properties and is organized as a function of pollution plume origins (determined with the Lagrangian transport model FLEXPART). In a second step, aerosol processes which influenced aerosol properties during transport to the Arctic were studied. During the summer campaign, the whole plumes encounter experienced wet scavenging processes on their pathway to Groenland. In spring, a plume was sampled during three consecutive days and thus, its ageing was characterised. Finally, two Asian plumes allowed us to highlight the external mixing between anthropogenic and biomass burning contributions transported to northern scandinavia.
Keywords : Aerosols, in-situ measurements, Arctic, ageing